



**HAL**  
open science

# Ozone et transport dans la haute troposphère tropicale de l'Océan Indien et de l'Asie du Sud : apport des données spatiales (IASI) et de la modélisation

Flore Tocquer

► **To cite this version:**

Flore Tocquer. Ozone et transport dans la haute troposphère tropicale de l'Océan Indien et de l'Asie du Sud : apport des données spatiales (IASI) et de la modélisation. Physique Atmosphérique et Océanique [physics.ao-ph]. Université Toulouse III Paul Sabatier, 2015. Français. NNT : . tel-01182145

**HAL Id: tel-01182145**

**<https://theses.hal.science/tel-01182145>**

Submitted on 30 Jul 2015

**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

En vue de l'obtention du

**DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE**

Délivré par : *l'Université Toulouse 3 Paul Sabatier (UT3 Paul Sabatier)*

---

---

Présentée et soutenue le *30/01/2015* par :

**FLORE TOCQUER**

**Ozone et transport dans la haute troposphère tropicale de l'Océan Indien et de l'Asie du Sud : apport des données spatiales (IASI) et de la modélisation**

---

---

## JURY

ROUX FRANK  
CATOIRE VALÉRY  
MENUT LAURENT  
LAW KATHY  
MARECAL VIRGINIE  
DENIEL CAROLE  
BARRET BRICE

Professeur Université Toulouse  
Professeur Université Orléans  
Directeur de Recherche CNRS  
Directeur de Recherche CNRS  
Directeur de Recherche CNRS  
Ingénieur de Recherche  
Chargé de Recherche CNRS

Président du Jury  
Rapporteur  
Rapporteur  
Rapporteuse  
Examinatrice  
Examinatrice  
Directeur de Thèse

---

**École doctorale et spécialité :**

*SDU2E : Océan, Atmosphère et Surfaces Continentales*

**Unité de Recherche :**

*Laboratoire d'Aérodynamique (UMR 5560)*

**Directeur(s) de Thèse :**

*BARRET Brice et MARI Céline*

**Rapporteurs :**

*CATOIRE Valéry, MENUT Laurent et LAW Kathy*



---

---

# Remerciements

---

---

Je tiens tout d'abord à remercier Mr BARRET Brice, mon directeur de thèse, pour son aide dans l'accomplissement de cette thèse, en m'initiant aux complexes interactions dynamiques et chimiques caractérisant l'Océan Indien et l'Asie du Sud-Est, pour son accompagnement et sa disponibilité jusqu'à la fin de mon doctorat. C'est avec une certaine émotion que je remercie aussi ma co-encadrante Mme MARI Céline, que j'ai beaucoup sollicitée pendant de nombreuses heures, pour venir à bout des méandres du schéma chimique de Méso-NH. Elle m'a par ailleurs apporté l'équilibre nécessaire à ma curiosité divergente et à mes doutes récurrents.

Je remercie Mme LAW Kathy, Mr MENUT Laurent et Mr CATOIRE Valéry d'avoir accepté d'être mes rapporteurs, Mme MARECAL Virginie et Mme DENIEL Carole pour avoir suivi et examiné mon travail de thèse durant ces trois années, Mr ROUX Frank pour son accueil chaleureux au Laboratoire d'aérodynamique et sa présidence à ma soutenance.

Je remercie enfin mes collègues chercheurs, toujours ouverts à mes questions : ESCOBAR Juan et GAZEN Didier pour le modèle Méso-NH, AUBRY Antoine et SAUVAGE Bastien pour le modèle FLEXPART, BIELLI Soline pour le logiciel NCL.

De même, j'ai eu plaisir à collaborer avec Mr DEFER Eric du LERMA qui a partagé ses connaissances sur les instruments de mesures satellites, ainsi que son aide avec MATLAB, bien que notre travail n'ait pas pu être valorisé dans l'aboutissement de cette thèse. Je remercie Mr ROCA Rémy du LEGOS pour ses nombreux échanges et la communication des connaissances nécessaires pour appréhender les systèmes convectifs d'Asie du Sud-Est.

Je remercie tous les doctorants et non permanents qui ont fait de ces années des moments inoubliables, faites de pauses sportives et dégustatives.

Ma thèse a aussi été enrichie par la fabuleuse campagne de mesure CHARMEX, une expérience où j'ai pu retrouver l'équipe de la division "ballons" du CNES, déjà rencontrée lors de mon stage en Master 1. Cet apprentissage m'a permis d'appliquer sur le terrain des connaissances scientifiques et de voir l'ensemble du travail qui permet de récupérer des mesures *in-situ*.

Enfin un grand merci, à toutes les personnes qui ont rendu ces années si agréables : tous les

membres du laboratoire d'aérodynamique, et du service informatique.

Une pensée particulière pour mes amis qui sont également mes compagnons de route depuis quelques années : Thomas, Marine, Tomy, Charlotte. A ma famille et belle famille, toujours présentes.

Un tendre merci à l'homme qui partage ma vie, pour sa patience et son aide précieuse qui m'ont permises d'aller jusqu'au bout.

Merci et pardon à toutes les personnes que j'ai pu oublier.

Bonne lecture.

---

---

# Résumé

---

La région tropicale est la principale région de production photochimique de l'ozone ( $O_3$ ) troposphérique en raison des émissions diverses et élevées de précurseurs (feux de biomasse, éclairs, pollution anthropique), d'un fort ensoleillement et d'une forte humidité. La rapide croissance économique et démographique qui a lieu en Asie conduit à une augmentation considérable de ces émissions de polluants atmosphériques dues à l'industrie ou à l'utilisation de combustibles pour des besoins domestiques. La convection nuageuse dans la zone de convergence intertropicale et les épisodes de mousson mélangent verticalement les masses d'air, alors que les circulations globales exportent la pollution à l'échelle de la région, voire à celle de l'hémisphère. La combinaison de ces processus contrôlent la distribution de l' $O_3$  troposphérique aux tropiques, qui est caractérisée par le schéma appelé le "wave-one", associé à un maximum d' $O_3$  sur l'Atlantique Sud et un minimum sur le Pacifique Ouest.

Concernant la région de l'Océan Indien et de l'Asie du sud, le projet INDOEX a permis de déterminer en partie l'origine de l'enrichissement en  $O_3$  dans la moyenne et haute troposphère au printemps. Plus récemment, les observations satellite ont mis en évidence l'existence d'une accumulation de polluants dans l'anticyclone de la mousson asiatique (AMA) qui se forme dans la haute troposphère–basse stratosphère (UTLS) pendant la mousson d'été. Pourtant, les processus qui contrôlent la distribution de l' $O_3$  dans cette région sont insuffisamment documentés. L'objectif de cette thèse est de mieux comprendre les processus responsables de la distribution de l' $O_3$  dans l'UTLS de la région de l'Océan Indien. Ce travail repose sur les données d' $O_3$  restituées avec le logiciel SOFRID à partir des radiances mesurées par le sondeur IASI à bord de la plateforme Metop-A. Ces données permettent en particulier de documenter les concentrations d' $O_3$  dans l'UTLS de l'Océan Indien avec une revisite de 2 fois par jour ce qui autorise le suivi du transport de l' $O_3$  à l'échelle intercontinentale. Cependant, les données IASI possèdent une résolution verticale de l'ordre de 8 km. Pour compléter ce jeu de données, les observations du programme MOZAIC bien que plus limitées temporellement et spatialement inhomogènes sont beaucoup plus

---

précises et ont une très bonne résolution spatio-temporelle. Elles sont mises à profit pour valider les évènements et anomalies observés par IASI. Enfin, les données des plateformes TRMM et Meteosat sont utilisées pour la caractérisation et le suivi d'évènements convectifs. L'interprétation des évènements étudiés et des anomalies observées, est analysée avec deux modèles numériques complémentaires : FLEXPART qui est un modèle de dispersion lagrangienne et Méso-NH qui permet de coupler météorologie et chimie atmosphérique.

Les observations IASI identifient un cas de transport de masses d'air enrichies en  $O_3$  de l'Afrique vers l'Inde. Cet évènement de transport s'effectue de manière particulière, bordé entre 2 zones caractérisées par des concentrations d' $O_3$  beaucoup plus faibles. Le canal de sud-ouest dans lequel le transport de masses d'air enrichies en  $O_3$  a lieu est le résultat d'une intense activité ondulatoire des jets sub-tropicaux des deux hémisphères. L'évènement est aussi documenté par des vols MOZAIC-IAGOS à l'ouest des côtes indiennes qui confirment l'enrichissement en  $O_3$ . Pour la saison de pré-mousson qui a été l'objet d'étude du programme INDOEX à la fin des années 90, de tels épisodes d'enrichissement d' $O_3$  dans la haute troposphère au-dessus de la mer d'Arabie et de l'Océan Indien équatorial étaient essentiellement attribués à des échanges entre la stratosphère et la troposphère issus de la stratosphère extra-tropicale des hémisphères nord et sud. L'étude de [De Laat \(2002\)](#) a aussi mis en avant la source des feux africains pour expliquer les fortes valeurs en  $O_3$  dans la moyenne et haute troposphère de cette région. En ce qui concerne l'évènement détecté par IASI, appelé rivière d' $O_3$  du fait de son caractère canalisé, des simulations FLEXPART et Méso-NH sont appliquées pour déterminer son origine. Les simulations FLEXPART couplées aux analyses ECMWF excluent une origine stratosphérique de l'évènement et pointent vers une probable contribution importante des éclairs qui ont lieu au sud de l'Afrique en cette saison. Les fortes concentrations de monoxyde de carbone (CO) MOZAIC et les valeurs élevées d'humidité des analyses ECMWF et des simulations Méso-NH vont aussi à l'encontre d'une origine stratosphérique. Les traceurs passifs simulés par Méso-NH pour reproduire les différents précurseurs d' $O_3$  potentiellement responsables de la rivière d' $O_3$  confirment l'impact prépondérant des oxydes d'azote ( $NO_x$ ) produits par les éclairs (*lightning  $NO_x$* ) en Afrique pour expliquer la rivière d' $O_3$ . Cette étude pourra être étendue à l'ensemble de la région et aux autres saisons, en particulier au printemps, pour consolider les conclusions obtenues dans le cadre de INDOEX il y a plus de dix ans.

La deuxième partie du travail de thèse porte sur la caractérisation de l'impact d'un système convectif profond sur la composition de l'UTLS pendant la mousson d'été asiatique. L'identification du cas d'étude est faite à l'aide des observations de la plateforme TRMM pour isoler un

---

système convectif étendu et profond à même de ventiler des masses d'air à très haute altitude. La provenance et le devenir des masses d'air impactées par les systèmes convectifs sont déterminés par des simulations du modèle FLEXPART afin d'affiner le choix sur un système susceptible de transporter des masses d'air polluées au sein de l'AMA. Le système retenu est celui du 12 août 2009 sur les piémonts de l'Himalaya centrale, région documentée par une étude récente (Bergman et al., 2013) comme le conduit privilégié de transport vers l'UTLS pendant la mousson. Ce système possède un sommet nuageux qui atteint 16 km et une étendue de près de plusieurs centaines de km<sup>2</sup>. Le modèle Méso-NH est utilisé pour caractériser l'impact de ce système sur la composition de l'UTLS dans la région. Une simulation avec un traceur passif montre la capacité du système à soulever des masses d'air polluées dans l'UTLS entre 150 et 100 hPa, altitudes auxquelles la pollution est transportée rapidement par la circulation de l'AMA. Une simulation préliminaire avec le schéma chimique activé montre l'anti-corrélation classique entre O<sub>3</sub> et CO dans la zone de détrainement du système convectif, et une diminution significative d'O<sub>3</sub> liée à la production de LiNOx pendant le transport dans l'AMA. L'étude illustre bien l'alimentation possible de l'AMA par la pollution de surface ventilée par la convection et l'émission des LiNOx. Cette étude préliminaire ne permet pas encore de conclusion quantitative car les quantités de LiNOx au sein des systèmes convectifs sont surestimées dans le modèle et un ajustement de leur paramétrisation devra être effectué ainsi que des simulations de sensibilité pour quantifier correctement la production d'O<sub>3</sub> par les différentes sources de NOx. Cette étude prend place dans des problématiques actuellement au centre d'une collaboration internationale, tel que ACAM (*Atmospheric Composition and the Asian Monsoon*) visant à étudier ces interactions complexes de la mousson asiatique d'été entre dynamique et chimie, jusqu'à l'échelle du changement climatique.

**Mots clés :** Ozone, Pollution, Transport, UTLS, Océan Indien, Asie du Sud, IASI, Méso-NH



---

---

# Abstract

---

Tropical regions play a major role in the photochemical production of tropospheric ozone ( $O_3$ ) due to diverse and intense emissions (biomass burning, lightning, anthropogenic pollution), strong solar radiation and high humidity. The strong economic and population growth in Asia has also led to a considerable increase in emissions of air pollutants from the industrial sector and from the use of fuels for domestic needs. Convection that takes place in the Intertropical Convergence Zone and in the monsoon episodes controls the distribution of tropospheric  $O_3$  in the tropics, whereby the principal is the "wave-one" pattern characterized by a maximum over the Atlantic and a minimum over the western Pacific.

Concerning the regions of the Indian Ocean and South Asia, the INDOEX project has aided in determining the origin of the enrichments of  $O_3$  observed in the middle and upper troposphere in spring. More recently, satellite observations have revealed the existence of an accumulation of pollutants within the Asian Monsoon Anticyclone (AMA) which forms in the upper troposphere–lower stratosphere (UTLS) during the summer monsoon period. However, the processes that control the distribution of  $O_3$  in this region are poorly documented. The objective of this thesis is to contribute to a better understanding of the processes responsible for the distribution of  $O_3$  in the UTLS of the Indian Ocean region.  $O_3$  data retrieved with the SOFRID software from radiances measured by the IASI sensor onboard the Metop-A platform are used to document the  $O_3$  concentrations in the UTLS over the Indian Ocean. With two daily overpasses IASI can monitor the transport of  $O_3$  at intercontinental scale. However, it is worth noting that the IASI data has a very coarse vertical resolution of about 8 km. Data from the MOZAIC program on the other hand although more sporadic and spatially inhomogeneous are more accurate and have a very good spatial and temporal resolution. These data are used to validate the observed events and anomalies obtained by IASI. The TRMM and Meteosat data are used to identify and track convective events. The interpretation of these events and anomalies is made using two complementary numerical models, FLEXPART which is a Lagrangian dispersion model and Meso-NH capable of simulating the weather and atmospheric chemistry in a coupled way.

IASI data identified a particular case of transport of enriched  $O_3$  air masses from Africa to the Indian sub-continent. This case is exemplary with transport undertaken between 2 zones

---

with much lower  $O_3$  concentrations. The south-west channel where the transport of enriched  $O_3$  air masses takes place is a result of an intense wave activity of the sub-tropical jets of both hemispheres. This event is also documented on the western coasts of India by MOZAIC-IAGOS flights, which confirm the enrichment in  $O_3$ . The pre-monsoon season was an object of interest in the INDOEX program during the late 1990s. Events of  $O_3$  enrichment in the upper troposphere above the Arabian Sea and the equatorial Indian Ocean were essentially attributed to stratosphere–troposphere exchange from the extra-tropical stratosphere of the northern and southern hemispheres. De Laat (2002) also highlighted the African fires as a source to explain the high values of  $O_3$  in the middle and upper troposphere of this region. Regarding the event detected by IASI, named the “ozone river” due to its characteristic channeled transport, simulations using FLEXPART and Meso-NH have been used to determine its origin. The FLEXPART simulations coupled with ECMWF re-analyses excludes a stratospheric origin for the event and indicates a probable important contribution by lightning that occurs in the central and southern African regions during this season. The high carbon monoxide (CO) concentrations of MOZAIC, high humidity from the ECMWF re-analyses along with simulations using Meso-NH model all go against the hypothesis of a stratospheric origin. The passive tracers simulated by Meso-NH used to reproduce the different  $O_3$  precursors potentially responsible for the ozone river confirm the major impact of nitrogen oxides (NO<sub>x</sub>) produced by African lightning in explaining the ozone river. This study could be extended to the whole region and other seasons with a focus on the spring season in order to complete the conclusions obtained during the INDOEX program more than a decade ago.

The second part of the thesis focuses on the characterisation of the impact of a deep convective system upon the UTLS composition during the monsoon. A case study is chosen based on observations from the TRMM spaceborne platform of a deep and large convective system which could efficiently uplift air masses from the boundary layer to the UTLS. The origine and fate of air masses uplifted by the convective systems is determined with the FLEXPART simulations. The selected system is detected on 12 august 2009 over the central Himalaya foothills, a region identified by previous studies (Bergman et al., 2013) as the transport pipe towards the UTLS during the monsoon. The cloud top heights from the selected system reach 16 km and it spread over hundreds of km<sup>2</sup>. The Meso-NH model is used to determine the impact of this system on the UTLS regional composition. A first simulation with a passive tracer highlights the potential of the convective system to uplift polluted air masses to the UTLS between 150 and 100 hPa, where the pollutants are rapidly transported by the AMA circulation. A preliminary simulation including reactive chemistry show the classic anti-correlation between  $O_3$  and CO in detrainment area of convective system and provides a first glimpse of the photochemical destruction of  $O_3$

---

by the LiNO<sub>x</sub> within the convective outflow during the transport in the AMA. A quantitative analysis is not possible with the present simulation as the amount of LiNO<sub>x</sub> produced is overestimated by the model. Sensitivity analysis are foreseen to determine precisely the impact of the different NO<sub>x</sub> sources on the O<sub>3</sub> production. This study is established in connection with actual major problematic at the center of general debate of the international collaboration. Like ACAM (*Atmospheric Composition and the Asian Monsoon*) whose targeting the complexe interaction of asian summer monsoon to atmospheric dynamics and chemistry, as well as climate change impact.

**Keywords :** Ozone, Pollution, Transport, UTLS, Indian Ocean, South Asian, IASI, Meso-NH



---

---

# Table des matières

---

Remerciements . . . . .	ii
Résumé en français . . . . .	iv
Résumé en anglais . . . . .	viii
Introduction Générale . . . . .	2
1 L'ozone troposphérique . . . . .	6
1.1 Bilan de l'ozone à l'échelle globale . . . . .	7
1.2 Sources et puits chimiques de l'ozone . . . . .	8
1.2.1 Le système chimique O <sub>3</sub> /COV/NO <sub>x</sub> . . . . .	8
1.2.2 Les régimes chimiques de l'ozone . . . . .	14
1.2.3 La chimie de l'ozone dans la haute troposphère tropicale . . . . .	17
1.3 Les échanges stratosphère–troposphère . . . . .	19
1.4 Sources primaires des précurseurs de l'ozone . . . . .	22
1.4.1 Les émissions anthropiques . . . . .	22
1.4.2 Les émissions provenant de la combustion de biomasse . . . . .	24
1.4.3 Les émissions produites par les éclairs . . . . .	25
1.5 Variabilité de l'ozone et impact sur le climat . . . . .	28
1.5.1 L'ozone, un gaz à effet de serre . . . . .	28
1.5.2 Evolution de l'ozone troposphérique . . . . .	29
1.5.3 Cycle saisonnier de l'ozone . . . . .	32
2 Transport de l'O <sub>3</sub> aux tropiques . . . . .	34
2.1 Distribution de l'ozone à l'échelle globale . . . . .	34
2.2 La dynamique atmosphérique . . . . .	36
2.2.1 Les cellules de Hadley et Walker . . . . .	36
2.2.2 Les ondes équatoriales . . . . .	37
2.2.3 Impacts thermique et dynamique du plateau Tibétain . . . . .	37
2.2.4 La circulation de mousson et les anticyclones subtropicaux . . . . .	38
2.2.5 La convection nuageuse . . . . .	40
2.3 La structure de l'O <sub>3</sub> dans la troposphère tropicale . . . . .	42
2.3.1 Le paradoxe de l'O <sub>3</sub> sur Atlantique tropical et le Wave number one . . . . .	42

## TABLE DES MATIÈRES

---

2.3.2	Les anomalies de l'O <sub>3</sub> sur la région de l'Océan Indien . . . . .	44
2.3.3	L'Anticyclone de la Mousson Asiatique et la composition atmosphérique . . . . .	49
3	De l'observation à la modélisation . . . . .	58
3.1	Observations spatiales et aéroportées . . . . .	58
3.1.1	Données spatiales IASI . . . . .	58
3.1.2	Données aéroportées MOZAIC . . . . .	61
3.1.3	Données spatiales TRMM - MétéoSat . . . . .	63
3.2	Les modèles numériques . . . . .	66
3.2.1	FLEXPART . . . . .	66
3.2.2	Méso-NH . . . . .	67
4	Épisode de transport d'ozone entre l'Afrique et l'Asie du Sud . . . . .	74
4.1	Introduction . . . . .	74
4.2	An upper tropospheric "ozone river" from Africa to India . . . . .	76
4.2.1	Abstract . . . . .	76
4.2.2	Introduction . . . . .	76
4.3	Observations analysis . . . . .	78
4.3.1	IASI upper tropospheric ozone . . . . .	78
4.3.2	MOZAIC ozone observations . . . . .	79
4.3.3	Meteorological situation . . . . .	81
4.4	Origin of the ozone river . . . . .	83
4.4.1	MOZAIC air-mass characterization . . . . .	83
4.4.2	Simulation of retroplumes . . . . .	83
4.4.3	Tagged simulations at mesoscale . . . . .	86
4.4.4	Conclusions . . . . .	90
4.5	Discussions et perspectives . . . . .	93
4.5.1	Contribution des masses d'air stratosphérique . . . . .	93
4.5.2	Fréquence des événements d'export d'O <sub>3</sub> d'Afrique vers l'Asie du Sud . . . . .	98
4.5.3	Conclusions et perspectives . . . . .	102
5	Transport et transformation de la pollution par la convection nuageuse profonde pendant la mousson asiatique . . . . .	106
5.1	Introduction . . . . .	106
5.2	Les systèmes convectifs pendant la mousson . . . . .	107
5.3	Alimentation de l'AMA : le cas d'un traceur passif . . . . .	113
5.4	L'impact du système convectif nuageux sur la composition de l'UTLS . . . . .	116
5.5	Conclusion et perspectives . . . . .	120

## TABLE DES MATIÈRES

---

Conclusion Générale . . . . .	122
Liste des Acronymes . . . . .	126



---

---

# Introduction Générale

---

En 2001 [Ramaswamy et al.](#) estimaient que, depuis l'époque pré-industrielle, le forçage radiatif résultant de l'augmentation de l'ozone ( $O_3$ ) troposphérique représentait environ 1/4 de celui dû à l'augmentation du dioxyde de carbone ( $CO_2$ ) ce qui est confirmé par le 5ème rapport de l'[IPCC de 2013](#). L' $O_3$  est un polluant secondaire, produit par des réactions photochimiques à partir de précurseurs (oxydes d'azote ( $NO_x$ ) et Composés Organiques Volatiles (COV)) émis par les processus de combustion mais aussi par la végétation, les sols et les éclairs. Les circulations troposphériques de grande échelle provoquent l'export des polluants atmosphériques d'un continent à l'autre et minimisent donc l'impact des efforts de réduction des émissions sur la pollution aux échelles locales et régionales. Le transport intercontinental de pollution se produit lorsque les masses d'air sont soulevées hors de la couche limite atmosphérique vers la troposphère libre et la haute troposphère, où l'advection est plus intense. Le soulèvement peut se faire par le biais de systèmes frontaux, par la convection, par forçage orographique ou par pyroconvection pour les panaches de feux de biomasse. Il est aussi à noter que, une fois dans les couches supérieures de la troposphère, les gaz réactifs tels que l' $O_3$  et ses précurseurs auront un impact d'autant plus important que leur durée de vie est plus longue. Enfin, en raison du gradient thermique troposphérique, l'effet de serre de l' $O_3$  provient principalement de la région de la haute troposphère–basse stratosphère (UTLS) entre 8 et 20 km d'altitude.

Toutefois, les difficultés rencontrées pour expliquer les tendances de l' $O_3$  observées dans cette région, et en particulier l'augmentation dans la haute troposphère tropicale ([Bortz et al., 2006](#)), rendent incertaine la prévision de son évolution future. Les 3/4 de la production et de la destruction de l' $O_3$  troposphérique ont lieu en effet dans les tropiques, région de forte activité photochimique en raison de conditions très favorables (ensoleillement, humidité et émissions de précurseurs importants). En particulier, la pollution émise par l'Asie du Sud et du Sud-Est influence la composition troposphérique globale de manière croissante depuis plusieurs décennies. D'une part, les études réalisées dans le cadre du programme INDOEX ont mis en évidence l'impact de l'export de pollution du sous-continent indien (en particulier de la région de la plaine indo-gangétique) sur la composition de la troposphère de l'ensemble de la région de l'Océan Indien en hiver ([Lawrence and Lelieveld, 2010](#)). En ce qui concerne l' $O_3$  ces études ont cependant

montré que les échanges stratosphère–troposphère jouaient un rôle majeur sur la formation des pics d'O<sub>3</sub> observés de manière récurrente pendant la campagne INDOEX dans la moyenne et haute troposphère de cette région. D'autre part, la convection tropicale, responsable du mélange vertical des masses d'air, a un rôle central sur la composition de l'UTLS tropicale et conduit à des rétroactions fortes entre la chimie et le climat. Des études basées sur des observations spatiales ont récemment montré que, pendant la mousson, la pollution asiatique pouvait être transportée jusqu'à la basse stratosphère et confinée dans l'Anticyclone de la Mousson Asiatique qui agit comme un réservoir de polluants (Park et al., 2007; Barret et al., 2008). Ces polluants ont un impact important sur l'O<sub>3</sub> dans l'UTLS et par la suite sur le bilan radiatif de l'atmosphère. D'autre part, ce réservoir qui s'étend du Moyen-Orient au Pacifique peut impacter la basse troposphère au niveau de la Méditerranée dans la zone de subsidence de la cellule de Hadley et influencer la qualité de l'air de cette région.

Cependant, depuis INDOEX, les observations de la composition de la troposphère de l'Asie du Sud et de la région de l'Océan Indien sont rares et les processus qui contrôlent la distribution de l'O<sub>3</sub> dans cette région restent incertains et controversés. Par exemple, l'origine stratosphérique des maxima d'O<sub>3</sub> au-dessus de l'Océan Indien (Zachariasse et al., 2000, 2001) avaient été remis en cause par De Laat (2002) qui les attribuait à des sources africaines.

L'objectif de ce travail de thèse est de caractériser les processus contribuant à l'alimentation de la haute troposphère au dessus de l'Océan Indien et de l'Asie du Sud avec un focus sur le rôle de la convection nuageuse. Cet objectif est abordé au travers de deux épisodes remarquables en terme d'enrichissement de la haute troposphère en O<sub>3</sub>.

Le premier épisode révélé par les observations spatiales récentes (Metop/IASI) complétées par des observations aéroportées *in-situ* (MOZAIC/IAGOS) est une "rivière d'ozone" dans la haute troposphère entre les continents africain et indien en période d'hiver boréal. Ce cas d'étude remet en question les origines des fortes valeurs d'O<sub>3</sub> au-dessus de la mer d'Arabie qui ont été proposées suite à la campagne INDOEX. Le phénomène observé a pour origine la conjonction d'un ensemble complexe de processus dynamiques (convection, tempête tropicale, ondes de Rossby) et chimiques (disparité géographique et saisonnalité des émissions). Cet épisode est analysé avec 2 modèles numériques lagrangien (FLEXPART) et eulérien (Mésos-NH) qui permettent de discuter l'origine possible de la signature en O<sub>3</sub> observée au dessus de l'Océan Indien. Cette étude a donné lieu à un article soumis pour publication inclus dans ce manuscrit. Le deuxième épisode traite de l'enrichissement de l'Anticyclone de la Mousson Asiatique par les processus convectifs extrêmes qui se développent le long de l'Himalaya. En se basant sur des observations spatiales (TRMM)

et des simulations lagrangiennes (FLEXPART) les systèmes convectifs profonds de la région de mousson (Inde, Golfe du Bengale) ont été étudiés afin de sélectionner un cas représentatif des systèmes convectifs qui pourraient être à l'origine du transport de polluant dans l'UTLS. La modélisation de celui-ci à méso-échelle avec le modèle (MésO-NH), a permis de caractériser l'impact d'un tel système sur la composition de l'UTLS.

Le premier chapitre du manuscrit reprend l'état de l'art de la connaissance sur le bilan de l'O<sub>3</sub>, les principales sources de précurseurs, l'évolution et l'impact sur le changement climatique de l'O<sub>3</sub> troposphérique. Le chapitre 2 est consacré à la dynamique atmosphérique et aux distributions de l'O<sub>3</sub> de la troposphère tropicale en insistant sur les anomalies d'O<sub>3</sub> qui sont encore sujet à débat donnant ainsi l'état de l'art des problématiques abordées dans cette thèse. Dans le chapitre 3 sont introduits les observations et les modèles qui ont été utilisés pendant la thèse. En ce qui concerne les observations, il s'agit principalement des données spatiales IASI et aéroportées MOZAIC pour la composition atmosphérique et des données de la plateforme TRMM pour les systèmes convectifs. Deux modèles sont présentés, à savoir le modèle de dispersion lagrangienne FLEXPART et le modèle MésO-NH pour le couplage météo-chimie à méso-échelle. Enfin, le chapitre 4 présente l'analyse de l'étude de la rivière d'ozone et le chapitre 5 les résultats concernant la caractérisation de l'impact d'un système convectif profond sur la composition de l'UTLS pendant la mousson asiatique. La conclusion reprend les résultats principaux de la thèse en ouvrant la discussion sur les perspectives possibles de ces travaux.



# L'ozone troposphérique

---

Ce chapitre revient sur l'état actuel des connaissances sur les propriétés et les impacts de l'ozone ( $O_3$ ) dans l'atmosphère avec une attention particulière sur les régions tropicales.

L' $O_3$  est un gaz trace présent dans la troposphère et la stratosphère. 90% de l' $O_3$  sont contenus entre 20 et 50 km d'altitude dans la stratosphère (Seinfeld and Pandis, 1998). La production d' $O_3$  dans la stratosphère est induite par l'action du rayonnement solaire sur les molécules d'oxygène. Sa concentration relative maximum autour de 20–25 km d'altitude atteint 5–6 millièmes en volume (1 ppmv =  $10^{-6}$  mole/mole d'air) parfois plus dans les régions tropicales (Figure 1.1). Dans la couche atmosphérique, l' $O_3$  agit comme un filtre pour les rayons ultraviolets (UV) du soleil en absorbant les longueurs d'onde comprises entre 240 et 320 nm (UV-B et UV-C), les plus dangereuses pour les êtres vivants.

Dans la troposphère, le contenu en  $O_3$  est limité à 10% du contenu atmosphérique total (Seinfeld and Pandis, 1998). L'origine de l' $O_3$  dans la troposphère est double. D'une part, le transport de masse d'air depuis la stratosphère, réservoir majeur, vers la troposphère. D'autre part, la photo-oxydation de constituants précurseurs (Section 1.2.1) : hydrocarbures, dioxyde d'azote, monoxyde de carbone, méthane, dont les émissions sont aujourd'hui largement dominées par les sources anthropiques (IPCC 2013) (Section 1.4). Les concentrations d' $O_3$  sont de l'ordre du milliardième (1 ppbv =  $10^{-9}$  mole/mole d'air) et varient de 10 ppbv dans les régions marines non polluées, à 60 ppbv dans les régions des moyennes latitudes de l'hémisphère nord, jusqu'à 100 ppbv sous le vent de régions métropolitaines très polluées.

Près de la surface, l' $O_3$  a un effet toxique pour l'homme notamment par irritation des voies aériennes (WHO, 2003; Brunekreef and Holgate, 2002) et pour la végétation dont il limite la croissance (phyto-toxicité) (Fowler and Erisman, 2003) par son action d'oxydant puissant. L' $O_3$  participe à la capacité oxydante de l'atmosphère car la photolyse de l' $O_3$  est à l'origine des concentrations du radical hydroxyle dans la troposphère. L' $O_3$  est également un gaz à effet de serre, 1200 fois plus actif radiativement, à masse égale dans l'atmosphère, que le gaz carbonique (Lal, 2007). Dans la haute troposphère, l' $O_3$  participe à l'effet de serre additionnel en absorbant le rayonnement infrarouge et en le rediffusant (Section 1.5).

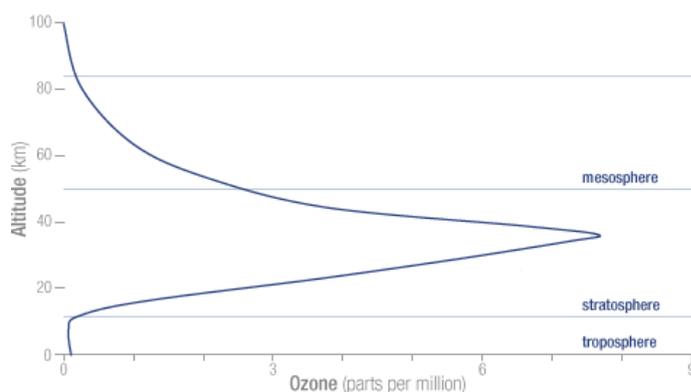


FIGURE 1.1 – Représentation du profil vertical des rapports de mélange de l’O<sub>3</sub> dans l’atmosphère. – NASA, Newman P. A..

## 1.1 Bilan de l’ozone à l’échelle globale

La charge globale d’O<sub>3</sub> troposphérique calculée récemment à partir des modèles du projet ACCMIP (Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project) pour des conditions actuelles (année 2000), est estimée à  $337 \pm 23$  Tg (Young et al., 2013). Cette estimation est cohérente avec celles déduites des observations satellites (Tableau en figure 1.2). Cette même étude évalue le flux net d’O<sub>3</sub> depuis la stratosphère vers la troposphère à  $477 \pm 96$  Tg/an (ce qui représente environ 10% des sources dans le bilan de l’O<sub>3</sub>). Ce transport est principalement dû à des processus de déformation de la tropopause qui ont pour origine la formation de zones frontales en altitude (Danielsen, 1968). Cette source d’O<sub>3</sub> indispensable pour initier la chimie de l’O<sub>3</sub> dans la troposphère est abordée dans la section 1.3. Le dépôt sec est le puits d’O<sub>3</sub> dominant à la surface des continents et principalement sur les surfaces végétales (Fowler et al., 2001). Les forêts tropicales, en particulier, absorbent plus d’O<sub>3</sub> que n’importe quelle autre surface (Matsuda et al., 2006; Wesely and Hicks, 2000) alors que la vitesse de dépôt sur l’océan est elle, quasi nulle (Wesely and Hicks, 2000). L’estimation par les modèles ACCMIP de ce puits est de  $1094 \pm 264$  Tg/an soit environ 20% des puits dans le bilan de l’O<sub>3</sub>. L’estimation des sources et puits chimiques est plus incertaine et représente 90 et 80% des termes sources et puits totaux de l’O<sub>3</sub> d’après ACCMIP. A l’échelle globale, la production chimique nette (production moins perte) de l’O<sub>3</sub> est estimée à  $618 \pm 275$  Tg/an. La valeur de la production chimique nette peut cependant varier très fortement entre les continents et les océans, ou entre les hémisphères sud et nord. Les valeurs très importantes des termes de production et perte chimique traduisent la forte sensibilité de l’O<sub>3</sub> aux variations des émissions notamment anthropiques. Les termes de production et de consommation chimiques sont du même ordre de grandeur, ce qui reflète l’état stationnaire de

l’O<sub>3</sub> dans la troposphère.

Burden	Production	Loss	Deposition	STE	Reference
Tg	Tg yr <sup>-1</sup>	Tg yr <sup>-1</sup>	Tg yr <sup>-1</sup>	Tg yr <sup>-1</sup>	
<b>Modelling Studies</b>					
337 ± 23	4877 ± 853	4260 ± 645	1094 ± 264	477 ± 96	Young et al. (2013); ACCMIP
323	N/A	N/A	N/A	N/A	Archibald et al. (2011)
330	4876	4520	916	560	Kawase et al. (2011)
312	4289	3881	829	421	Huijnen et al. (2010)
334	3826	3373	1286	662	Zeng et al. (2010)
324	4870	4570	801	502	Wild and Palmer (2008)
314	N/A	N/A	1035	452	Zeng et al. (2008)
319	4487	3999	N/A	500	Wu et al. (2007)
372	5042	4507	884	345	Horowitz (2006)
349	4384	3972	808	401	Liao et al. (2006)
344 ± 39	5110 ± 606	4668 ± 727	1003 ± 200	552 ± 168	Stevenson et al. (2006); ACCENT
314 ± 33	4465 ± 514	4114 ± 409	949 ± 222	529 ± 105	Wild (2007) (post-2000 studies)
N/A	N/A	N/A	N/A	515	Hsu and Prather (2009)
N/A	N/A	N/A	N/A	655	Hegglin and Shepherd (2009)
N/A	N/A	N/A	N/A	383–451	Clark et al. (2007)
<b>Observational Studies</b>					
333	N/A	N/A	N/A	N/A	Fortuin and Kelder (1998)
327	N/A	N/A	N/A	N/A	Logan (1999)
325	N/A	N/A	N/A	N/A	Ziemke et al. (2011); 60S–60N
319–351	N/A	N/A	N/A	N/A	Osterman et al. (2008); 60S–60N
N/A	N/A	N/A	N/A	449 (192–872)	Murphy and Fahey (1994)
N/A	N/A	N/A	N/A	510 (450–590)	Gettelman et al. (1997)
N/A	N/A	N/A	N/A	500 ± 140	Olsen et al. (2001)

FIGURE 1.2 – Tableau du rapport de IPCC 2013 regroupant les estimations des termes du budget global de l’O<sub>3</sub> troposphérique calculées par les modèles et celles obtenues à partir d’observations, pour les conditions actuelles (2000).

## 1.2 Sources et puits chimiques de l’ozone

### 1.2.1 Le système chimique O<sub>3</sub>/COV/NO<sub>x</sub>

Les sources et puits chimiques de l’O<sub>3</sub> font intervenir trois familles de composés chimiques : NO<sub>x</sub>, COV et HO<sub>x</sub>.

- Les oxydes d’azote NO<sub>x</sub> : Cette famille regroupe le monoxyde de carbone (NO) et le dioxyde d’azote (NO<sub>2</sub>). Ces composés sont produits lors de processus à très haute température (combustion, éclairs, ...) ou par l’activité biologique des sols. Leur rapport de mélange varie entre quelques dizaines de pptv (1pptv = 10<sup>-12</sup> mole.mole<sup>-1</sup> d’air) en milieu éloigné des sources jusqu’à une centaine de ppbv en milieu urbain ou près d’une source de combustion de biomasse. Au travers du cycle catalytique, ils contribuent à la production nette d’O<sub>3</sub> (Cycle vert sur la figure 1.3). Les NO<sub>x</sub> sont éliminés de la troposphère par

oxydation en acide nitrique ( $\text{HNO}_3$  – Flèche violette sur la figure 1.3), lui-même éliminé par dépôts sec ou humide. Le temps de vie des  $\text{NO}_x$  est typiquement de l’ordre de la journée, voire moins.

- Les composés organiques volatils COV : Les COV sont des gaz organiques contenant du carbone à l’exception du monoxyde de carbone ( $\text{CO}$ ) et du dioxyde de carbone ( $\text{CO}_2$ ), et ayant une pression saturante suffisamment élevée pour être volatilisés dans l’air. Leurs sources primaires sont multiples, anthropiques ou naturelles. Les COV participent à la formation des radicaux peroxydes (Flèches bleues sur la figure 1.3) au cours des chaînes de réactions d’oxydation qui conduisent à la production de  $\text{CO}$ ,  $\text{CO}_2$  et  $\text{H}_2\text{O}$ . Les chaînes d’oxydation des COV produisent de nombreux composés intermédiaires qui sont autant de sources secondaires. Dans les équations qui suivent, RH pour hydrocarbure, est un terme générique pour désigner les composés organiques volatils, R représentant une chaîne carbonée.
- Les radicaux HOx : La famille HOx regroupe les radicaux OH,  $\text{HO}_2$  et l’ensemble des radicaux peroxydes organiques ( $\text{RO}_2$ ). Les HOx définissent la capacité oxydante de l’atmosphère. Ils sont très réactifs avec un temps de vie de l’ordre de la seconde. Les sources de HOx sont principalement photochimiques (photolyse).  $\text{HO}_2$  et  $\text{RO}_2$  participent à la conversion de  $\text{NO}$  en  $\text{NO}_2$  (Cycle rouge sur la figure 1.3) et donc à la production d’ $\text{O}_3$  (voir ci-dessous).

L’ozone est produit naturellement dans l’atmosphère selon le schéma réactionnel formulé par Chapman (1930). Ce cycle est initié par la photolyse des molécules d’oxygène sous l’action des UV de longueurs d’onde  $\lambda < 290 \text{ nm}$  (R.1). Les atomes d’oxygène produits réagissent rapidement avec le dioxygène en présence d’une tierce molécule stable, notée M, pour former une molécule d’ $\text{O}_3$  (R.2). La molécule M représente du diazote ( $\text{N}_2$ ) ou du dioxygène ( $\text{O}_2$ ) ou toute autre molécule capable d’absorber l’excès d’énergie vibrationnelle et stabiliser la molécule d’ $\text{O}_3$  qui vient d’être formée.



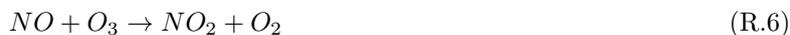
Les deux principales réactions de destruction de l’ $\text{O}_3$  sont la photolyse (R.3) et la réaction avec un atome d’oxygène pour former du dioxygène (R.4). Le dioxygène conduit rapidement à la

formation d’O<sub>3</sub> car la réaction (R.2) est très rapide.



Cependant le cycle de Chapman n’est pas dominant dans la troposphère à cause du faible rayonnement UV de  $\lambda < 290$  nm qui atteint cette couche atmosphérique (UV absorbés par O<sub>2</sub> et O<sub>3</sub> dans la stratosphère), rayonnement nécessaire à la photodissociation de l’O<sub>2</sub> en molécules d’oxygène (R.1). Dans la troposphère, un mécanisme similaire existe : la photodissociation du NO<sub>2</sub> dans le visible est la source de l’atome d’oxygène. Bien qu’ils soient présents à des niveaux de concentration de seulement quelques dizaines de pptv, les NO<sub>x</sub> jouent donc un rôle central dans le processus de formation de l’O<sub>3</sub> dans la troposphère.

La photolyse du NO<sub>2</sub> a lieu à des  $\lambda < 420$  nm et produit du monoxyde d’azote ainsi qu’un atome d’oxygène (R.5) qui va se recombier avec O<sub>2</sub> pour former de l’O<sub>3</sub> (R.2). La photolyse du NO<sub>2</sub> participe aussi à la destruction de l’O<sub>3</sub>, car le NO produit lors de la réaction R.5 va réagir avec O<sub>3</sub> pour reformer du NO<sub>2</sub> (R.6), c’est le cycle de Leighton.

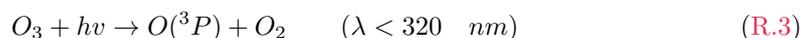


Les réactions R.5, R.2 et R.6 se produisent rapidement, conduisant à un cycle bilan nul. Cependant cet équilibre est perturbé la nuit lorsque la photolyse du NO<sub>2</sub> n’alimente plus le cycle de Leighton en oxygène. La réaction (R.7) dont la vitesse de réaction est bien plus faible que les autres, domine alors la destruction du NO<sub>2</sub> et consomme l’oxygène pour produire du NO, qui va réagir avec l’O<sub>3</sub> (R.6). Cela engendre alors une destruction nette d’O<sub>3</sub>.

Une autre voie réactionnelle fait intervenir des radicaux comme les peroxydes RO<sub>2</sub> et HO<sub>2</sub>, très réactifs et issus de l’oxydation des COV par le radical OH. Ils permettent la reconversion de NO en NO<sub>2</sub> sans consommer d’O<sub>3</sub> (R.13 et R.17).

La formation du radical OH commence lors de la photolyse de l’O<sub>3</sub>, où un atome d’oxygène peut être formé dans son état fondamental noté : O(<sup>3</sup>P) ou dans un état excité noté O(<sup>1</sup>D) (Flèche orange sur la figure 1.3). Dans son état fondamental, l’oxygène se recombine rapidement avec O<sub>2</sub> par la réaction (R.2) pour former de l’O<sub>3</sub>. Ce qui n’a pas d’impact sur le bilan du cycle.

Cependant quand  $O(^1D)$  est produit, le passage simple entre l’état excité et stable est impossible, il doit réagir avec d’autres espèces. Le plus souvent  $O(^1D)$  rentre en collision avec  $N_2$  ou  $O_2$  pour éliminer l’excès d’énergie et rétablir l’atome d’oxygène dans son état fondamental.



Ainsi l’atome d’oxygène excité peut réagir avec du  $O_2$  pour reconstituer de l’ $O_3$ , cette voie correspond aux réactions [R.9](#) et [R.2](#) c’est un autre cycle nul. Mais occasionnellement,  $O(^1D)$  entre en collision avec  $H_2O$  pour produire 2 radicaux hydroxyles OH ([R.10](#)) (Flèche orange sur la figure [1.3](#)).



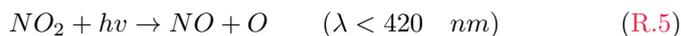
Puisque d’une part les molécules de  $H_2O$  sont présentes dans la basse troposphère avec des rapports de mélange d’environ  $10^4$  ppmv et d’autre part que la réaction [R.10](#) possède une constante de vitesse 10 fois supérieure à celle de la réaction [R.9](#) (avec  $M = N_2$  ou  $O_2$ ), il y a environ 10% du  $O(^1D)$  produit qui réagit avec  $H_2O$  pour générer des radicaux OH. Alors 2 molécules de OH sont créées avec l’équation [R.10](#), ce qui conduit à un rendement d’environ 0,2 molécule de OH par molécule d’ $O_3$  photolysée. Ainsi l’ $O_3$  joue aussi un rôle important pour la formation du radical OH qui est le principal oxydant de la troposphère.

Le radical OH formé par la réaction [R.10](#) oxyde les composés organiques, le CO ou le méthane. Le cas le plus simple est celui du CO produit en particulier par toute combustion incomplète. La production d’ $O_3$  à partir de CO est illustrée par la chaîne de réaction [R.11](#) à [R.14](#). L’atome d’hydrogène H résultant de la réaction d’oxydation du CO par OH ([R.11](#)) se recombine rapidement avec du  $O_2$  pour former le radical  $HO_2$  ([R.12](#)). Ce radical  $HO_2$  va réagir avec du NO issu de la photolyse du  $NO_2$  ([R.5](#)) et reformer du  $NO_2$  et du OH ([R.13](#)).





Le radical RO produit va réagir avec  $O_2$  pour former des composés carbonylés  $R'CHO$  (R.18) (Cycle bleu sur la figure 1.3), qui peuvent alors réagir avec OH pour produire de l’ $O_3$  ou être photolysés pour créer des radicaux HOx.



Il y a ainsi formation de 2 molécules d’ $O_3$  par molécule d’hydrocarbure dégradée (R.19), tandis qu’une seule molécule d’ $O_3$  est formée pour une molécule de CO oxydée.

Finalement, les molécules d’ $O_3$  peuvent être détruites par photolyse (R.3), suivi de la production de radical OH en présence de vapeur d’eau (R.8 et R.10) ou par réaction de recombinaison entre OH et  $HO_2$  (R.20 et R.21).



Au premier ordre, à l’échelle globale, en négligeant les réactions de recombinaison rapides, le taux de production net d’ $O_3$  est donné par l’équation suivant :

$$\begin{aligned} d[O_3]/dt = & \{k_{HO_2+NO}[HO_2] + k_{RO_2+NO}[RO_2]\}[NO] \quad (\text{R.22}) \\ & - \{J_{O_3}f[H_2O] + k_{OH+O_3}[OH] + k_{HO_2+O_3}[HO_2]\}O_3 - L(NOy) \end{aligned}$$

où  $[OH]$  est la concentration de OH,  $k_{X+Y}$  est le coefficient de vitesse pour la réaction  $X+Y \rightarrow$  produit et  $f$  représente la fraction de l’oxygène atomique  $O(^1D)$  qui réagit avec  $H_2O$ ,  $L(NOy)$

désigne le dépôt sec et humide des oxydes d’azote réactifs (Brasseur et al., 1999).

### 1.2.2 Les régimes chimiques de l’ozone

Le paragraphe précédent montre la dépendance non linéaire de la production photochimique de l’O<sub>3</sub> par rapport aux NO<sub>x</sub> et aux COV. Cette relation complexe de l’O<sub>3</sub> et de ses précurseurs se traduit par la définition de régimes chimiques. Un régime chimique sensible aux NO<sub>x</sub> (ou limité en NO<sub>x</sub>) est un régime dans lequel la réduction de contenu en NO<sub>x</sub> diminue davantage la production d’O<sub>3</sub> que celle des COV. La transition entre un régime limité et un régime saturé en NO<sub>x</sub> est de l’ordre de quelques ppbv de NO<sub>x</sub>. La vitesse de production de l’O<sub>3</sub> ne dépend pas seulement des concentrations des précurseurs mais aussi de leur abondance relative. Ces régimes sont traditionnellement illustrés par un diagramme isopleth comme celui de la figure 1.4. Ces diagrammes souvent utilisés pour l’étude de la pollution photochimique en milieu urbain illustrent les régimes chimiques pour des concentrations de NO<sub>x</sub> déjà élevées (de l’ordre du ppbv). La figure 1.5 (b) illustre l’évolution de la vitesse de production de l’O<sub>3</sub> en fonction du contenu en NO<sub>x</sub> y compris pour des masses d’air très pauvres en NO<sub>x</sub>. L’analyse de cette figure montre les deux régimes définis ci-dessus avec une vitesse de production croissante de l’O<sub>3</sub> jusqu’à des rapports de mélange en NO<sub>x</sub> de quelques ppbv dans la couche limite puis une décroissance pour des contenus plus élevés. Le seuil de transition qui sépare les régimes chimiques dépend de la concentration en COV (Figure 1.4). Plus la quantité de COV est grande, plus le seuil de NO<sub>x</sub> est élevé. Dans la haute troposphère la transition entre les deux régimes se fait pour des valeurs de NO<sub>x</sub> de quelques centaines de pptv.

Dans les régions de faibles concentrations de NO<sub>x</sub>, pour qu’il y ait production nette d’O<sub>3</sub> il faut que les réactions R.13 (HO<sub>2</sub>+NO) et R.17 (RO<sub>2</sub>+NO) dominent les réactions de recombinaison des radicaux peroxy (telle que RO<sub>2</sub> + HO<sub>2</sub> ou HO<sub>2</sub> + HO<sub>2</sub> (R.24)). Or pour des valeurs faibles de NO, ces réactions sont en compétition. Dans les régions peu polluées, il est à noter d’une part que les radicaux HO<sub>2</sub> dominent les RO<sub>2</sub> et que d’autre part HO<sub>2</sub> domine largement OH dans les basses couches troposphériques avec des rapports HO<sub>2</sub>/OH de 10 à 100. Pour ce régime, il est possible de démontrer que la production d’O<sub>3</sub> dépend quasi-linéairement du contenu en NO. Ce type de régime chimique se rencontre dans la basse troposphère continentale.

Pour des concentrations de NO<sub>x</sub> en-dessous d’un seuil critique (quelques dizaines de pptv), les processus de destruction de l’O<sub>3</sub> comme la photolyse ( $\lambda < 320$  nm) qui produisent OH (R.3 et R.10) ou la destruction d’O<sub>3</sub> par conversion des HO<sub>x</sub> (R.20 et R.21) dominent les processus de production. L’O<sub>3</sub> n’est plus régénéré par le mécanisme réactionnel : le régime chimique résulte

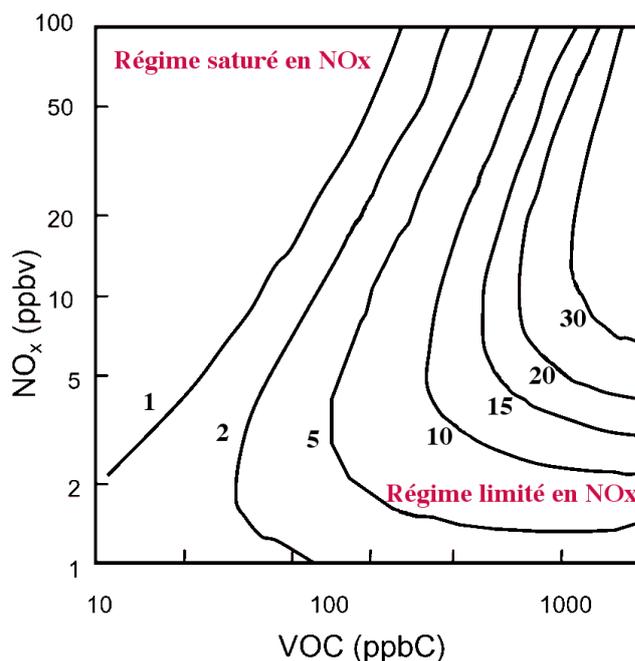


FIGURE 1.4 – Isoplèthes donnant le taux net de la production d’O<sub>3</sub> (ppb/h) en fonction des quantités de COV (ppbC) et de NO<sub>x</sub> (ppbv) pour la moyenne estivale journalière et ciel clair dans des conditions urbaines. – Monks (2005).

en une destruction nette d’O<sub>3</sub>. Ce régime se trouve majoritairement dans la couche limite marine humide des régions tropicales et des latitudes moyennes, conduisant à des concentrations d’O<sub>3</sub> très faibles (Solomon et al., 2005).

Pour un contenu en NO<sub>x</sub> supérieur à quelques ppbv, l’évolution des radicaux peroxytes est dominée par la réaction avec NO. Les radicaux OH initialement consommés par la réaction avec les COV (R.15) (RH + OH) sont régénérés. Dans ce type de régime la production d’O<sub>3</sub> est très dépendante du rapport COV/NO<sub>x</sub> (plus ce rapport est grand, plus la vitesse de formation de l’O<sub>3</sub> augmente) et de la spéciation des COV (la vitesse de formation augmente lorsque la réactivité des COV augmente) (Camredon and Aumont, 2007). Lorsque les concentrations de NO<sub>x</sub> augmentent, les concentrations de HO<sub>x</sub> tendent de plus en plus vers celles des OH et la destruction de HO<sub>x</sub> a principalement lieu par la réaction de terminaison qui consomme une molécule de OH et une molécule de NO<sub>2</sub> pour former une molécule de HNO<sub>3</sub> (acide nitrique, R.25). La destruction de HO<sub>x</sub> intervient également par des réactions de terminaison impliquant seulement des radicaux HO<sub>x</sub> pour produire de l’eau ou du peroxyde d’hydrogène (H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>) (R.23 et R.24).

Les molécules de HNO<sub>3</sub> sont (lentement) photolysées pour produire localement des NO<sub>x</sub>. De même que H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub> est un gaz hydrosoluble qui est rapidement éliminé de la colonne atmo-

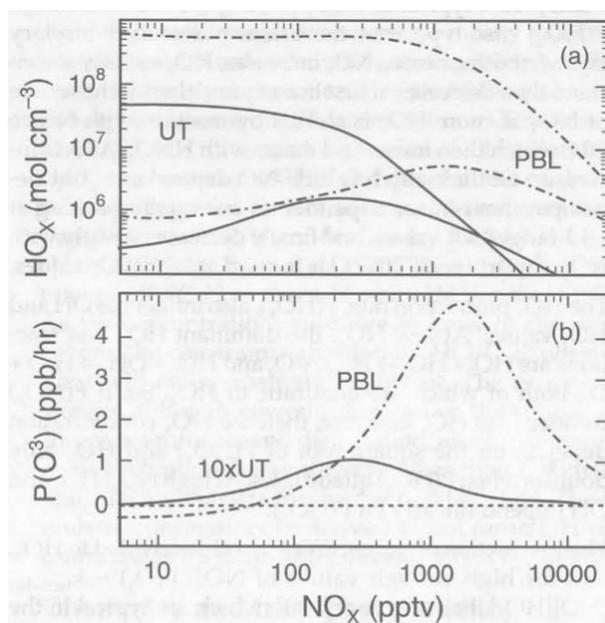
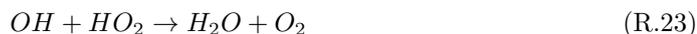


FIGURE 1.5 – La partie (a) représente les concentrations de HOx et la partie (b) le taux de production d’O<sub>3</sub> en fonction des concentrations de NOx. Les lignes continues correspondent aux conditions de la haute troposphère et les lignes pointillées à celles de la couche limite (PBL). Sur la figure (a), les lignes les plus hautes correspondent au HO<sub>2</sub> et les plus basses au OH. Sur la figure (b) P(O<sub>3</sub>) dans la haute troposphère est multiplié par 10. – Brune IGAC issue n°21 2000.

sphérique par lessivage après dissolution dans les gouttelettes nuageuses ou par dépôt sec. Dans la basse troposphère, HNO<sub>3</sub> est donc un puits de NOx (et aussi de HOx) et H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> un puits de HOx.



Dans ce régime, saturé en NOx (ou limité en COV), les molécules de NO<sub>2</sub> entrent en compétition avec les COV pour réagir avec OH. Une réduction des concentrations de COV provoque alors une réduction des quantités de radicaux HO<sub>2</sub> et RO<sub>2</sub> et donc, une réduction de la production d’O<sub>3</sub> par désactivation de la recombinaison RO<sub>2</sub>–HO<sub>2</sub>–OH (**Cycle rouge** sur la figure 1.3). Le taux de production de l’O<sub>3</sub> est donc limité par les réactions impliquant OH qui dépend surtout des concentrations de COV et moins des concentrations de NOx. Lorsque la quantité de NOx devient très élevée, la réaction R.7 n’est plus négligeable et l’O<sub>3</sub> est détruit par titration par

NO. Les concentrations d’O<sub>3</sub> diminuent pour une augmentation des concentrations de NO<sub>x</sub> à concentration de COV constante.

### 1.2.3 La chimie de l’ozone dans la haute troposphère tropicale

Les régions tropicales combinent, près de la surface, des conditions favorables à la formation de l’O<sub>3</sub> troposphérique. Elles sont en effet caractérisées par un fort ensoleillement qui favorise la photochimie et par un taux d’humidité important qui favorise la formation de radicaux OH, principal acteur de l’oxydation des précurseurs d’O<sub>3</sub> (Section 1.2.1). Dans la haute troposphère tropicale, le radical hydroxyle OH qui détermine la capacité oxydante de la haute troposphère est également produit à partir de O<sub>3</sub> et H<sub>2</sub>O (R.3 – R.10; Kley et al. 1996). Or à ces altitudes, les températures basses limitent les concentrations en vapeur d’eau et donc la production de OH. La haute troposphère devrait donc être moins active photo-chimiquement que la basse troposphère.

Cette assertion a été démentie dès les premières mesures de OH dans la haute troposphère, qui révèlent que la seule considération de la production à partir O<sub>3</sub> et H<sub>2</sub>O est insuffisante pour reproduire les valeurs observées. D’autres précurseurs existent. Le rôle de l’oxydation de l’acétone est établi par plusieurs études (Arnold et al., 1997; Wennberg et al., 1998; Müller and Brasseur, 1999; Folkins et al., 2000; Neumaier et al., 2014). Pourtant cette source additionnelle ne suffit toujours pas à expliquer les concentrations observées. En 1997, Prather and Jacob démontrent que la chimie de la haute troposphère est régulièrement perturbée par la convection nuageuse, source de peroxydes (notamment H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>, CH<sub>2</sub>O et CH<sub>3</sub>OOH). A partir de mesures avion et de modélisation, l’importance de la photolyse de ces composés pour la production de HO<sub>x</sub> dans la haute troposphère est confirmée (Wennberg et al., 1998; Jaegle et al., 2001; Mari et al., 2003).

Au-dessus des régions océaniques, la ventilation de la surface par la convection se traduit par l’apport de masses d’air pauvres en O<sub>3</sub> dans la haute troposphère. Les faibles concentrations en O<sub>3</sub> et vapeur d’eau devraient donc conduire à de faibles concentrations de OH. Cette assertion n’est pourtant pas toujours vérifiée. Des études de modélisation ont plutôt montré que les concentrations de OH dans la haute troposphère océanique étaient en réalité peu dépendantes de O<sub>3</sub> et H<sub>2</sub>O (Crawford et al., 1999). Les auteurs démontrent le rôle de la production de HO<sub>x</sub> par l’oxydation du méthane pour expliquer cette faible dépendance.

Dans une étude récente, Gao et al. (2014) confirment le rôle critique de NO dans le contrôle des concentrations de OH dans la haute troposphère. Les concentrations de NO<sub>x</sub> dans la haute troposphère, dont les ordres de grandeur sont plus faibles que dans la couche limite polluée, varient de quelques pptv dans les zones peu impactées par la convection à 1–2 ppbv dans les panaches convectifs (Schumann and Huntrieser, 2007). La durée de vie des NO<sub>x</sub> dans la haute

troposphère (4–7 jours) est beaucoup plus élevée que dans la couche limite (<1 jour) (Brasseur et al., 1999) du fait d’une plus faible abondance de OH et d’un rapport NO/NO<sub>2</sub> plus élevé (en raison de la forte dépendance en température de la réaction de titration de O<sub>3</sub> par NO (R.7)). La production d’O<sub>3</sub> dans la haute troposphère est généralement limitée en NO<sub>x</sub> (cf figure 1.5 (b)) et donc plus efficace que pour une région où le régime est saturé en NO<sub>x</sub>. Le potentiel de production d’O<sub>3</sub> par molécule de NO<sub>x</sub> est plus élevé dans la haute troposphère que dans la couche limite comme cela a été montré avec des simulations d’un modèle de chimie de transport pour la zone Atlantique dans Sauvage et al. (2007b) (voir également Section 2.3.1). Les NO<sub>x</sub> dans la haute troposphère proviennent du transport convectif rapide de NO<sub>x</sub> émis en surface (voir Section 2.2.5) et/ou de la production de NO<sub>x</sub> par les éclairs dans le nuage (voir Section 1.4.3). La part respective de ces deux sources est difficile à distinguer. Martin et al. (2007) et Schumann and Huntrieser (2007) concluent que les deux processus contribuent autant aux concentrations de NO<sub>x</sub> observés dans les zones de déentraînement des nuages. Pour Jaeglé et al. (1998) le transport convectif de polluants émis en surface est prédominant. Bozem et al. (2014) attribuent les pics d’O<sub>3</sub> mesurés près des systèmes convectifs à la production directe d’O<sub>3</sub> par les décharges à effet corona (décharge électrique partielle entraînée par l’ionisation du milieu) associées aux éclairs. Dans des conditions de très faibles concentrations de NO, O<sub>3</sub> et plus généralement de NO<sub>y</sub> (représentant toutes les espèces azotées issues de l’oxydation de NO), les concentrations en OH sont réduites sensiblement : c’est le cas lors d’épisodes de convection nuageuse océanique. Cette configuration océanique est donc peu favorable à la production *in-situ* de OH, et donc à celle de l’O<sub>3</sub>. Elle s’accompagne de plus d’un transport de masse d’air pauvre en O<sub>3</sub> (Cooper et al., 2013). Pour de plus fortes concentrations de NO<sub>x</sub>, le transfert de HO<sub>2</sub> vers OH est privilégié (Figure 1.5 (a)). OH réagit avec NO<sub>2</sub> pour former HNO<sub>3</sub> qui est éliminé principalement par lessivage du fait de sa grande solubilité ou plus lentement, soit par photolyse, soit par oxydation avec OH. Ce passage de NO<sub>x</sub> vers HNO<sub>3</sub> est un puits pour les HO<sub>x</sub> qui contribue à réduire l’efficacité de production de l’O<sub>3</sub>.

## 1.3 Les échanges stratosphère–troposphère

L'étude de [Young et al. \(2013\)](#) montre que la contribution des échanges entre la stratosphère et la troposphère prend part à hauteur de  $477 \pm 96$  Tg/an dans le bilan de l'O<sub>3</sub> troposphérique. Les échanges stratosphère–troposphère désignent le transport d'air, de composés chimiques et d'énergie au travers de la tropopause ([Holton et al., 1995](#)). La tropopause se définit comme une couche d'air marquant une discontinuité du gradient thermique, signant la transition entre la troposphère et la stratosphère. L'altitude de la tropopause varie avec la latitude et est modulée par les circulations synoptiques et méso-échelle. Dans les régions subtropicales, la tropopause montre une région de transition abrupte avec un “décrochage” associé aux jets subtropicaux. Dans les régions tropicales, la tropopause se trouve très proche de l'isentrope 380K (voir figure 1.6). Aux latitudes moyennes, la variable conservative lors de transport isentropique utilisée pour caractériser la tropopause est le tourbillon potentiel (PV, *potential vorticity*) ([Hoskins et al., 1985](#)). La tropopause extra-tropicale se confond avec la surface du tourbillon potentiel égale à  $\pm 2$  PVU (où  $1 \text{ PVU} = 106 \text{ K.m}^2.\text{kg}^{-1}.\text{s}^{-1}$ ) ([Reed, 1955](#)).

A l'échelle globale, ces échanges font partie de la circulation générale de Brewer–Dobson (transport vers la stratosphère dans les régions tropicales, méridien vers les pôles, puis vers la surface dans les régions polaires – voir Chapitre 2). Les principaux processus de transport de matière entre la troposphère et la stratosphère sont les ondes de gravité et les ondes de Rossby (voir Chapitre 2). Les ondes de gravité se traduisent par l'ondulation verticale des surfaces isentropiques, à l'échelle horizontale de quelques dizaines à quelques centaines de kilomètres, avec une période variant de quelques minutes à quelques heures. La turbulence engendrée par le déferlement des ondes de gravité induit un mélange tri-dimensionnel des constituants atmosphériques ([Lamarque et al., 1996](#)). A l'opposé, les ondes de Rossby se manifestent par l'oscillation de masses d'air à l'échelle planétaire, le long d'une surface isentropique ([Haynes et al., 1991](#)). En déferlant le long de ces surfaces isentropes, elles provoquent un mélange turbulent bi-dimensionnel, favorable aux échanges. Cette perturbation peut parfois aller jusqu'à une rupture de ce déferlement laissant s'échapper “une goutte froide” ([Baray et al., 2003](#)).

Cette vision globale est complétée par les processus qui ont lieu aux échelles synoptiques ou locales. Aux latitudes moyennes ou subtropicales, les échanges stratosphère–troposphère sont stimulés par le mélange local turbulent associé aux cyclones ou aux fronts froids.

Les intrusions isentropiques d'air stratosphérique dans la troposphère sont favorisées lors des épisodes de foliation de tropopause. Les foliations de tropopause naissent dans sa zone de transition ([Gettelman et al., 2002](#)) lors du développement d'une dépression ([Price and Vaughan,](#)

1993) ou du passage d'un front froid. Les foliations laissent pénétrer dans la troposphère tropicale une langue d'environ 1000 km d'air stratosphérique. Les travaux de Reed (1955) ont montré que les foliations de tropopause sont aussi une signature des intrusions d'air sec (DA, *dry airstream*) associées aux cyclones extratropicaux. Ces intrusions d'air sec descendent de la haute troposphère–basse stratosphère sur les surfaces isentropiques vers la moyenne et basse troposphère, à l'ouest du front froid, à l'arrière du courant chaud (WCB, *warm conveyor belt*) (Cooper et al., 2001; Stohl et al., 2003; Brioude et al., 2006). Le caractère irréversible du transport de l'air stratosphérique vers la troposphère par les foliations de tropopause est démontré par Danielsen (1968).

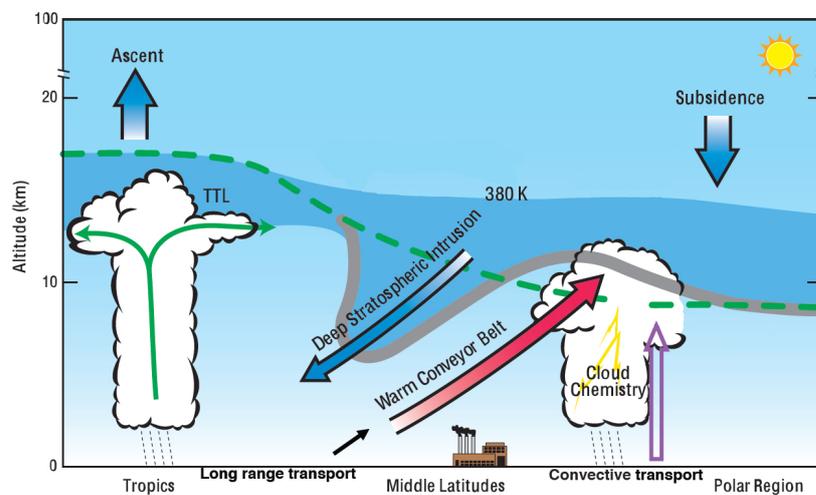


FIGURE 1.6 – Représentation schématique des processus contrôlant les échanges entre la stratosphère et la troposphère. – NCAR, [acd.ucar.edu](http://acd.ucar.edu)

Dans les régions tropicales, les nuages convectifs pénètrent les surfaces isentropes et assurent un transport vertical rapide des polluants émis en surface vers la haute troposphère. La tropopause atteint entre 16 et 18 km d'altitude à ces latitudes. Episodiquement, la convection nuageuse peut atteindre l'altitude du point froid de la tropopause, permettant l'injection directe dans la stratosphère d'air troposphérique (Danielsen, 1993; Ricaud et al., 2007; Leclair De Bellevue et al., 2007; Das, 2009). Cependant, Folkins et al. (2000) montrent quant à eux, que le débit maximal d'un tel type de soulèvement convectif dans les tropiques ne se produit que jusqu'à  $\sim 12\text{--}14$  km, alors que le point tropopause froid se situe près de 16–18 km aux tropiques (Fueglistaler et al., 2009). Pour ces auteurs, le transport privilégié vers la stratosphère est une ascension lente à grande échelle produit par l'échauffement radiatif de l'air depuis le niveau du sommet des enclumes convectives. L'importance de l'un ou l'autre de ces mécanismes est un débat ouvert.

La contribution des échanges stratosphère–troposphère sur le bilan de l'O<sub>3</sub> troposphérique varie en fonction de la saison ou de l'hémisphère. A partir des données de tourbillon potentiel des réanalyses NCEP/NCAR, [Waugh and Polvani \(2000\)](#) ont établi une climatologie des évènements d'intrusion stratosphérique dans la haute troposphère tropicale en montrant un maximum d'occurrence en hiver et au printemps boréal, lorsque l'altitude de la tropopause augmente. Une climatologie plus étendue (1981–2010) de [Homeyer and Bowman \(2012\)](#) utilisant les données de réanalyses d'ECMWF, montrent que les régions subtropicales de l'hémisphère sud subissent aussi des échanges entre la stratosphère et la troposphère notamment dans l'Océan Indien.

En s'appuyant sur des observations d'O<sub>3</sub> au Népal et des calculs de rétro–trajectoires, [Cristofanelli et al. \(2010\)](#) ont déterminé le cycle annuel des intrusions stratosphériques. Les auteurs indiquent un maximum d'occurrence lors de la saison de pré–mousson et un minimum lors de la mousson d'été. Ce résultat est confirmé par [Fadnavis et al. \(2010\)](#) avec des observations satellite au–dessus de l'Inde. La position du jet subtropical situé dans cette région au nord du plateau tibétain en été et au–dessus de l'Himalaya en hiver, est déterminante pour caractériser la fréquence et la variation saisonnière de ces intrusions. L'analyse de radiosondages sur le plateau tibétain par [Chen et al. \(2012\)](#) révèle une tropopause multiple pendant l'hiver associée à des foliations de tropopause près du jet subtropical. Ces intrusions peuvent contribuer à l'augmentation de l'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère en hiver au–dessus du plateau.

## 1.4 Sources primaires des précurseurs de l’ozone

Les régions tropicales sont caractérisées par de fortes émissions de précurseurs, par les feux de forêts saisonniers et par les activités anthropiques. Les régions du Sud et Sud-Est asiatiques sont caractérisées par une très forte croissance économique et démographique depuis plusieurs décennies, qui a engendré une explosion des émissions liées à l’industrie, aux transports et aux activités domestiques (Section 1.4.1). L’activité convective de ces régions favorise également l’émission de NO<sub>x</sub> par les éclairs, qui sont directement générés dans la haute troposphère.

### 1.4.1 Les émissions anthropiques

Les émissions de précurseurs d’O<sub>3</sub> nommées anthropiques proviennent des pratiques humaines quotidiennes, comme l’activité industrielle, la production d’énergie, les différents moyens de transport (routier, train, maritime, avion) et les usages liés aux foyers. Ces émissions sont dues à la combustion d’énergie fossile (charbon, pétrole, gaz naturel...) utilisée par ces activités humaines, un procédé qui produit d’importantes quantités et variées de gaz traces et de particules comme le CO<sub>2</sub>, les NO<sub>x</sub>, le CO, le SO<sub>2</sub>, les COV. L’abondance et la nature des émissions de chacun de ces gaz dépendent du combustible utilisé et de la technique de combustion employée. C’est pourquoi les émissions anthropiques dépendent beaucoup du pays considéré selon son niveau de développement, ses pratiques et ses ressources énergétiques.

Les sources anthropiques sont situées majoritairement dans l’hémisphère nord (Dignon, 1992), dans les régions urbaines des pays développés et des pays en voie de développement. Les tendances de ces sources ont changé considérablement ces dernières années dans différentes régions du monde en raison de divers facteurs économiques et politiques (par exemple Granier et al. 2011, Stavrakou et al. 2008, IPCC 2013). Les quatre principales régions qui émettent le plus de précurseurs d’O<sub>3</sub> anthropiques sont l’Amérique du Nord, l’Europe, la Chine et l’Inde. La figure 1.7 présente la distribution de NO<sub>x</sub> anthropiques provenant de l’inventaire MACCity. Les émissions de NO<sub>x</sub> ont augmenté dramatiquement aux cours des dernières décennies. van Aardenne et al. (2001) estiment cette augmentation à un facteur 5 entre 1890–1990.

Néanmoins, une réduction des émissions de NO<sub>x</sub> après 1990 a été rapportée pour certaines régions comme en Europe avec une baisse de 30% entre 1990 et 2000 (Richter et al., 2005). Cette diminution est associée à la politique mise en place pour la régulation dans le secteur du transport et de l’industrie. A l’inverse, l’Asie présente une hausse importante des émissions de NO<sub>x</sub> (Zhang et al., 2007, 2009) notamment en Chine et en Inde qui connaissent une forte croissance économique et une explosion démographique. En Asie, les NO<sub>x</sub> proviennent en moyenne à 34% du transport,

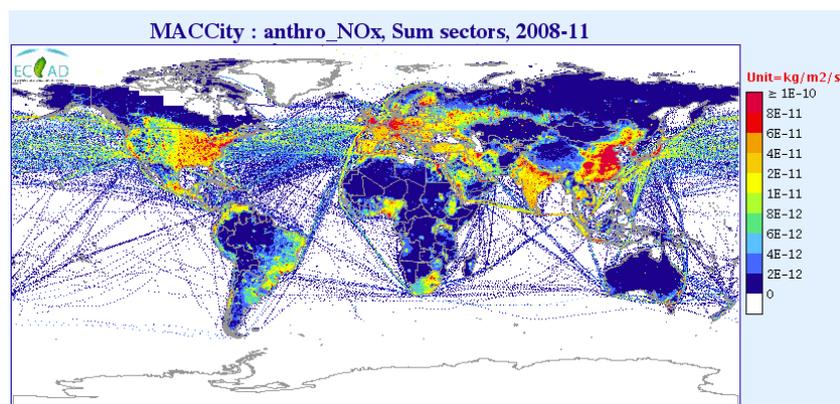


FIGURE 1.7 – Emissions anthropiques de NO<sub>x</sub> en kg.m<sup>-2</sup>.s<sup>-1</sup> d’après l’inventaire MACCity pour le mois de Novembre 2008. – [ECCAD.sedoo.fr](http://ECCAD.sedoo.fr)

22% de la production d’énergie et 14% du secteur industriel (Ohara et al., 2007). Toutefois ces valeurs varient beaucoup d’un pays à l’autre. En Chine, pays très industrialisé, le secteur le plus émetteur de NO<sub>x</sub> est celui de la production d’énergie, alors qu’en Inde le secteur du transport aurait une contribution beaucoup plus importante. La contribution de la combustion des fuels fossiles aux émissions de NO<sub>x</sub> est relativement bien connue : 20–24 TgN/an. Les autres sources de NO<sub>x</sub> par les feux de biomasse (3–13 TgN/an) ou l’activité microbienne des sols (4–21 TgN/an) ont de plus grandes incertitudes. En 1990, van Aardenne et al. (1998) estiment que la Chine (43%) avec l’Inde (18%) et le Japon (13%) représentent 75% des émissions totales de NO<sub>2</sub> (van Aardenne et al., 1998).

Contrairement à la Chine, l’Inde se distingue par une consommation domestique de biofuel, de bois ou encore de résidus agricoles (Reddy and Venkataraman, 2002). La faible qualité des équipements utilisés induit une combustion incomplète qui produit de grandes quantités de CO et de particules de carbone organique. De plus le secteur du transport est très dense en Inde et a connu aussi un accroissement très rapide, or le parc automobile est moins récent et moins performant que celui de la Chine. Les mélanges de fuels utilisés (van Aardenne et al., 1998) engendrent une importante quantité d’émission de CO et de particules carbonées (Dickerson et al., 2002). La Chine a quant à elle des émissions de CO plutôt stables. Les émissions de CO sont estimées à 113 TgC/an pour la Chine en 1995 et 116 TgC/an en 2000 (Streets and Waldhoff, 2000; Streets et al., 2003).

### 1.4.2 Les émissions provenant de la combustion de biomasse

Une importante source d’émission de précurseurs d’O<sub>3</sub> provient des feux de biomasse (Jacob et al., 1996). Les feux peuvent être initiés lors de sécheresse sur les zones arides ou déclenchés par les éclairs, mais il s’agit le plus souvent de brûlages pratiqués par l’homme pour maîtriser son environnement. Ce sont dans les pays en voie de développement que les feux de végétations ou de forêts sont les plus utilisés. Ces feux servent à débroussailler les pâturages, éliminer des résidus agricoles, pour les déforestations mais aussi pour la production de charbon de bois pour l’industrie et comme énergie domestique (bois de chauffage, cuisson). La combustion de biomasse provoque la libération de grandes quantités de gaz traces et de particules dans l’atmosphère parmi lesquels : le CO, le CO<sub>2</sub>, les NO<sub>x</sub>, le CH<sub>4</sub>, les COV, et bien d’autres précurseurs d’O<sub>3</sub> (Crutzen and Andreae, 1990; Hao et al., 1990) qui vont jouer un rôle important dans la chimie atmosphérique.

Les feux de biomasse ont lieu sur toute la planète, mais ils touchent particulièrement les régions tropicales et notamment l’Afrique, l’Amérique du Sud et l’Indonésie (Andreae, 1991; Fishman et al., 1991) voir figure 1.8. Ces régions possèdent un écosystème tropical et subissent une saisonnalité bien marquée entre une saison humide avec de fortes précipitations suivie d’une saison sèche, favorisant ainsi la croissance de la végétation mais aussi l’initiation des feux (Jonquière et al., 1998).

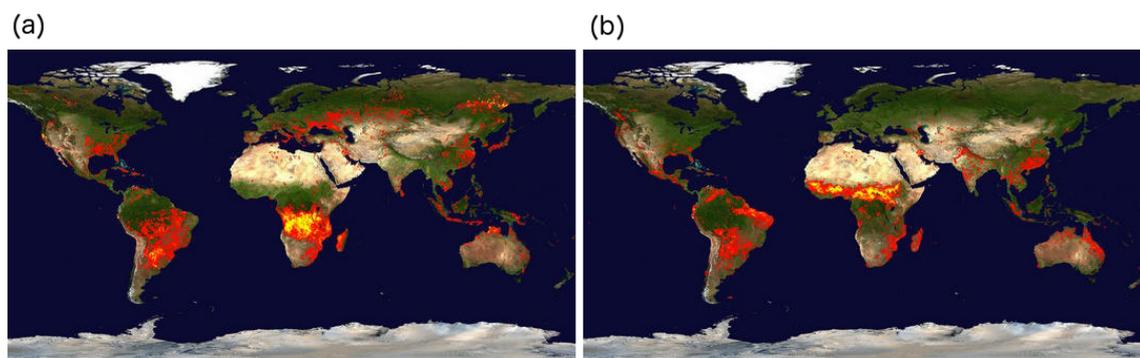


FIGURE 1.8 – Localisation des foyers d’incendie à partir des données MODIS – (a) du 09 au 18 Juillet 2008 et (b) du 26 Nov. au 12 Dec. 2008.

Koppmann et al. (2005) donnent une estimation des émissions de CO par les feux de biomasse de l’ordre de 500 TgC/an (-100/+250). Les incertitudes associées à l’estimation de cette source proviennent principalement de la quantification de combustible brûlé (Lioussé et al., 2004), qui est évaluée à partir de la masse moyenne des matériaux combustibles présents dans un type de

végétation donné et du taux de combustion correspondant. Des études expérimentales fournissent des valeurs de facteurs d’émission selon le type de végétation brûlée (Michel et al., 2005; Lioussse et al., 2004; Andreae and Merlet, 2001), mais le paramètre le plus incertain correspond aux caractéristiques de la biomasse brûlée : intensité, localisation, qualité de combustion. Les études et les campagnes de mesures (AMMA 2006, BORTAS 2011, SAMBBA 2012) fournissent des statistiques locales pour les inventaires bottom-up. Les données récoltées ne fournissent pas les informations nécessaires pour décrire la variabilité spatiale ou les cycles saisonniers des feux de la biomasse dans les pays. L’utilisation des données satellites, par la détection et la localisation des feux, a permis une amélioration qualitative au niveau spatial et temporel des inventaires d’émission, avec par exemple les données de NOAA-AVHRR, SPOT-VEGETATION (Cooke et al., 1996; Heald et al., 2003; Lioussse et al., 2004).

### 1.4.3 Les émissions produites par les éclairs

Les éclairs associés aux orages sont une source significative de NO<sub>x</sub> (Von Liebig, 1827). Il a été observé lors de mesures aéroportées faites à proximité d’orages, que les rapports de mélange des NO<sub>x</sub> dans la haute troposphère pouvaient augmenter de manière importante localement (Huntrieser et al., 1998). Cette production de NO<sub>x</sub> par les éclairs (LiNO<sub>x</sub>, *Lightning NO<sub>x</sub>*) est particulièrement importante car elle a lieu directement dans la haute troposphère où la durée de vie des composés est nettement plus longue que dans la couche limite. Le temps de vie passe de quelques heures dans la couche limite à quelques jours dans la haute troposphère (Sauvage et al., 2007b). Les NO<sub>x</sub> de la haute troposphère, émis localement par les éclairs ou transportés depuis la couche limite par la convection nuageuse, sont plus efficaces pour la production d’O<sub>3</sub> qu’à la surface et ont une influence plus importante sur le bilan d’O<sub>3</sub> et l’effet de serre (Labrador et al., 2005).

La distribution spatiale et temporelle des éclairs est variable (Figure 1.9). En se basant sur les mesures des instruments OTD (*Optical Transient detector*) et LIS (*Lightning Imaging Sensor* limité aux régions tropicales), plusieurs études ont caractérisé cette variation saisonnière et spatiale. Christian et al. (2003) présentent les distributions globales moyennes trimestrielles des éclairs, sur la base de 5 années de données OTD. Les auteurs concluent que les éclairs se produisent principalement au-dessus des zones continentales mais aussi dans le rail des tempêtes aux latitudes moyennes. Christian et al. (2003); Martin et al. (2007) estiment que près de 78% des éclairs surviennent entre les latitudes 30°N et 30°S, avec un pic d’occurrence en Afrique équatoriale (Congo), reflet d’une intense activité orageuse toute l’année. Cette bande sub-tropicale présente une faible variation inter-annuelle d’environ 10%, avec un maximum entre septembre et novembre

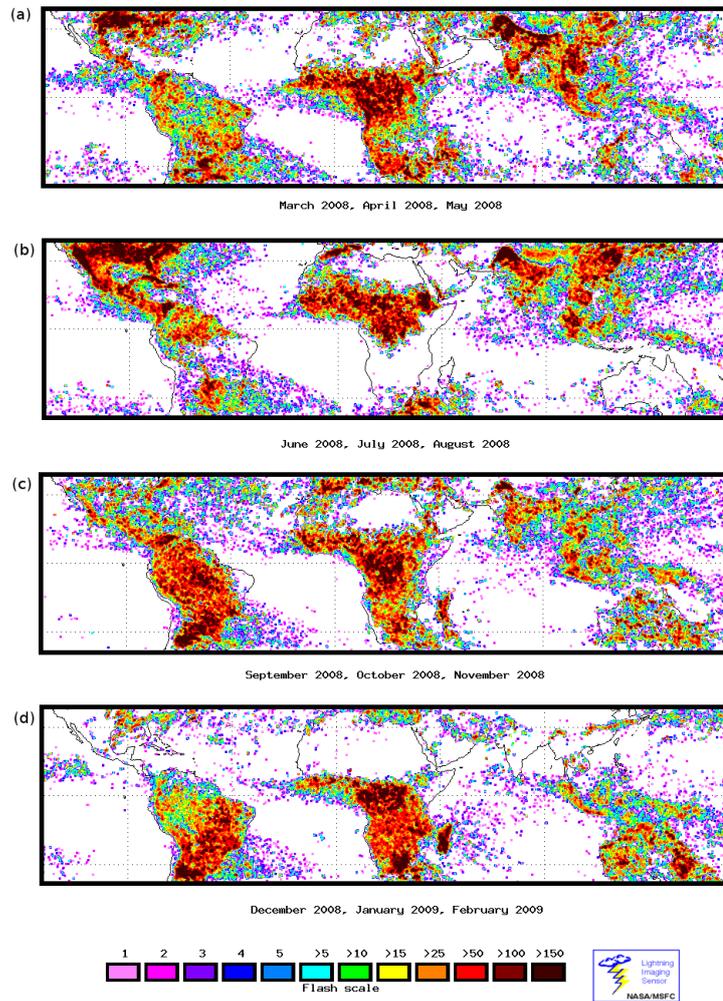


FIGURE 1.9 – Localisation saisonnière des éclairs détectés par l’instrument LIS/TRMM (en  $\text{flashes.km}^{-2}.\text{season}^{-1}$ ) de mars 2008 à février 2009. – NASA, LIS/TRMM.

(Bond et al., 2002; Christian et al., 2003). A l’échelle globale, le maximum de densité d’éclairs est observé en été. Cecil et al. (2014) montrent que le taux moyen d’éclairs à l’échelle globale est de 46 flash/sec avec un minimum de 35 flash/sec en Février (été austral) et un maximum de 60 flash/sec en Août (été boréal). Les auteurs révèlent que le taux moyen mensuel le plus élevé est obtenu dans une vallée de l’Est de l’Inde (Brahmaputra) avec 17 flash/km<sup>2</sup>/mois en Avril. La densité des éclairs décroît ensuite très vite dans cette région pendant la saison de la mousson (début Juin) mais augmente au nord et à l’ouest.

La connaissance des caractéristiques des éclairs, de leur densité et leur localisation est importante pour mieux contraindre les paramétrisations de la production de NO<sub>x</sub> par les éclairs

(Tost et al., 2007). Les estimations actuelles estiment la source globale de LiNO<sub>x</sub> à 5 Tg/an mais l’incertitude reste importante entre 1 à 20 Tg/an (Price et al., 1997; Schumann and Huntrieser, 2007). Cette incertitude dans la quantité des LiNO<sub>x</sub> produits impacte directement le bilan de NO<sub>x</sub> dans la haute troposphère. Des progrès ont été faits ces dernières années par l’utilisation de données satellites qui mesurent la colonne de NO<sub>2</sub>, mais aussi au travers de campagnes de mesures dédiées qui ont permis d’améliorer la compréhension et la quantification de ce phénomène et ses émissions (AMMA (H. Huntrieser, 2011), TROCCINOX (Mari et al., 2006), INTEX-A (Singh et al., 2006), etc).

## 1.5 Variabilité de l’ozone et impact sur le climat

### 1.5.1 L’ozone, un gaz à effet de serre

L’O<sub>3</sub> est un gaz à effet de serre c’est à dire qu’il absorbe le rayonnement infrarouge émis par la Terre pour le rediffuser ensuite vers la surface, provoquant ainsi un réchauffement de la surface terrestre. La quantification du rôle de l’O<sub>3</sub> en tant que gaz à effet de serre est donnée par le calcul du forçage radiatif donné en W.m<sup>-2</sup>. Le forçage radiatif quantifie le changement des flux énergétiques dû à l’évolution de certains facteurs relativement à une année de référence (1750). Il est calculé à la tropopause ou au sommet de l’atmosphère, toutes les conditions à la surface et dans la troposphère sont fixes. Un forçage radiatif positif entraîne un réchauffement de la surface, tandis qu’un forçage radiatif négatif engendre un refroidissement de la surface. Il existe une relation approximativement linéaire entre le forçage radiatif moyen global et l’évolution de la température de la surface moyenne (Forster, 2007).

Étant aussi le précurseur des agents oxydants clés dans la troposphère, tel que OH, l’O<sub>3</sub> influe fortement sur la durée de vie des autres gaz à effet de serre tels que le CH<sub>4</sub>, fournissant aussi un impact indirect supplémentaire sur le climat (Shindell and Faluvegi, 2009). Le Groupe d’experts intergouvernemental sur l’évolution du climat (GIEC) estime que l’O<sub>3</sub> troposphérique fournit un forçage radiatif positif, soit 0.40 W.m<sup>-2</sup> (0.20 à 0.60 W.m<sup>-2</sup>), depuis l’époque préindustrielle (Forster, 2007). C’est le forçage le plus important après le CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub> (en excluant la vapeur d’eau). L’O<sub>3</sub> étant un polluant secondaire, son forçage radiatif est largement attribué aux émissions anthropiques de méthane CH<sub>4</sub> (44± 12%), d’oxyde d’azote NO<sub>x</sub> (31± 9%), de monoxyde de carbone CO (15± 3%) et de composés organiques non méthaniques (9± 2%) (Stevenson et al., 2013).

L’O<sub>3</sub> troposphérique est à l’origine d’un forçage radiatif positif sur une large bande spectrale. Ce forçage radiatif est maximal dans la région de la haute troposphère (Gauss et al., 2003; Hansen et al., 1997; de F. Forster and Shine, 1997; Lacis et al., 1990).

La variabilité latitudinale du forçage radiatif de l’O<sub>3</sub> est marquée par la dépendance du forçage radiatif au gradient thermique (Stevenson et al., 2013). Les valeurs de forçage radiatif les plus élevées sont calculées dans les tropiques, là où le rayonnement solaire atteignant la surface est le plus intense et où la hauteur de la tropopause est la plus haute, lesquels fournissent une différence importante de température entre la surface et la tropopause. La distribution annuelle moyenne du forçage radiatif (courtes et longues longueurs d’onde) de l’O<sub>3</sub> en figure 1.10 (Stevenson et al., 2013) montre une répartition géographique avec des maxima au-dessus du Sahara et du Moyen-Orient. La vapeur d’eau et les nuages sont aussi des paramètres qui affectent l’influence du forçage

radiatif de l’O<sub>3</sub> (Bowman et al., 2013).

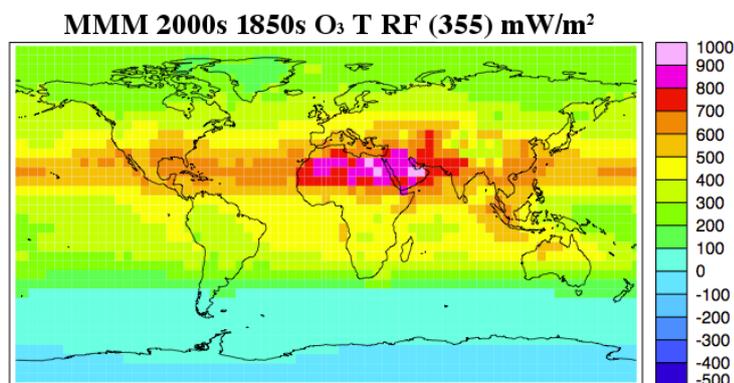


FIGURE 1.10 – Forçage radiatif troposphérique annuel moyen de l’O<sub>3</sub> (en mW.m<sup>-2</sup>) pour les courtes et longues longueurs d’ondes. – Stevenson et al. (2013)

Contrairement aux gaz à effet de serre à longue durée de vie et bien mélangés dans l’atmosphère (comme N<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub>), la durée de vie moyenne de l’O<sub>3</sub> troposphérique est de l’ordre de quelques semaines. Deux récentes études donnent des valeurs de temps de vie similaires : 22.3 +/- 2 jours pour Stevenson et al. (2006) et 23.4 +/- 2.2 jours pour Young et al. (2013).

## 1.5.2 Evolution de l’ozone troposphérique

L’augmentation des émissions anthropiques de précurseurs d’O<sub>3</sub> en particulier dans l’hémisphère nord induit une augmentation de la charge de l’O<sub>3</sub> troposphérique depuis l’ère préindustrielle (Volz and Kley, 1988; Marengo et al., 1994) et au cours de la dernière décennie (Parrish et al., 2009; Cooper et al., 2010; Logan et al., 2012)(Section 1.4.1). Une augmentation de l’O<sub>3</sub> d’environ 30% est estimée entre 1850 et 1990 (Young et al., 2013; Lamarque et al., 2005) et ceci principalement pour la basse troposphère des continents de l’hémisphère nord (Shindell et al., 2006; Volz and Kley, 1988; Lamarque et al., 2005; Staehelin et al., 1994). Jusqu’en 1970, la plus forte croissance a eu lieu sur les Etats–Unis puis l’Europe, suite au développement de l’industrialisation après la seconde guerre mondiale. Depuis 1970, la production d’O<sub>3</sub> a considérablement augmenté sur le continent asiatique en raison de la rapide et intense croissance économique et démographique (Smith et al., 2011).

Les régions tropicales montrent des changements moins importants, comparées aux régions extra–tropicales de l’hémisphère nord (Shindell et al., 2006; Oltmans et al., 1998).

Depuis les années 1990, des dispositions ont été prises pour limiter les émissions dues à l’ac-

tivité humaine, en ce qui concernent les constituants destructeurs de la couche d’O<sub>3</sub> stratosphérique (avec le Protocole de Montréal en 1987) et les émissions de précurseurs d’O<sub>3</sub> (comme avec le Protocole de Kyoto en 1997). La hausse des émissions anthropiques sur le continent asiatique freine la baisse attendue des concentrations d’O<sub>3</sub> troposphérique dans les pays qui diminuent leurs émissions de précurseurs (Wilson et al., 2012). Cela en raison du transport intercontinental de la pollution qui permet la redistribution des masses d’air qui donnent à une pollution locale un impact global. Ces processus de transport pourraient s’intensifier, avec une augmentation de la durée de vie de l’O<sub>3</sub>, selon Zhang et al. (2014) qui ont étudié la sensibilité des flux sortant d’O<sub>3</sub> asiatiques en prenant en compte le rétablissement de l’O<sub>3</sub> stratosphérique et l’évolution des émissions anthropiques. Ainsi, une augmentation supplémentaire de l’O<sub>3</sub> troposphérique est prévue dans le futur avec l’actuelle croissance des émissions anthropiques des régions en développement d’Asie de l’Est. Sur la période 1990–2010, l’évolution contrastée des émissions avec une augmentation en Asie et une diminution en Europe et Amérique du Nord conduit à des tendances régionales pour l’O<sub>3</sub> en surface opposées. En Europe, depuis 2000, les concentrations d’O<sub>3</sub> se stabilisent voire diminuent sur les sites ruraux ou d’altitude et sur les sites de fond (Logan et al., 2012; Parrish et al., 2012). En Asie de l’Est, l’O<sub>3</sub> en surface augmente. Dans la troposphère libre, l’O<sub>3</sub> décroît depuis 1998 au-dessus de l’Europe (Logan et al., 2012) mais reste stable au-dessus du Japon (Oltmans et al., 2013). Les autres régions (Amérique du Nord, Océan Pacifique Nord) montrent des tendances à la hausse et fonction de l’altitude.

D’autres études ont examiné l’impact du changement climatique sur la charge future de l’O<sub>3</sub> troposphérique (Zhang et al., 2014; Zeng et al., 2010; Collins et al., 2003; Sudo et al., 2003). Ces études suggèrent une diminution future de la charge d’O<sub>3</sub> troposphérique à cause d’une destruction photochimique de l’O<sub>3</sub> plus rapide dans un climat futur plus humide. Ceci à travers les réactions de photolyse de l’O<sub>3</sub> (R.8), suivie d’une réaction de la vapeur d’eau avec l’oxygène produit (R.10). D’autre part, la réduction des rayonnements UV arrivant dans la troposphère par un rétablissement de l’O<sub>3</sub> stratosphérique, affecterait la production photochimique de l’O<sub>3</sub> à travers la photolyse du NO<sub>2</sub> qui serait alors moindre (Zhang et al., 2014). Cette diminution serait néanmoins compensée par l’augmentation des concentrations d’O<sub>3</sub> stratosphérique et l’accélération de la circulation stratosphérique de Brewer–Dobson (Shindell et al., 2006; Butchart et al., 2006; Grewe, 2007; Zeng et al., 2010), conduisant à une augmentation du flux d’O<sub>3</sub> de la stratosphère vers la troposphère. Cette hausse des intrusions d’O<sub>3</sub> stratosphérique serait à l’origine d’une augmentation globale de l’O<sub>3</sub> troposphérique (Zhang et al., 2014; Zeng et al., 2010; Collins et al., 2003; Sudo et al., 2003). Puisque les changements sur les concentrations de l’O<sub>3</sub> dans la haute troposphère entraînent une modification sensible du forçage radiatif (Lacis et al., 1990), les impacts du changement climatique sur les échanges entre la stratosphère et la

troposphère pourront jouer un rôle crucial dans le forçage radiatif de l’O<sub>3</sub> futur.

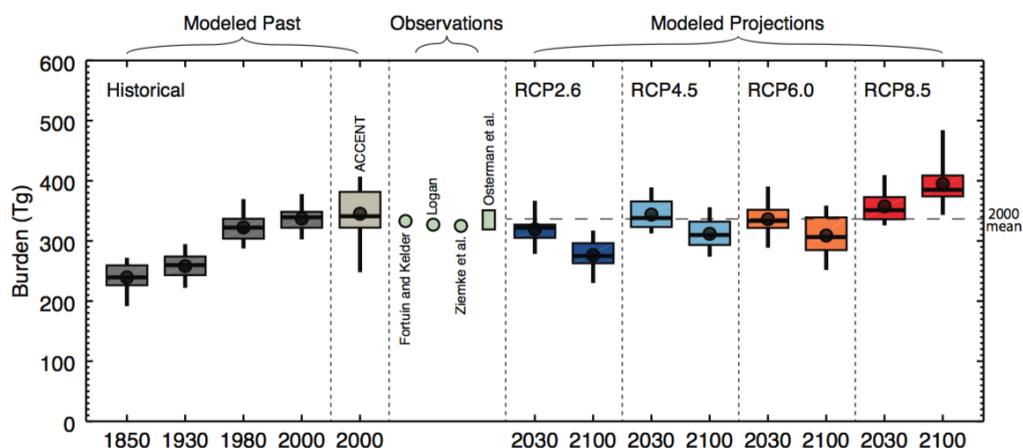


FIGURE 1.11 – Evolution temporelle de l’O<sub>3</sub> troposphérique global (en Tg(O<sub>3</sub>)) entre 1850 et 2100, à partir des résultats ACCMIP, ACCENT (pour 2000 uniquement), et des estimations dérivées des observations. (Rapport de [IPCC 2013 AR5](#), adapté de [Young et al. \(2013\)](#))

Les évolutions futures possibles de l’O<sub>3</sub> pour l’année 2030 ont été modélisées à partir d’un ensemble de 15 modèles de chimie atmosphérique participant au projet ACCMIP (*Atmospheric Chemistry Climate Model Intercomparison*). Les prévisions sur les changements des concentrations moyennes en O<sub>3</sub> troposphérique globales pour 2030 varient entre -4% pour les scénarios les plus optimistes et +7% pour les plus pessimistes, soit une augmentation 23 Tg(O<sub>3</sub>) comparé à l’année 2000 où la charge est estimée à 337 Tg(O<sub>3</sub>) par [Young et al. \(2013\)](#). La figure 1.11 montre la charge moyenne annuelle troposphérique de l’O<sub>3</sub> estimée à partir des modèles ACCMIP pour 2030 et 2100 avec différents scénarios. D’autres travaux de modélisation estiment une augmentation maximale d’O<sub>3</sub> dans la région subtropicale Nord, qui est associée à une augmentation des émissions en Asie du Sud et en Amérique Centrale. L’évolution future des concentrations d’O<sub>3</sub> montre que les régions éloignées des zones d’émissions seront aussi affectées, avec une augmentation de 10 à 20% des niveaux d’O<sub>3</sub> de fond, calculée sur les régions marines de l’hémisphère sud ([Hauglustaine and Brasseur, 2001](#); [Stevenson et al., 2006](#)).

### 1.5.3 Cycle saisonnier de l’ozone

Dépendant des émissions de ses précurseurs mais aussi des conditions météorologiques dont principalement le rayonnement incident, l’O<sub>3</sub> présente en plus d’un cycle diurne, une variation saisonnière distincte entre les hémisphères nord et sud. Les observations spatiales permettent de mesurer la distribution de l’O<sub>3</sub> troposphérique à l’échelle globale et d’étudier sa variabilité temporelle à grande échelle. En particulier, les observations de la colonne d’O<sub>3</sub> troposphérique calculée après le retrait de la colonne stratosphérique fournissent un éclairage précieux sur les cycles saisonniers.

La figure 1.12 illustre les colonnes partielles d’O<sub>3</sub> troposphérique calculées par l’interféromètre IASI. Durant l’été boréal (Mars à Août) lorsque le rayonnement solaire est le plus fort et favorise les réactions de photochimie, l’O<sub>3</sub> présente un maximum dans les moyennes latitudes de l’hémisphère nord entre 20° et 50°N. Un second maximum est obtenu dans la région tropicale à l’ouest de l’Afrique. Les valeurs maximales des colonnes partielles d’O<sub>3</sub> sont localisées au-dessus des régions fortement industrialisées en Asie, en Europe et en Amérique du Nord. A cette période de l’année, les intrusions stratosphériques peuvent également contribuer au maximum d’O<sub>3</sub> troposphérique (Beekmann et al., 1997). Dans les tropiques et l’hémisphère sud, les émissions anthropiques sont moindres. Les colonnes partielles ne dépassent pas les 35 DU en moyenne. La signature la plus marquante pendant l’hiver boréal est le maximum des colonnes partielles d’O<sub>3</sub> localisées au sud de l’Atlantique entre les côtes Est de l’Afrique et de l’Amérique du Sud (Figure 1.12 (d)). Cette bande de maximum de colonne partielle signe principalement le transport des panaches de feux de biomasse et la formation de l’O<sub>3</sub> sous le vent des régions sources.

Parrish et al. (2013) ont étudié les changements du cycle saisonnier de l’O<sub>3</sub> sur deux périodes séparées de 17 à 35 ans dans l’hémisphère nord. La figure 1.13 illustre l’augmentation de l’O<sub>3</sub> en surface pour les sites étudiés entre les deux périodes. La comparaison révèle également un décalage du cycle saisonnier de l’O<sub>3</sub> avec l’apparition du maximum d’O<sub>3</sub> plus tôt dans l’année. Les hypothèses avancées pour comprendre ce décalage sont des changements dans la distribution spatiale et l’évolution temporelle des émissions de précurseurs, des changements dans les voies privilégiées du transport atmosphérique, des facteurs liés au changement climatique (température, vapeur d’eau, émissions naturelles).

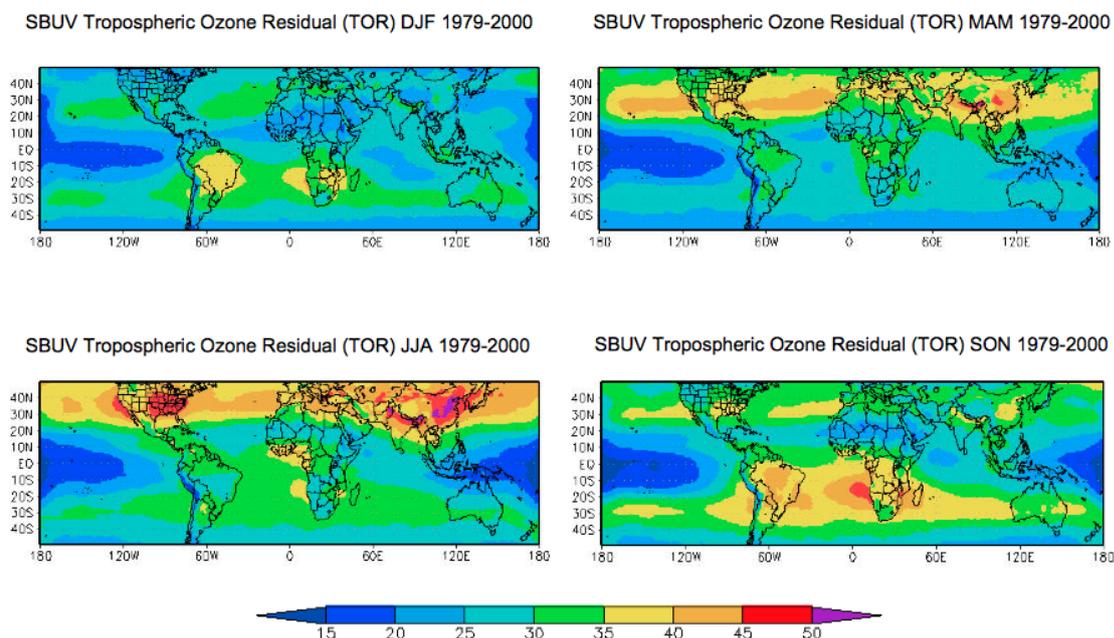


FIGURE 1.12 – Distributions saisonnières des concentrations moyennes d’O<sub>3</sub> troposphérique issues de IASI-SOFRID

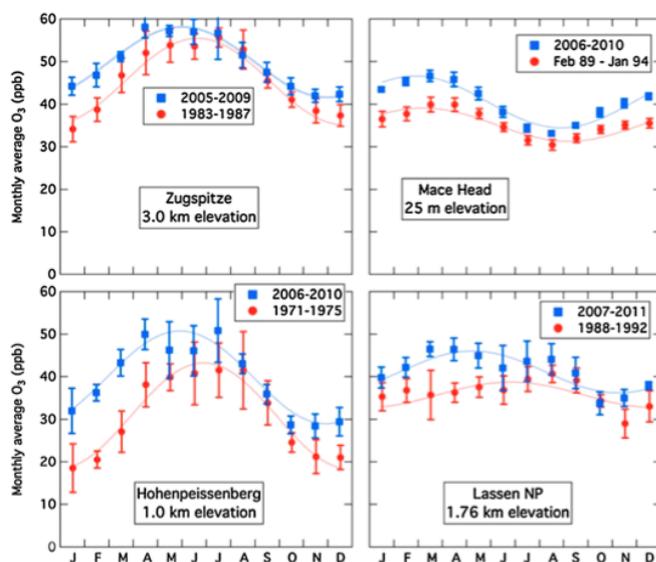


FIGURE 1.13 – Comparaison des cycles saisonniers de l’O<sub>3</sub> pour des sites de l’hémisphère nord en Europe (a-b-c) et aux nord des Etats-Unis (d) pour deux périodes séparées de 17 à 35 ans. Les points et barres d’erreurs indiquent respectivement la moyenne sur les 5 années et les déviations standards des données mensuelles - Parrish et al. (2013).

# Transport de l'O<sub>3</sub> aux tropiques

---

La distribution régionale et globale de l'O<sub>3</sub> troposphérique est contrôlée par plusieurs facteurs incluant la localisation et la variabilité des sources de précurseurs de l'O<sub>3</sub>, les réactions chimiques (voir Chapitre 1), l'interaction avec le rayonnement ou les nuages et le transport et le mélange dans l'atmosphère. La distribution de l'O<sub>3</sub> à l'échelle globale dans la troposphère fait intervenir des échelles de temps et d'espace variant de quelques heures à un an et allant du local au régional et au global. Avec un temps de vie chimique de l'ordre de quelques jours (à basse altitude) à quelques mois (dans la haute troposphère), la distribution de l'O<sub>3</sub> dans l'atmosphère va être sensible à des processus de transport dont le temps caractéristique est connexe. Ce chapitre présente brièvement ces principaux processus dynamiques participant au transport et au mélange des masses d'air dans la région de l'Océan Indien et de l'Asie du Sud (2.1 - 2.2), et décrit (2.3.2 - 2.3.3) des problématiques abordées dans cette thèse.

## 2.1 Distribution de l'ozone à l'échelle globale

La figure 2.1 illustre l'augmentation de l'O<sub>3</sub> avec l'altitude traduisant un temps de vie plus long de l'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère. Cette distribution verticale de l'O<sub>3</sub> dans les régions tropicales est influencée par le soulèvement convectif de masses d'air pauvres en O<sub>3</sub> (Solomon et al., 2005; Cooper et al., 2010) et l'apport par la convection de précurseurs de l'O<sub>3</sub> en altitude (Lawrence et al., 2003; Doherty et al., 2005).

La moyenne zonale et la carte des colonnes troposphériques de l'O<sub>3</sub> montrent une asymétrie entre les deux hémisphères. Les rapports de mélange plus importants dans l'hémisphère nord sont la conséquence des échanges entre la troposphère et la stratosphère plus importants en partie liés à une circulation de Brewer–Dobson plus forte et aux émissions (notamment anthropiques) plus importantes. La carte des colonnes troposphériques de l'O<sub>3</sub> montre des maxima au dessus des régions sources principales (Europe, USA et Asie) mais ces maxima se retrouvent également sous le vent des zones sources traduisant un transport intercontinental important. De nombreuses études, réalisées aux moyennes latitudes de l'hémisphère nord informent sur l'impact du transport intercontinental de la pollution sur la redistribution de l'O<sub>3</sub> et plus particulièrement sur les niveaux d'O<sub>3</sub> en surface. Cette dernière question est essentielle puisque la contribution de l'import

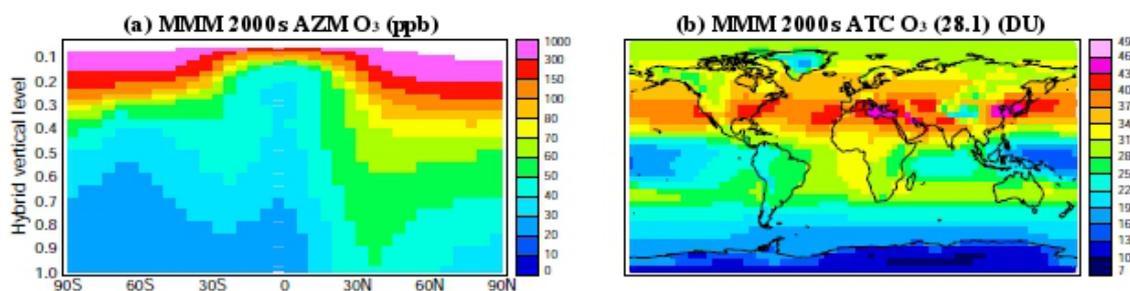


FIGURE 2.1 – (a) Rapports de mélange de l’O<sub>3</sub> en ppb en moyenne zonale et annuelle et moyennés pour tous les modèles de l’exercice ACCMIP (Atmospheric Chemistry and Climate Model Inter-comparison Project). (b) Colonne troposphérique de l’O<sub>3</sub> en DU en moyenne annuelle et en moyenne sur l’ensemble des modèles ACCMIP. Les simulations sont représentatives de l’année 2000. – [Stevenson et al. \(2013\)](#).

important d’O<sub>3</sub> dans une région cible peut contrarier les efforts aux échelles locales et régionales de réduction de la pollution. Le programme HTAP (*Hemispheric Transport of Air Pollution*) par exemple était consacré à l’étude du transport intercontinental et hémisphérique de la pollution. Le premier enseignement délivré par ces études aux moyennes latitudes de l’hémisphère nord est la différenciation entre les mécanismes contrôlant les niveaux d’O<sub>3</sub> dans la masse d’air transportée dans un cas de transport à basse altitude ou dans la troposphère libre/haute troposphère. Dans les deux cas, l’O<sub>3</sub> est formé dans la couche limite sous l’action du rayonnement et des émissions de précurseurs NO<sub>x</sub> et COV (voir Chapitre 1). Dans le cas d’un transport dans la haute troposphère, la masse d’air polluée est soulevée par les circulations associées aux systèmes frontaux (WCB, *warm conveyor belt*) dans les moyennes latitudes ou plus rapidement encore par la convection nuageuse profonde. Le panache est caractérisé généralement par de faibles valeurs de NO<sub>x</sub> et de fortes valeurs de Nitrate d’Acide Peroxyacétyle (PAN) une espèce réservoir. La production d’O<sub>3</sub> la plus importante a lieu lorsque la masse d’air descend dans la couche limite où les températures plus élevées favorisent la formation de NO<sub>x</sub> à partir du PAN. Ce scénario doit cependant être nuancé par les études récentes sur les super-panaches intercontinentaux riches en NO<sub>x</sub> formés dans les éclairs des systèmes convectifs au dessus des régions sources, qui favorisent la production d’O<sub>3</sub> au cours du transport ([Gressent et al., 2014](#)).

## 2.2 La dynamique atmosphérique

### 2.2.1 Les cellules de Hadley et Walker

De part son inclinaison, la Terre n'est pas uniformément chauffée par le Soleil. Les régions tropicales reçoivent plus d'énergie que les zones polaires où les rayons solaires arrivent très inclinés. A ce bilan énergétique, déficitaire aux pôles et excédentaire à l'équateur, se combine un déséquilibre sur la verticale. Les basses couches absorbent la majeure partie du rayonnement solaire incident alors que les couches en altitude émettent du rayonnement vers l'espace. En réponse à ces déséquilibres radiatifs, le fluide atmosphérique se met en mouvement pour rétablir un équilibre énergétique.

Les cellules de Hadley participent au transfert d'énergie des basses latitudes vers les latitudes moyennes dans les deux hémisphères. Il s'agit d'une circulation atmosphérique fermée, où dans les basses couches, les vents d'est de surface nommés alizés, convergent vers l'équateur (**Flèches rouges** de la figure 2.2). Cet air chaud et chargé d'humidité force l'air à s'élever dans la région équatoriale, une zone de basses pressions. Ces mouvements ascendants convectifs soulèvent des masses d'air depuis la surface jusqu'au niveau de la tropopause, à environ 12 à 15 km d'altitude. La zone équatoriale est donc le lieu de processus de convection nuageuse tout au long de l'année et est appelée la Zone de Convergence Inter Tropicale du fait de la convergence (ITCZ) dans les basses couches. Les branches supérieures des cellules de Hadley redistribuent l'énergie sur l'horizontale en transportant celle-ci sous la forme d'énergie potentielle (**Flèches bleues** de la figure 2.2). Cette circulation a lieu jusqu'à la latitude de 30°N ou 30°S. Les limites Nord et Sud sont caractérisées par des courants-jets subtropicaux tels que le Jet d'Ouest SubTropical vers 30°N.

Ces latitudes sont également caractérisées par une subsidence provoquant le réchauffement et l'assèchement des masses d'air. L'énergie sous forme de chaleur latente et sensible revient dans les basses couches vers la zone équatoriale. Les cellules de Hadley sont représentatives d'un écoulement moyen de la troposphère tropicale. A cet écoulement s'ajoute les circulations zonales de Walker qui sont la réponse atmosphérique aux forts gradients zonaux de températures de surface de la mer et au chauffage diabatique. Les circulations de Walker sur l'Océan Indien tropical, les bassins Pacifique et Atlantique produisent des vents d'ouest en surface pendant l'été boréal pour le premier et des vents d'Est pour les deux derniers. Les circulations de Walker sont contrôlées par les gradients de température de surface de l'eau et donc sensibles à toute modification de ces gradients comme lors des épisodes d'oscillation australe El Niño. Les cellules de Walker sont liées aux trois régions majeures de convection situées au dessus du Pacifique Ouest,

de l'Amérique centrale et de l'Afrique centrale. Ces circulations peuvent dominer localement la circulation méridienne de Hadley.

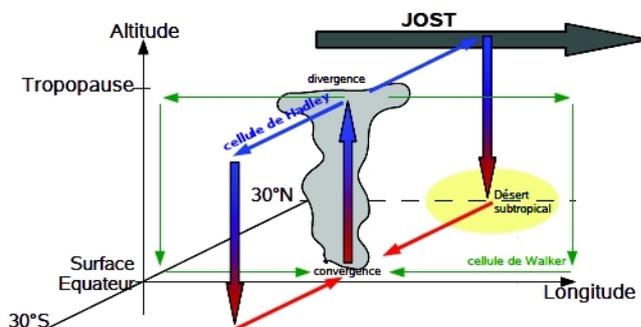


FIGURE 2.2 – Schéma des cellules de Hadley et de Walker et des régimes de vents typiques associés. – (issue de Peyrillé (2005)).

### 2.2.2 Les ondes équatoriales

Les ondes équatoriales sont des modulations de la circulation atmosphérique près de l'Equateur. Il s'agit de faibles perturbations de la zone de convergence intertropicale induites par le dégagement de chaleur latente des cumulus. Les ondes équatoriales naissent entre 12°N et 12°S et leur signature disparaît rapidement au delà de 20° d'où leur appellation d'ondes piégées. Elles jouent un rôle dans la modulation des nuages convectifs tropicaux. La période des ondes de Kelvin et de Rossby équatoriales varie de 15 à 20 jours. Les ondes de Kelvin se propagent vers l'Est, les ondes de Rossby se propagent vers l'Ouest à l'opposé de la circulation générale. Les ondes de Rossby se traduisent par un déplacement des masses d'air quasi-horizontale. Les profils d'O<sub>3</sub> dans les régions tropicales sont influencés par la propagation de ces ondes. En se basant sur l'étude de radiosondages d'ozone en région tropicale et subtropicale, Thompson et al. (2010); Ogino et al. (2013) montrent que les profils portent des signatures d'origine extratropicale (par déferlement des ondes de Rossby par exemple), de transport à longue distance par les ondes ou stratosphérique. Koishi and Shiotani (2012) suggèrent que le mélange turbulent associé aux ondes de Kelvin (qui se propagent également sur la verticale) peut contribuer à augmenter l'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère.

### 2.2.3 Impacts thermique et dynamique du plateau Tibétain

Avec une altitude moyenne de 4000 m et couvrant une superficie de 2.5 millions km<sup>2</sup>, le plateau Tibétain a un impact thermique et dynamique important en particulier sur la mousson

asiatique. Pendant l'été boréal, la température du plateau augmente sensiblement, créant un gradient thermique avec la température caractéristique de l'air environnant aux mêmes altitudes. Le transfert de chaleur sensible induit la formation d'une anomalie chaude de température au dessus du plateau. Cette anomalie provoque une dépression en surface et une dorsale au niveau de la tropopause. Cette dorsale déplace le jet subtropical vers le Nord du plateau en été. Le réchauffement sur le plateau se traduit également par des mouvements ascendants. L'air environnant est aspiré vers le plateau Tibétain. D'importants flux ascendants s'établissent sur les pentes sud de l'Himalaya dès le printemps, marqueurs du déclenchement et de l'intensification de la mousson d'été indienne (Yanai and Wu, 2006). De par son altitude et sa taille, le plateau Tibétain a un rôle d'obstacle à la circulation. Les flux incidents de basse couche ne montent pas au dessus du plateau mais le contournent au nord et au sud. Le même comportement est observé pour les jets atmosphériques de grande échelle. Ainsi le plateau contraint le jet subtropical à le contourner soit au nord (été) soit au sud (hiver).

#### 2.2.4 La circulation de mousson et les anticyclones subtropicaux

Contrairement aux régions de moyennes latitude, le champ de pression au niveau de la mer dans les régions tropicales ne présente qu'un gradient modéré. La basse troposphère des régions subtropicales de l'hémisphère d'hiver est caractérisée par des ceintures de hautes pressions, généralement associées à la branche descendante de la cellule de Hadley (Figures 2.3 et 2.4). La position des anticyclones varie autour de ces positions moyennes. Les anticyclones sont plus proches de l'équateur dans l'hémisphère d'hiver. L'intensité des anticyclones change également avec un renforcement vers les mois de Mai–Juin. Près du continent sino-indien, la mousson est à l'origine du renforcement des anticyclones subtropicaux d'été. La circulation de mousson est

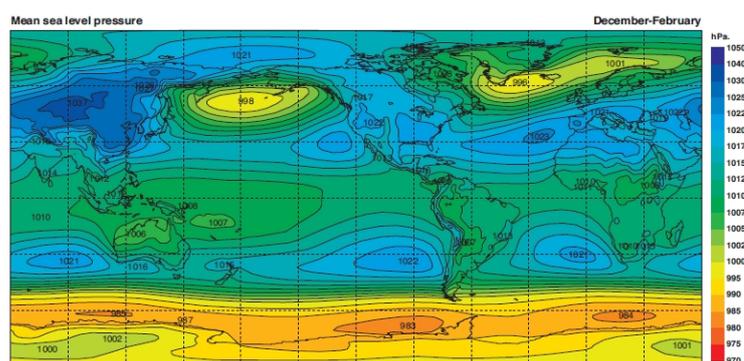


FIGURE 2.3 – Pression moyenne au niveau de la mer pour la période Décembre–Janvier–Février (D-J-F) calculée à partir des réanalyses ECMWF ERA-40 (1957–2002). – Beucher (2010), Manuel de météorologie tropicale, Météo-France

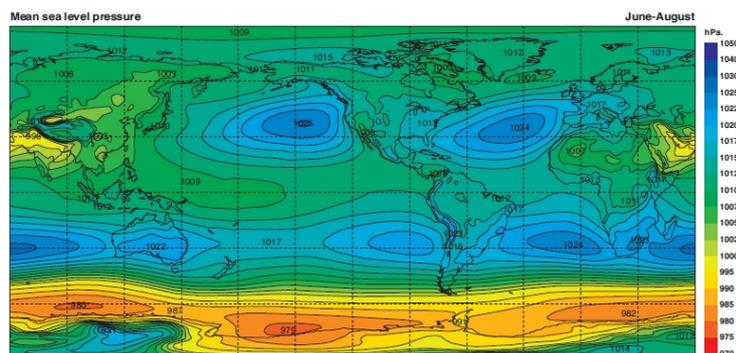


FIGURE 2.4 – Idem à la figure 2.3 pour la période Juin–Juillet–Août (J-J-A).

la réponse du système couplé atmosphère–océan–continent à la variation annuelle du forçage radiatif solaire. Le mot “mousson” vient du terme arabe “mausim” signifiant “saison”. Les régions affectées par la mousson connaissent une saison des pluies et une saison sèche. Outre l’impact en terme de précipitation, la mousson se définit par des vents dominants en basses couches (surface–700hPa) qui changent de direction d’au moins  $120^\circ$  entre l’hiver boréal (Janvier) et l’été boréal (Juillet). De Juin à Septembre les principales zones de mousson se situent en Afrique de l’Ouest (mousson africaine) et sur le continent sino–indien (mousson asiatique). La figure 2.5 illustre le contraste entre les deux saisons pour la mousson indienne (qui fait partie avec la mousson sud–est de l’Asie de la mousson asiatique). Au printemps, le réchauffement solaire migre vers le nord de l’équateur. Les températures de surface sur le Nord de l’Océan Indien augmentent, ainsi que les températures des plaines du Nord de l’Inde et du plateau tibétain. Le sud de l’Océan Indien est comparativement plus froid. Des gradients sud–nord de températures et de pressions se forment. Le gradient de pression favorise un flux d’alizés transéquatorial, dévié par la rotation terrestre (force de Coriolis) (Figure 2.5 (b)). Ces vents transportent l’humidité évaporée au dessus de l’Océan Indien et convergent vers les montagnes de la côte Ouest de l’Inde, avant de continuer vers la Baie de Bengale. Le flux tourne nord et ouest autour d’une dépression thermique au nord de l’Inde (voir également figure 2.4) provoquant de nouvelles précipitations.

Dans la haute troposphère–basse stratosphère (100–200 hPa), la mousson asiatique d’été est caractérisée par une forte circulation anticyclonique entre  $20^\circ$  et  $120^\circ$ E et entre  $15^\circ$  et  $35^\circ$ N visible sur la figure 2.8 (a) et (b). Le centre de cet Anticyclone de la Mousson Asiatique (AMA) est localisé au nord–ouest de la zone convective de la mousson d’été asiatique située en Asie du Sud et représentée par le contour blanc de faibles OLR (*Outgoing Longwave Radiation*) sur la figure 2.8 (c). Hoskins and Rodwell (1995) ont montré que cette circulation est essentiellement causée par le chauffage diabatique associé à la convection profonde. L’AMA est bordé par le Jet d’Est

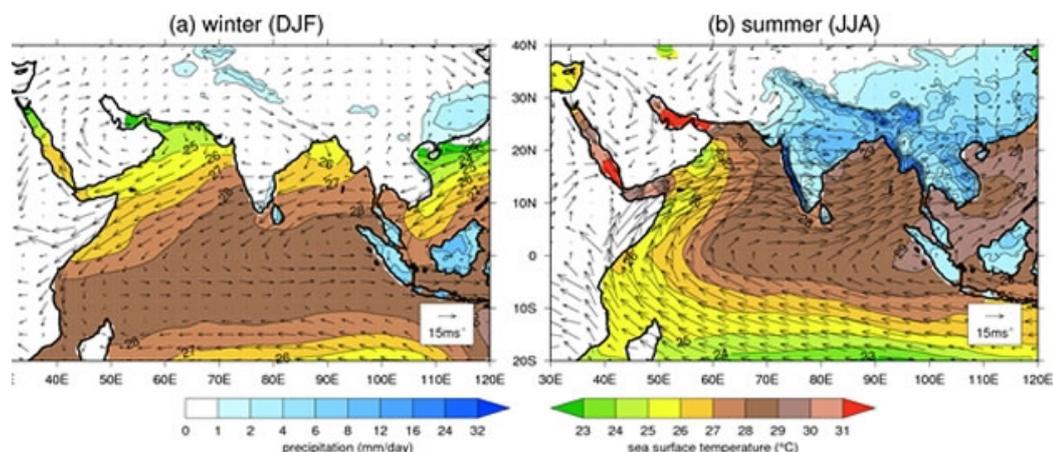


FIGURE 2.5 – Schéma des précipitations, de la température de surface de la mer et des vents pendant l’hiver boréal (D-J-F – (a)) et l’été boréal (J-J-A – (b)). Les précipitations sont issues de la base de données APHRODITE (Yatagai et al., 2012) ; les températures de surface de la mer sont issues de la base de données HadISST (Rayner et al., 2003), les vents à 850hPa sont dérivés des réanalyses ERA-40 (Uppala et al., 2005). Les unités sont mm/jour, °C et m/s ; toutes les données couvrent la période 1958–2001. – Turner and Annamalai (2012), <http://www.rmets.org> – Royal Meteorological Society

Tropical sur son flanc sud et par le Jet d’Ouest SubTropical au nord. Un anticyclone “miroir” est aussi présent dans l’hémisphère sud mais il est plus faible du fait que le forçage diabatique par la convection se situe dans la région de la mousson d’été asiatique au nord de l’équateur. Durant la saison de mousson, l’AMA est soumis à une variabilité importante de forme et d’intensité avec des phases d’extension, de rupture et de propagation principalement vers l’ouest. Cela a été montré à l’aide de paramètres dynamiques comme le tourbillon potentiel (PV, *potential vorticity*) ou les fonctions de courant issues d’analyses NCEP/NCAR par Popovic and Plumb (2001).

### 2.2.5 La convection nuageuse

La nébulosité dans les régions tropicales est associée à deux familles de nuages : les nuages cumuliformes, présents au niveau des branches ascendantes de la circulation de Walker ou de la Zone de Convergence InterTropicale (ITCZ) et les nuages stratiformes présents principalement sur les bords Est des océans. L’ITCZ est caractérisée par des amas convectifs constitués de convection isolée (cumulus, orage) ou de convection organisée à méso-échelle. Sur l’Océan Indien, l’ITCZ est particulièrement étendue. Elle est caractérisée par une zone de convection profonde pouvant atteindre jusqu’à 2500 km de largeur.

La convection nuageuse est une réponse de l’atmosphère à des déséquilibres thermiques verticaux. En faisant intervenir les changements de phase de l’eau, elle tend à redistribuer vertica-

lement l'énergie statique humide. La convection nuageuse s'accompagne de formation de nuages qui dans leur forme la plus spectaculaire (cumulonimbus) sont à l'origine des pluies les plus intenses. Les phénomènes convectifs se manifestent à des échelles fines : une cellule orageuse a typiquement une taille de l'ordre de la dizaine de kilomètres pour une durée de vie de l'ordre d'une heure. Au sein de ces structures nuageuses, des fluctuations à fine échelle et au caractère transitoire apparaissent qui rendent la représentation de la convection nuageuse dans les modèles complexe. En 1958, [Riehl and Malkus](#) suggèrent l'existence de tours convectives non diluées (*hot towers*). Cette hypothèse ne sera pas confirmée par les observations ([Johnson et al., 1999](#); [Zipser, 2003](#)). Les observations révèlent au contraire que les cellules convectives sont façonnées par de forts taux d'entraînement et de déentraînement entre la base du nuage et la tropopause.

Dans les régions tropicales, la convection nuageuse intervient dans la définition de la tropopause. Le transport vertical de masse de la surface vers la stratosphère se produit préférentiellement aux tropiques, avec une contribution certaine des ascendances associées aux nuages convectifs. En dépit de ce lien entre convection nuageuse (humide) et stratosphère, cette dernière présente des rapports de mélange en vapeur d'eau très faibles (3 ppmv). Les processus conduisant à l'assèchement de la stratosphère reste un sujet de débat actuel. Une des hypothèses avancée a été de considérer les conditions très froides et donc très asséchantes au sommet des tours convectives comme facteur de "déshydratation" de la stratosphère. La pénétration de la tropopause tropicale par des nuages convectifs est possible (*overshoot*) mais leur participation à l'assèchement de la stratosphère est toujours discutée du fait de leur rareté ([Chaboureau et al., 2007](#)). Très peu de nuages convectifs semblent atteindre effectivement la tropopause. [Folkins et al. \(2000\)](#), signalent que les niveaux des overshooting convectifs pour la majorité des convections profondes dans les tropiques sont généralement plus près, voir en dessous de 12km, avec uniquement une petite fraction enrichissant les niveaux jusqu'à la tropopause. [Liu and Zipser \(2005\)](#) démontrent à partir de données TRMM qu'une petite fraction des *overshoots* atteint 14 km et une fraction encore plus faible atteint la tropopause. De leur étude statistique dans la région comprise entre 20°S et 20°N (excluant donc la région de la mousson d'été asiatique), les auteurs concluent que la région la plus sensible à des *overshoots* est l'Afrique. [Gettelman et al. \(2002\)](#) évaluent à partir de l'étude des températures de brillance spatiales que la convection est la plus forte et profonde sur le Pacifique centre et ouest en Février et sur le continent indien pendant la mousson en Aout. Cette étude confirme que la convection pénètre rarement à des altitudes au dessus de 1.5 km du "point froid" (température minimale). Dans certaines parties du sous-continent indien, les tempêtes les plus intenses se produisent pendant la période de pré-mousson. Au contraire, les systèmes convectifs les plus pluvieux pendant la période de la mousson sont composés de nombreux systèmes convectifs, peu intenses ([Zipser et al., 2006](#)).

## 2.3 La structure de l’O<sub>3</sub> dans la troposphère tropicale

Dans la troposphère tropicale, la distribution de l’O<sub>3</sub> est le résultat de l’interaction complexe entre les processus d’émission, de photochimie et de transport décrits dans les parties précédentes. Les sections suivantes sont consacrées à la description des principales caractéristiques des variations saisonnières et spatiales, des “anomalies” de l’O<sub>3</sub> dans la troposphère tropicale et les principaux facteurs qui les contrôlent avec un focus particulier sur l’Océan Indien.

### 2.3.1 Le paradoxe de l’O<sub>3</sub> sur Atlantique tropical et le Wave number one

Les premières distributions de colonnes d’O<sub>3</sub> troposphériques tropicales ont été dérivées des observations des sondeurs spatiaux SAGE I et II combinées à celles de TOMS (*Total Ozone Mapping Spectrometer*) à la fin des années 1980 (Fishman and Larsen, 1987; Fishman et al., 1990). Les distributions saisonnières présentées par Fishman et al. (1990) montrent une structure zonale persistante avec un maximum (35 DU, *unité Dobson*) sur l’océan Atlantique et un minimum (20 DU) sur l’océan Pacifique. Ce dipôle sera plus tard dénommé le “wave number one” ou “Wave-1” (Thompson et al., 2000). Le maximum zonal sur l’océan Atlantique tropical est le plus élevé sur l’océan Atlantique sud entre septembre et novembre. Les distributions d’O<sub>3</sub> troposphérique restituées à partir des observations plus récentes des sondeurs OMI (*Ozone Monitoring Instrument*) et MLS (*Microwave Limb Sounder*) du satellite Aura (Ziemke et al., 2007) ou du sondeur IASI (section 3.1) confirment cette structure (voir figure 2.6). Les fortes quantités d’O<sub>3</sub> dans la troposphère libre observées à cette période de l’année sur l’océan Atlantique Sud ont été attribuées aux feux de biomasse (Fishman et al., 1991) du fait de la coïncidence entre les fortes quantités d’O<sub>3</sub> observées et la saison des feux au sud de l’Afrique et en Amérique du sud de septembre à novembre. Le minimum d’O<sub>3</sub> sur l’océan Pacifique de l’ouest et central (Figure 2.6) est le résultat de la convection océanique, qui d’une part transporte des masses d’air pauvres en O<sub>3</sub> et en précurseurs d’O<sub>3</sub> de la couche limite marine vers la haute troposphère et d’autre part génère beaucoup moins d’éclairs et donc de LiNOx pouvant conduire à la formation d’O<sub>3</sub>, que la convection continentale. Cela est dû à une différence de température moins grande entre l’atmosphère et l’océan, qu’avec pour les surfaces terrestre qui se réchauffe plus vite. Or cette condition météorologique favorise l’accumulation de charge électrique et par conséquent la production d’éclair (voir section 2.2.5).

En saison sèche (hiver boréal), la zone de convergence se situe au sud de l’équateur et les

feux de biomasse ont lieu principalement l’Afrique de l’Ouest entre 0 et 10°N. Les observations de la campagne de mesures en mer “Aerosol99” en Janvier–Février 1999, montrent des quantités plus élevées d’O<sub>3</sub> troposphériques au sud de l’équateur, paradoxalement loin des sources par les feux de biomasse (Thompson and Hudson, 1999). Cet apparent paradoxe a été nommé “south atlantic O<sub>3</sub> paradox” par les auteurs de l’étude qui attribuent les quantités d’O<sub>3</sub> élevées à la combinaison de différents processus comprenant le transport inter-hémisphérique, l’intrusion d’air stratosphérique et en dernier lieu la production photochimique à partir de LiNO<sub>x</sub> (Thompson et al., 2000). Les données du réseau tropical de sondes d’O<sub>3</sub> SHADOZ confirment la persistance du wave-1 tout au long de l’année avec un maximum d’amplitude en S-O-N (Septembre - Octobre - Novembre) et des maxima plus marqués sur l’océan Atlantique sud (Thompson et al., 2003). En utilisant les profils verticaux d’O<sub>3</sub> mesurés par le programme MOZAIC, Sauvage et al. (2006) démontrent que les maxima en O<sub>3</sub> dans les basses couches sont bien obtenus au-dessus de la région des feux. Le paradoxe de l’O<sub>3</sub> n’existe donc pas dans les basses couches. Jourdain et al. (2007) confirment également les plus fortes valeurs d’O<sub>3</sub> au-dessus des feux de biomasse et l’océan Atlantique tropical Nord pendant l’hiver boréal en utilisant les observations satellite TES.

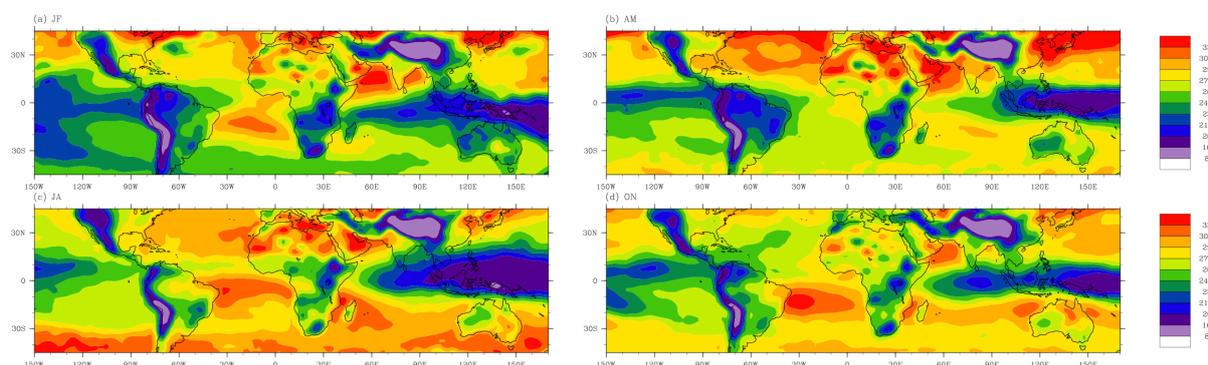


FIGURE 2.6 – Distributions saisonnières des colonnes troposphériques (surface–300 hPa) d’O<sub>3</sub> IASI-SOFRID pour l’année 2009 (a) Janvier–Février (b) Avril–Mai (c) Juillet–Aout (d) Octobre–Novembre.

Jourdain et al. (2007) confirment l’existence du deuxième maxima d’O<sub>3</sub> au sud de l’équateur pendant l’hiver boréal, attribué à la combinaison de production de NO<sub>x</sub> par les éclairs, de subsidence, de transport inter-équatorial et d’intrusions stratosphériques (Edwards et al., 2003). Des études basées sur un modèle de chimie transport ont ensuite permis de quantifier la part des différents processus dans la formation du maximum d’O<sub>3</sub> sur l’Atlantique tropical. Tout d’abord, Randall et al. (2002) ont été capables de reproduire les principales caractéristiques des distributions d’O<sub>3</sub> troposphériques aux tropiques observées par sondes d’O<sub>3</sub> et dérivées de TOMS. Grâce

au modèle, ils expliquent le “paradoxe d'O<sub>3</sub> de l'atlantique sud” par une combinaison de production d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère par les LiNO<sub>x</sub>, la subsidence persistante de la cellule de Walker sur l'Atlantique sud et le transport inter-hémisphérique d'O<sub>3</sub> produit dans l'hémisphère nord par le couloir de transport privilégié vers l'Ouest (*westerly duct*). Le modèle a aussi permis d'établir que ces processus sont largement responsables du Wave-1 car ils produisent 13 à 17 DU de différence entre les colonnes troposphériques d'O<sub>3</sub> entre l'Atlantique et le Pacifique. Enfin, la quantification de l'impact de chacune des sources de NO<sub>x</sub> sur le bilan de l'O<sub>3</sub> troposphérique aux tropiques a été effectuée par [Sauvage et al. \(2007b\)](#). Cette étude a tout d'abord montré que les LiNO<sub>x</sub> sont le premier contributeur à la production d'O<sub>3</sub> aux tropiques avec 28% de cette production. L'importance des LiNO<sub>x</sub> provient du fort potentiel de production d'O<sub>3</sub> pour des NO<sub>x</sub> dans la haute troposphère qui a été développé dans la section 1.4.3. L'étude de [Sauvage et al. \(2007b\)](#) détaille le processus de formation du maximum d'O<sub>3</sub> Atlantique. La convection dans l'ITCZ sur les continents africains et américains soulève des précurseurs émis en surface et surtout produit par les éclairs (30% du contenu du maximum d'O<sub>3</sub> est produit par des LiNO<sub>x</sub> africain et 18% par des LiNO<sub>x</sub> d'Amérique du sud). Dans la moyenne et haute troposphère, en présence de forts UV et de faibles quantités de vapeur d'eau (voir Chapitre 1.2), l'O<sub>3</sub> est produit et est transporté vers le bas dans la zone de subsidence atlantique. L'influence du transport longue distance est maximum (15%) en J-J-A lorsque le Jet d'Est Tropical est présent et permet de transporter des masses d'air polluées depuis l'Asie comme le montre aussi [Barret et al. \(2008\)](#). Enfin, le maximum d'O<sub>3</sub> saisonnier en S-O-N au-dessus de l'Atlantique sud est expliqué par la combinaison des LiNO<sub>x</sub>, des NO<sub>x</sub> produits par les sols, les feux et du transport longue distance.

### **2.3.2 Les anomalies de l'O<sub>3</sub> sur la région de l'Océan Indien**

La distribution zonale de la colonne d'O<sub>3</sub> troposphérique aux tropiques est caractérisée par un maximum sur l'Atlantique et un minimum sur le Pacifique. L'Océan Indien se situe entre les deux et est caractérisé par des colonnes d'O<sub>3</sub> troposphériques intermédiaires et une forte variabilité spatio-temporelle. D'autre part, de même que le maximum d'O<sub>3</sub> Atlantique est le résultat d'émissions régionales (Afrique et Amérique du sud), les fortes concentrations d'O<sub>3</sub> sur l'Océan Indien proviennent principalement d'émissions originaires d'Afrique et d'Asie.

#### **L'advection de la pollution asiatique**

L'Asie du Sud est une des régions les plus densément peuplées de la planète et elle est caractérisée par une utilisation de biofuel et du brûlage de biomasse très importante par rapport

aux autres régions. De janvier à mars 1999 a eu lieu la campagne de mesures multiplateforme internationale INDOEX pour caractériser le transport longue distance de pollution de l'Asie du Sud et de l'Est vers l'Océan Indien pendant l'hiver (Lelieveld et al., 2001). Parmi les objectifs principaux on peut retenir (i) la quantification de la contribution anthropique à la distribution des aérosols dans la région de l'Asie du Sud et de l'Océan Indien et leur impact radiatif (ii) l'étude de l'impact des émissions régionales sur la capacité oxydante et l'O<sub>3</sub> troposphérique (Lawrence and Lelieveld, 2010). Cette campagne a montré que la partie nord de l'Océan Indien est caractérisée par des niveaux de pollution très élevés jusqu'à l'ITCZ vers 5°N en cette saison. Les très fortes concentrations de CO observées sont dues au brûlis agricole et à l'utilisation de biofuel alors que les niveaux élevés d'aérosols sont à la fois liés à la combustion de combustibles fossiles et aux feux de biomasse (Lelieveld et al., 2001). Les vents de surface dominants sur l'Asie du Sud pendant l'hiver sont les alizés qui soufflent du Nord-Est pour transporter l'air pollué d'Asie du Sud-Est et du sud du Golfe du Bengale et de la mer d'Arabie jusqu'à l'ITCZ (voir figure 2.5 (a)). Il est à noter que le flux est plutôt de Nord-Ouest le long de la côte occidentale de l'Inde.

Un des effets les plus marquants de l'advection de la pollution asiatique sur l'Océan Indien mis en évidence par INDOEX est la présence d'un nuage brun étendu à l'ensemble de la région de l'Océan Indien du Nord, d'Asie du Sud et du sud-est, l'Indo-Asian Haze (Ramanathan et al., 2001) devenu Southern Asian Wintertime Atmospheric Brown Cloud (SAW-ABC) (Lawrence and Lelieveld, 2010). Les observations INDOEX ont montré que le SAW-ABC est produit par des advections de pollution à deux niveaux : un panache au sein de la couche limite marine et un autre dans une couche d'altitude entre 1 et 3 km. La superposition de ces deux panaches distincts a été attribuée à l'alternance diurne des flux associés aux brises terre-mer (Simpson and Raman, 2004). Pendant la journée, la surface continentale est très chaude et l'air pollué est soulevé jusqu'au sommet de la couche limite vers 2 km. La branche supérieure de la brise mer-terre transporte les masses d'air au-dessus de la couche limite marine entre 1 et 3 km, altitudes favorables au transport à longue distance par les vents dominants. Ce panache d'altitude est caractérisé par de fortes quantités d'aérosols qui sont à l'origine du SAW-ABC mais aussi d'O<sub>3</sub>. Certains profils d'O<sub>3</sub> observés pendant INDOEX sur l'Océan Indien ou la mer d'Arabie sont exemplaires de ces panaches d'altitude caractérisés par des maxima atteignant 80-90 ppbv entre 1 et 3 km (Lelieveld et al., 2001; Lawrence and Lelieveld, 2010). Srivastava et al. (2011) ont complété la vision de la structure verticale de l'O<sub>3</sub> grâce aux observations de la campagne ICARB (*Integrated Campaign for Aerosols, gases and Radiation Budget*) de mars à mai 2006 sur la mer d'Arabie, et le Golfe du Bengale. Cette campagne montre en particulier que l'advection de la pollution depuis la plaine Indo-gangétique conduit à des rapports de mélanges d'O<sub>3</sub> plus élevés dans le panache d'altitude au nord du Golfe du Bengale que ceux observés sur la mer

d'Arabie. En début de soirée pendant la transition entre brises mer-terre et terre-mer un front de pollution se déplace au-dessus de l'océan et les masses d'air polluées peuvent être transportées par les alizés de Nord-Est. Enfin, le soir la brise terre-mer bloque le transport de pollution à quelques dizaines de km de la côte (Simpson and Raman, 2005). Au delà de ce "front de pollution" les concentrations d'O<sub>3</sub> chutent rapidement dans la couche limite marine (10-20 ppbv) en raison d'une destruction efficace. Pendant INDOEX, des rapports de mélanges d'O<sub>3</sub> élevés (50-70 ppbv) ont également été observés dans les masses d'air de la couche limite marine sur la mer d'Arabie (Lal and Lawrence, 2001) mais aussi sur le Golfe du Bengale (Lal et al., 2006). Ces fortes valeurs d'O<sub>3</sub> sont dues à une forte production photochimique liée à la combinaison d'une forte insolation et à des niveaux de NO<sub>x</sub> élevés.

L'advection de la pollution issue du continent asiatique impacte donc principalement les basses couches troposphériques (< 3 km) de l'Océan Indien pendant les saisons en dehors de la mousson d'été asiatique. Les couches supérieures sont impactées par d'autres types de processus qui impliquent d'autres sources d'O<sub>3</sub> et du transport à longue distance.

### **L'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère de l'Océan Indien**

Pendant les campagnes pré-INDOEX et INDOEX de nombreux profils d'O<sub>3</sub> mesurés au-dessus de l'Océan Indien du Nord pendant l'hiver sont caractérisés par des maxima et des filaments d'O<sub>3</sub> dans la moyenne troposphère et haute troposphère. L'origine de ces filaments a été le sujet de nombreuses études (Zachariasse et al., 2000, 2001; De Laat, 2002; Chatfield et al., 2007; Lawrence and Lelieveld, 2010). Selon Zachariasse et al. (2000) 1/3 des profils observés pendant la campagne pré-INDOEX de février-mars 1998 présentent des filaments de très fortes valeurs d'O<sub>3</sub> (jusqu'à 120 ppbv) dans la couche située en dessous de la tropopause entre 100 et 200 hPa. Les rétro-trajectoires issues de ces filaments indiquent une origine proche du Jet d'Ouest SubTropical Nord et un transport vers l'équateur par une circulation anticyclonique. L'origine stratosphérique des masses d'air est identifiée au travers d'indicateurs dynamiques tels que des températures potentielles ou des tourbillons potentiels élevés. Dans certains cas l'absence de marquage dynamique est expliquée par une durée de vie plus longue des caractéristiques stratosphériques chimiques (comme l'O<sub>3</sub>) que dynamiques. Zachariasse et al. (2000) attribuent aussi des couches très sèches avec de fortes concentrations d'O<sub>3</sub> dans la moyenne troposphère à la descente des masses d'air issues des échanges stratosphère-troposphère dans la zone de subsidence anticyclonique de l'Océan Indien. Les données de la campagne INDOEX de l'hiver 1999 ont permis de compléter l'étude de Zachariasse et al. (2000). En effet, presque tous les profils d'O<sub>3</sub> d'INDOEX présentent des

filaments d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère (Zachariasse et al., 2001). L'analyse de ces filaments conduit à une origine stratosphérique de manière similaire à ce qu'ont montré Zachariasse et al. (2000). La nouveauté provient du fait que certains de ces filaments d'O<sub>3</sub> auraient pour origine le transport inter-hémisphérique de masses d'air stratosphérique issues des abords du Jet d'Ouest SubTropical sud. Lorsque ces masses d'air subsistent, elles donnent aussi lieu à de fortes concentrations d'O<sub>3</sub> dans la moyenne troposphère. Le transport inter-hémisphérique de haute altitude est le résultat d'une circulation anticyclonique entre Madagascar et la côte est africaine vers 200 hPa qui est particulièrement marquée en 1999. Dans le cadre d'INDOEX, Chatfield et al. (2007) ont étudié les distributions d'O<sub>3</sub> sur l'Océan Indien du Nord pendant l'hiver à l'aide en particulier des colonnes troposphériques déduites des observations TOMS. Ils attribuent les bandes de colonnes d'O<sub>3</sub> élevées qui s'étendent d'est en ouest sur l'Océan Indien et les fortes valeurs d'O<sub>3</sub> observées à haute altitude par des sondes d'O<sub>3</sub> sur la partie est du domaine à deux processus principaux : (i) les échanges stratosphère–troposphère de manière analogue à Zachariasse et al. (2000, 2001), (ii) le soulèvement de pollution d'Asie du Sud et du sud-est par des nuages convectifs au-dessus de la mer d'Arabie. Pour déterminer l'origine des maxima d'O<sub>3</sub> dans la moyenne et haute troposphère au-dessus de l'Océan Indien pendant la campagne pré-INDOEX de 1995 et 1998, De Laat (2002) ont utilisé un modèle de chimie de transport. Leurs résultats sont en contradiction avec les résultats de Zachariasse et al. (2000, 2001) et de Chatfield et al. (2007) car ils attribuent ces maxima préférentiellement à un transport de panaches de brûlage de biomasse depuis l'Afrique au-dessus de la mer d'Arabie. Le schéma de transport mis en avant consisterait en (i) un soulèvement des masses d'air impactées par la combustion de biomasse (qui a lieu en Afrique équatoriale en cette saison) dans l'ITCZ au sud du continent africain (ii) l'advection de ces masses d'air dans la circulation anticyclonique d'altitude et (iii) la descente dans la zone de subsidence de la circulation de Hadley au-dessus de l'Océan Indien. Un des arguments avancés pour justifier l'hypothèse des feux africains est la corrélation de fortes concentrations de CO simulées avec les maxima d'O<sub>3</sub> observés dans la moyenne troposphère. Dans leur synthèse, Lawrence and Lelieveld (2010) privilégient les hypothèses de Chatfield et al. (2007) pour expliquer les maxima d'O<sub>3</sub> dans la moyenne troposphère observés pendant INDOEX. En effet d'après Chatfield et al. (2007) aucune rétro-trajectoire issue des maxima d'O<sub>3</sub> ne s'est approchée d'une source de LiNO<sub>x</sub> ou bien d'une région potentiellement impactée par la combustion de biomasse.

L'étude présentée au Chapitre 4 de ce manuscrit discute de la contribution potentielle des NO<sub>x</sub> produits par les éclairs ou des émissions du continent africain aux fortes concentrations d'O<sub>3</sub> observées au dessus de la mer d'Arabie pendant l'hiver 2008 par IASI et MOZAIC.

Le sud de l'Océan Indien est aussi marqué par une forte variabilité de l'O<sub>3</sub> troposphérique.

En utilisant les observations spatiales d'O<sub>3</sub> des sondeurs TES (*Technology Experiment Satellite*) et MLS entre 2005 et 2009 [Zhang et al. \(2012\)](#) ont montré l'existence d'un maximum saisonnier d'O<sub>3</sub> au mois de mai dans la moyenne et haute troposphère au-dessus de la partie sud-ouest de l'Océan Indien. Des simulations avec le modèle de chimie transport GEOS-Chem leur ont permis là aussi d'attribuer cette structure à une combinaison particulière émissions/chimie/transport. La contribution des éclairs à la colonne d'O<sub>3</sub> sur cette zone est de l'ordre de 10 DU toute l'année et maximale en mai où elle représente 17 DU, soit 60% de la colonne. Par contre, les feux impactent faiblement l'O<sub>3</sub> dans cette région de janvier à juillet. Les éclairs représentent aussi une contribution significative de l'augmentation d'O<sub>3</sub> observée en S-O-N sur la même région. Plus précisément, les simulations de sensibilité sur les sources de NOx montrent que les LiNOx issus de la région d'Asie équatoriale (Malaisie-Indonésie) produisent de l'ordre de 30% de l'O<sub>3</sub> produit par des LiNOx de manière stable toute l'année avec 2 maxima relatifs en mai et en novembre. Les LiNOx produits en Afrique et en Amérique du sud produisent aussi une partie importante de l'O<sub>3</sub> sur l'Océan Indien équatorial avec des pics qui représentent respectivement 21 et 18% de la production. Cependant, la production de LiNOx ne présente pas les mêmes signatures que la production d'O<sub>3</sub> par les LiNOx avec une production quasiment constante pour l'Asie équatoriale, un minimum de mai à septembre pour l'Amérique du sud et des maxima en avril-mai et octobre-novembre pour l'Afrique centrale. Bien que cela ne soit pas explicité dans le papier de [Zhang et al. \(2012\)](#), il semble que le maximum en mai soit aussi lié au déplacement au nord du jet sous-tropical qui favorise le transport de LiNOx et d'O<sub>3</sub> depuis les régions convectives de l'ITCZ d'Amérique du sud et d'Afrique centrale sur l'Océan Indien du sud. Cette région est une zone de subsidence caractérisée par une circulation anticyclonique dans la troposphère libre dans laquelle les masses d'air riches en O<sub>3</sub> descendent et sont piégées.

Bien que l'étude de [Zhang et al. \(2012\)](#) ne discute que le maximum d'O<sub>3</sub> troposphérique sur l'Océan Indien du sud, les données satellite présentées montrent aussi un maximum d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère au nord de l'Océan Indien de la mer d'Arabie au Golfe du Bengale en mai-juin et octobre-novembre. Nous aborderons ce sujet dans le chapitre 4 consacré à un cas d'étude de fortes concentrations d'O<sub>3</sub> sur cette zone en novembre 2008.

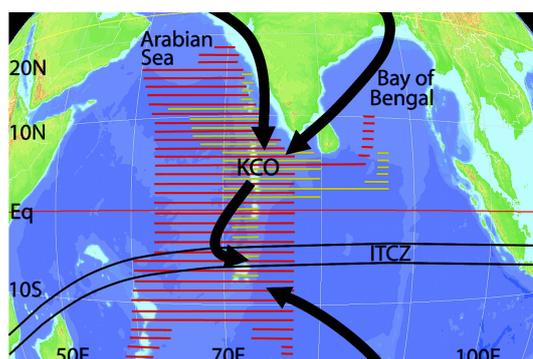


FIGURE 2.7 – Schéma des chemins de transport de pollution d'Asie vers l'Océan Indien et la Zone de Convergence Intertropicale. Les flèches représentent les trajectoires de une à deux semaines de masses d'air issues des couches limites continentales de janvier à mars 1999. – Lelieveld et al. (2001).

### 2.3.3 L'Anticyclone de la Mousson Asiatique et la composition atmosphérique

Les exemples précédents ont montré que dans les tropiques, l'O<sub>3</sub> troposphérique est contrôlé par les émissions (feux, LiNO<sub>x</sub> et anthropique), la convection (transport vertical) et la circulation de grande échelle (cellules de Walker, jet sous-tropical, zones de subsidence). Les zones de moussons sont aussi fortement impactées par la convection. Barret et al. (2010) montrent l'impact du transport convectif et de la production de LiNO<sub>x</sub> pendant la mousson d'Afrique de l'ouest sur l'O<sub>3</sub> troposphérique. Leur étude montre que les LiNO<sub>x</sub> ont un fort impact sur l'O<sub>3</sub> (avec une augmentation de 10 à 25 ppbv) dans la zone de dérainement de la mousson, c'est à dire l'Atlantique tropical Nord jusqu'aux côtes d'Amérique du sud. Dans le cas de la mousson asiatique, l'impact de la convection (et des LiNO<sub>x</sub>) sur la composition est fortement contrôlé par la présence de l'AMA dans la haute troposphère.

#### L'AMA, réservoir de pollution

C'est grâce au sondeur infrarouge spatial MLS à bord du satellite Aura, capable de mesurer le CO, l'O<sub>3</sub> et la vapeur d'eau dans la haute troposphère, que la structure chimique de l'UTLS asiatique pendant la mousson a pu être la mieux documentée. Basé sur des observations de MLS, Li et al. (2005) montrent des valeurs élevées de CO confinées dans l'AMA à 147 hPa. Cette anomalie de CO dans l'UTLS est visible sur la figure 2.8 qui présente les rapports de mélanges issus d'analyses du CO de MLS à 100, 150 et 220 hPa pour le mois de juillet 2009 (Barret et al., 2008). Li et al. (2005) attribuent ces fortes concentrations de CO au transport de masses d'air

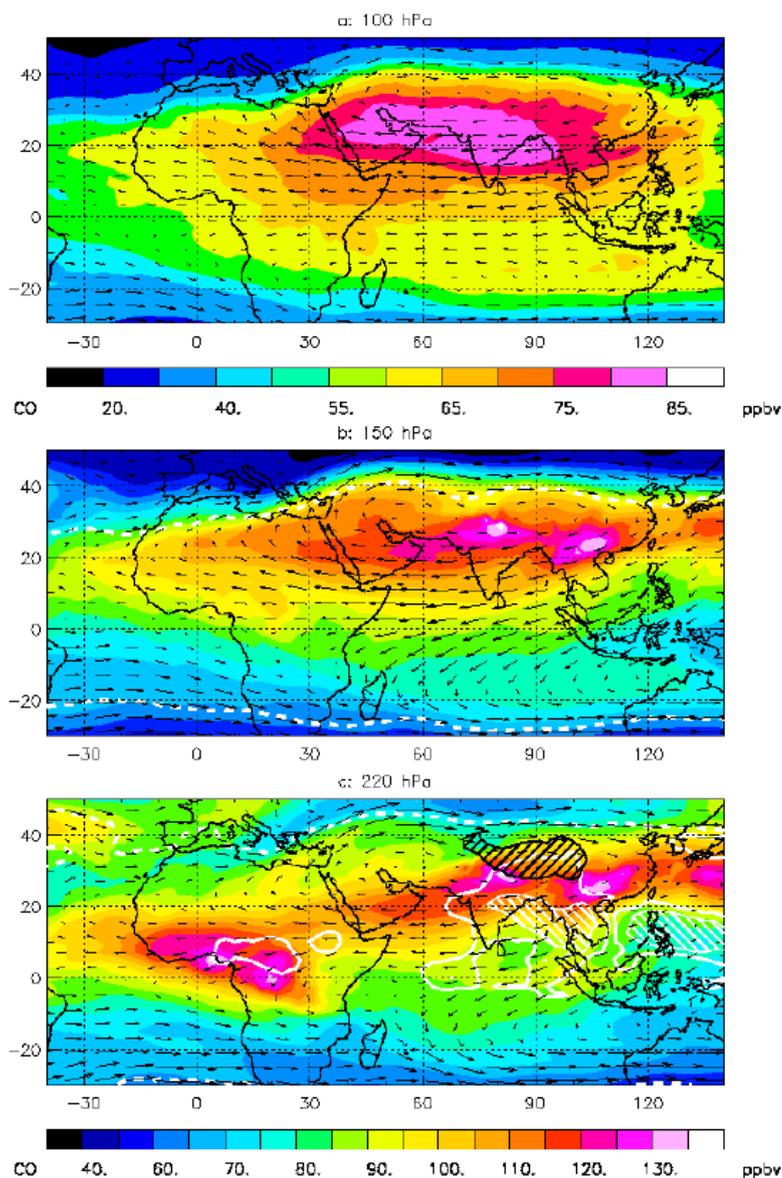


FIGURE 2.8 – Distributions des rapports de mélange du CO issues des analyses des observations MLS assimilées dans le modèle de chimie transport MOCAGE pour Juillet 2006 (a) 100 hPa (b) 150 hPa (c) 220 hPa. Les vents horizontaux sont issus des analyses ECMWF. Les pointillés blancs correspondent à la tropopause. Le contour blanc continu du panneau (c) représente les OLR à 200W/m<sup>2</sup> correspondant à la convection profonde. Les zones dont l'altitude dépassent les 3000 m (Himalaya et plateau tibétain) sont hachurées noires. – Barret et al., 2008

asiatiques polluées de la couche limite du nord-est de l'Inde et du sud-ouest de la Chine vers l'UTLS par la convection ou par soulèvement orographique et leur piégeage dans la circulation anticyclonique. Les vents forts de l'anticyclone ont pour effet d'isoler les masses d'air des régions

adjacentes. [Park et al. \(2007\)](#) vont plus loin en utilisant les données de CO mais aussi d'O<sub>3</sub> et de vapeur d'eau de MLS pour tenter d'expliquer les processus de transport au sein de l'AMA. Dans la haute troposphère (216 hPa) les observations MLS indiquent que le contenu en vapeur d'eau est faible au centre de l'AMA et maximal dans la zone de recouvrement de l'AMA et de la région convective identifiée par les minima d'OLR au sud-est de l'anticyclone. Ce résultat indique logiquement qu'à l'altitude de détrainement des systèmes convectifs ( $\sim 12$  km), la vapeur d'eau et les nuages convectifs sont corrélés. Les observations MLS montrent par contre que, dans la basse stratosphère à 100 hPa, l'AMA est caractérisé par de fortes concentrations de H<sub>2</sub>O et CO et des concentrations d'O<sub>3</sub> faibles. [Gettelman et al. \(2004\)](#) documentent les fortes valeurs de H<sub>2</sub>O et les faibles valeurs d'O<sub>3</sub> à l'intérieur de l'AMA dans la basse stratosphère à partir des données des sondeurs en visée au limbe HALOE et SAGE de même que [Randel and Park \(2006\)](#) dans la haute troposphère à l'aide des observations faiblement résolues verticalement du sondeur en visée nadir AIRS. L'ensemble de ces observations indiquent que, jusqu'à la basse stratosphère, les masses d'air au sein de l'AMA proviennent des basses couches de la troposphère caractérisées par des valeurs d'O<sub>3</sub> faibles et de CO et H<sub>2</sub>O élevées par rapport aux masses d'air de l'UTLS environnantes (particulièrement de la basse stratosphère au nord de l'AMA). La vapeur d'eau serait donc transportée de manière analogue au CO dans la basse stratosphère. D'après [Park et al. \(2007\)](#), le transport jusqu'à la tropopause n'est sans doute pas directement lié à la convection qui détraîne majoritairement autour de 12 km. D'après [Dessler and Sherwood \(2004\)](#) les overshoots convectifs auraient d'ailleurs un impact mineur sur la région de la tropopause tropicale. Les vitesses verticales de grande échelle des réanalyses ERA40 ainsi que des simulations de modèles climatiques utilisés par [Park et al. \(2007\)](#) accréditent un transport vertical lent à travers la région de la tropopause qui est plus fort sur le flanc Est de l'AMA. Dans leur étude suivante [Park et al. \(2009\)](#) utilisent un modèle de chimie transport pour étudier les chemins de transport du CO dans la région de la mousson d'été asiatique. Ils concluent que le CO issu des régions polluées d'Inde et d'Asie du Sud-Est est transporté par la convection profonde jusqu'à 12 km pour être ensuite advecté par la circulation de mousson de grande échelle jusqu'à la région de la tropopause (16 km) ce qui est schématisé sur la figure 2.9 issue de leur article. [Vernier et al. \(2011\)](#) montrent un maximum de particules dans la haute troposphère tropicale au niveau de l'AMA grâce au lidar spatial CALIPSO. Enfin, les observations de cyanure d'hydrogène (HCN), gaz issu des feux de biomasse, du sondeur ACE-FTS mettent aussi en évidence de fortes anomalies au sein de l'AMA et, au-dessus de la tropopause, un transport dans la circulation de Brewer Dobson ([Randel et al., 2010](#)). Ces observations montrent donc que la circulation associée à la mousson fournit un chemin de transport efficace de la pollution d'Inde et d'Asie du Sud est vers la stratosphère globale. En se basant sur les simulations du modèle de chimie transport MOZART, [Gettelman et al. \(2004\)](#)

affirment que la circulation de la mousson d'été asiatique est responsable de près de 75% du flux ascendant de H<sub>2</sub>O au niveau de la tropopause tropicale pendant les mois d'été. Finalement, [Garny and Randel \(2013\)](#) montrent que les variations temporelles de CO sont moins corrélées avec les faibles valeurs de PV (caractéristiques de l'intérieur de l'AMA) dans la haute troposphère que dans la région de la tropopause ce qui accredité aussi un transport advectif lent entre la zone de détrainement et la tropopause. En effet les plus faibles corrélations à basse altitude sont dues au fait que le transport vertical de CO de la couche limite vers la haute troposphère dépend de la conjonction de la convection et des émissions. Une forte convection au-dessus de zones faiblement émettrices résulte en effet en un renforcement de l'AMA (voir section 2.2.4) sans augmentation de CO.

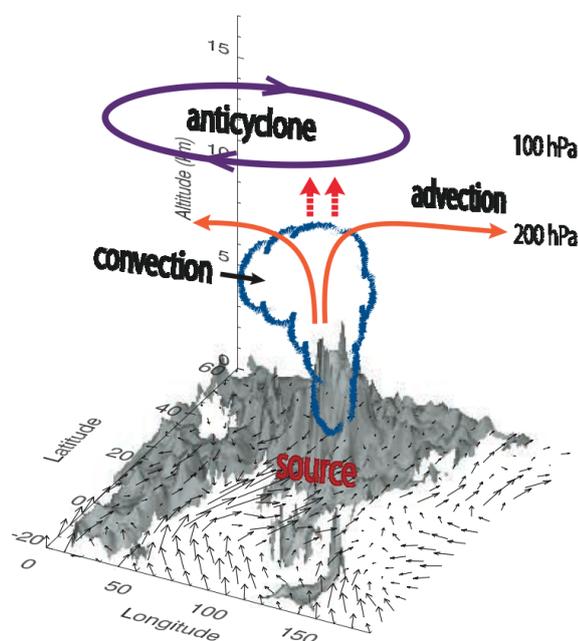


FIGURE 2.9 – Schéma représentant les principaux processus de transport pendant la mousson d'été asiatique. Le nuage sur la pente sud du plateau tibétain représente la convection profonde de la mousson. Les flèches oranges représentent l'advection horizontale alors que les flèches tiretées rouges représentent le transport vertical de grande échelle. L'AMA est représenté par la ligne pleine pourpre. – [Park et al. \(2009\)](#).

### Les chemins de transport de la couche limite vers l'AMA

Les études citées précédemment ([Park et al., 2007, 2009](#)) attribuent le transport vertical de polluants de la couche limite vers l'AMA à la convection dans la région de la mousson d'été

asiatique, c'est à dire essentiellement l'Inde et le Golfe du Bengale. [Li et al. \(2005\)](#) attribuent le transport vertical de pollution (CO, aérosols) à la convection orographique forcée par le flux d'ouest qui vient buter sur la pente sud de l'Himalaya et à la convection au sud ouest de la Chine provoquée par une convergence dans les basses couches. En ce qui concerne la caractérisation des chemins de transport, ces études reposent en grande partie sur des modèles globaux (modèle de chimie transport, modèles de climat, réanalyses) qui ne sont pas capables de résoudre la convection de manière explicite. Dans ces modèles, les systèmes convectifs paramétrés détraînent généralement vers 12 km et seuls les vents verticaux de grande échelle peuvent transporter les polluants à plus haute altitude. D'autres études se sont penchées sur ce problème en utilisant des approches différentes dont la modélisation lagrangienne.

[Fu et al. \(2006\)](#) remettent en cause l'hypothèse de la région de la Mousson d'été asiatique comme zone principale du transport vertical vers l'AMA en remarquant que le maximum de vapeur d'eau à 100 hPa est situé au nord de la zone de convection de la mousson. Or lors d'un transport isentropique lent (plusieurs semaines) dans la haute troposphère, les masses d'air seraient soumises de manière répétée à des anomalies de température froide qui auraient tendance à réduire la quantité de vapeur d'eau. En outre, les données du radar TRMM/PR indiquent que le sommet des systèmes convectifs profonds ( $> 10\text{km}$ ) est plus élevé au-dessus du plateau tibétain et de la pente sud de l'Himalaya que de la mousson d'été asiatique. Ce constat rejoint en partie les conclusions de [Houze et al. \(2007\)](#) sur la caractérisation des systèmes convectifs pendant la mousson d'été asiatique. En utilisant des simulations de transport lagrangien initié sur les anomalies de CO et de vapeur d'eau observées par MLS, [Fu et al. \(2006\)](#) montrent que la convection du plateau tibétain est plus profonde, et détraîne plus de vapeur d'eau de CO et de glace à la tropopause que la convection de la région de la mousson d'été asiatique. En effet, la température potentielle de l'air à la surface du plateau tibétain est beaucoup plus élevée ( $30^\circ$  à  $40^\circ$  K) que dans les régions de la mousson d'été asiatique, et des valeurs beaucoup plus faibles d'humidité sont donc nécessaires pour transporter des masses d'air par convection jusqu'à la tropopause. Ces masses d'air riches en CO et en H<sub>2</sub>O sont alors transportées vers la région de la mousson d'été asiatique et entrent dans la circulation stratosphérique globale. La région d'entrée de masses d'air dans la stratosphère est importante car c'est la température de la tropopause qui va contrôler la quantité d'eau entrante. Le Pacifique de l'ouest est une région privilégiée pour le transport de masses d'air troposphérique dans la stratosphère mais c'est aussi la région où la tropopause est la plus froide et qui a été surnommée le "cold-trap". Des masses d'air qui pénètrent dans la basse stratosphère sans passer par ce "cold-trap" représentent donc une source potentiellement importante d'eau dans la basse stratosphère. Les résultats de [Fu et al. \(2006\)](#)

présentent donc la convection tibétaine comme potentiellement importante pour l'humidification de la basse stratosphère tropicale car ce chemin de transport court-circuite le cold-trap. En utilisant aussi une approche lagrangienne, [Wright et al. \(2011\)](#) montrent que les régions convectives les plus importantes pour le transport de vapeur d'eau dans la basse stratosphère pendant la mousson d'été asiatique sont (i) le Golfe du Bengal et l'Inde, (ii) la mer de Chine et le Pacifique tropical nord-ouest, et (iii) le plateau tibétain et le versant sud de l'Himalaya. Leurs résultats ne se limitant pas à l'AMA, ne contredisent pas ceux de [Fu et al. \(2006\)](#) mais montrent que le plateau tibétain ne joue pas le rôle le plus important pour l'humidification de l'ensemble de la basse stratosphère tropicale pendant la mousson d'été asiatique.

Pour déterminer une climatologie des chemins de transport de la couche limite vers la tropopause dans la région de la mousson asiatique, [Chen et al. \(2012\)](#) utilisent le modèle lagrangien FLEXPART forcé par les analyses du système de prévision global NCAR/NCEP dont la résolution est de 1°x1° sur 26 niveaux verticaux. Leurs simulations mettent en avant 3 régions principales pour ce transport : la région du Pacifique de l'ouest et de la mer de Chine du sud avec une contribution de 38%, le Golfe du Bengale et le continent sud asiatique pour 21% et le plateau tibétain et le versant sud de l'Himalaya pour 12%. Ces résultats contredisent l'étude de [Fu et al. \(2006\)](#) et sont proches de ce que propose [Park et al. \(2009\)](#). Néanmoins les résultats de [Chen et al. \(2012\)](#) et [Park et al. \(2009\)](#) sont remis en question par [Heath and Fuelberg \(2013\)](#) qui considèrent que les résolutions utilisées ne permettent pas de représenter les systèmes convectifs de méso-échelle explicitement et doivent donc faire confiance à des paramétrisations de la convection. [Heath and Fuelberg \(2013\)](#) ont donc cherché à identifier les zones convectives qui impactent le plus la composition de l'AMA (en H<sub>2</sub>O) en effectuant une simulation de dispersion lagrangienne forcée par des champs météorologiques issus d'une simulation du modèle WRF à une résolution qui permet de résoudre explicitement la convection (4 km). Ils arrivent aux mêmes conclusions que [Fu et al. \(2006\)](#), de manière plus quantitative. En effet, d'après leurs calculs, 77% des masses d'air issues de la couche limite et transportées par la convection (en moins de 6h) dans l'AMA à 100 hPa proviendraient du plateau tibétain et 19% du versant sud de l'Himalaya. Il est à noter que leur étude repose sur une période de 10 jours seulement (10-20 août 2012).

Dans leur étude basée exclusivement sur des simulations de dispersion lagrangienne, [Bergman et al. \(2013\)](#) identifient un conduit de transport bien défini centré au sud du plateau tibétain dans la moyenne et haute troposphère et dans lequel les masses d'air soulevées par la convection transitent pour atteindre l'AMA. Ils identifient le plateau tibétain et une grande partie de l'Inde et de l'Asie du Sud-Est comme les régions les plus importantes pour approvisionner l'AMA en air de la couche limite. Dans le cas de [Bergman et al. \(2013\)](#), l'ensemble des trajectoires initiées

dans l'AMA qui ont croisé la couche limite dans les 30 jours sont prises en compte alors que [Heath and Fuelberg \(2013\)](#) considèrent une durée maximale de 6 h pour ne tenir compte que du transport convectif rapide. Malgré les différences méthodologiques et de modèles, les régions sources des deux études ont une grande zone de recouvrement, à savoir le versant sud de l'Himalaya (en particulier le nord-est de l'Inde, le Népal et la Birmanie) et le sud du plateau tibétain. A la suite de [Heath and Fuelberg \(2013\)](#), il est important de remarquer que du fait des faibles sources de pollution locale la convection du plateau tibétain n'est probablement pas responsable du transport de grande quantité de pollution dans l'AMA. A moins que, comme le propose [Fu et al. \(2006\)](#) sans le démontrer, la convergence des masses d'air pompe des masses d'air polluées depuis la région de la mousson d'été asiatique. Enfin, alors que [Heath and Fuelberg \(2013\)](#) aussi bien que [Bergman et al. \(2013\)](#) ont déterminé le chemin de transport de la couche limite du Plateau Tibétain vers la tropopause au sein de l'AMA, [Chen et al. \(2012\)](#) ont caractérisé les chemins de transport de la couche limite vers la tropopause dans la région de la mousson d'été asiatique. Les résultats de [Chen et al. \(2012\)](#) englobent donc une région de la haute troposphère plus vaste que celles de [Heath and Fuelberg \(2013\)](#) ou [Bergman et al. \(2013\)](#) ce qui peut expliquer une partie des différences de résultats.

Il reste donc de larges incertitudes sur la part relative du transport vertical de grande échelle et de la convection sur le transport de polluants (CO) jusqu'à la stratosphère qui pourront en partie être levées par des simulations à haute résolution. (voir chapitre 5).

### **Le transport longue distance de la pollution asiatique**

Bien que l'AMA soit une région dynamiquement isolée, les polluants qui s'y accumulent sont transportés vers d'autres régions. Tout d'abord, comme cela a été montré dans la section 2.2.4 avec [Popovic and Plumb \(2001\)](#); [Garny and Randel \(2013\)](#), l'AMA est soumis à des phases cycliques d'extension et de rupture. De plus, il est caractérisé par un fort gradient de PV du côté nord où se situe la basse stratosphère extra-tropicale et le jet-sous-tropical mais par un gradient plus faible en son centre et du côté de la haute troposphère tropicale au sud ([Garny and Randel, 2013](#)). Le flanc tropical représente donc une barrière dynamique et est soumis à un mélange plus important associé à des elongations et ruptures plus fréquentes et favorisant le transport vers l'ouest. D'autre part, la partie supérieure de l'AMA ( $\sim 100$  hPa) présente un confinement des masses d'air plus fort que les couches inférieures (150-250 hPa) comme cela a été montré par les corrélations CO/PV de [Garny and Randel \(2013\)](#). Les analyses de CO MLS assimilées dans le modèle de chimie transport MOCAGE ont permis de documenter le transport de masses d'air

riches en CO à 147 hPa jusqu'à l'Atlantique à la suite d'une élongation/rupture de l'AMA sur son flanc sud fin juillet 2006 (Barret et al., 2008). Lors de cet événement, un avion du programme MOZAIC a d'ailleurs détecté un pic de CO dans la haute troposphère (vers 12 km) au-dessus de l'Afrique du Nord. La simulation du modèle sans assimilation ne permet pas de reproduire ce pic contrairement à l'assimilation des données MLS, ce qui met en évidence un problème dans le transport vertical du modèle dans la région de la mousson asiatique. Il est aussi à noter que les analyses produisent de fortes concentrations de CO au-dessus de l'Afrique de l'ouest jusqu'à 220 hPa et jusqu'à 100 hPa à l'intérieur de l'AMA ce qui met en évidence une différence importante entre la mousson d'Afrique de l'ouest et la mousson d'Asie en ce qui concerne le transport vertical. Jiang et al. (2007) s'intéressent aux événements de transport dans la direction opposée, c'est à dire au-dessus du Pacifique nord-ouest. Ils montrent que des événements de ce type ont lieu principalement entre 220 et 150 hPa et pendant la Mousson d'été asiatique.

Le transport à longue distance de la pollution asiatique via l'AMA, a un de ses impacts les plus importants et les plus documentés du côté ouest. Les données MOZAIC ont mis en évidence un maximum d'O<sub>3</sub> dans la troposphère moyenne (400 hPa) dans la région du Moyen-Orient. A l'aide de simulations du modèle de chimie transport GEOS-Chem, Li et al. (2001) ont montré que ce maximum est dû en grande partie (20-30%) aux émissions anthropiques venues des régions voisines et de manière moins importante aux éclairs (10-15%). En particulier, le maximum sur la partie sud de la région proviendrait principalement d'Asie via le transport par le Jet d'Est Tropical sur le flanc sud de l'AMA et la descente des masses d'air polluées dans la zone de subsidence du Moyen-Orient et de la Méditerranée de l'est. Ce chemin de transport de pollution asiatique via la haute troposphère est repris dans l'étude sur le carrefour global de pollution de l'air du bassin Méditerranéen (Lelieveld et al., 2001). Les observations aéroportées au-dessus de la Méditerranée de l'Est pendant la campagne MINOS en 2001 ont en effet permis de déterminer une origine asiatique pour certains panaches de pollution. Des simulations de rétro-trajectoires montrent que ces masses d'air soulevées dans l'AMA par la convection ont été transportées au-dessus de l'Afrique du Nord par le Jet d'Est Tropical (comme cela a aussi été montré par Barret et al. (2008)) puis vers le nord au dessus du bassin méditerranéen. (Lelieveld et al., 2001). Les observations spatiales ont plus récemment permis de documenter ce phénomène à l'échelle régionale comme le montrent (Richards et al., 2013) avec les mesures des sondeurs GOME-2 et TES. Leurs simulations avec un modèle de chimie de transport confirment l'impact des émissions asiatiques sur le bilan de l'O<sub>3</sub> du bassin Est méditerranéen : dominant dans la haute troposphère, important dans la moyenne troposphère et négligeable dans la couche limite. La carte des rapports de mélange de l'O<sub>3</sub> entre la surface et 300 hPa sur la figure 2.6 obtenue à

partir des données IASI-SOFRID montre aussi clairement le maximum d'O<sub>3</sub> sur le Moyen Orient.

Ce chapitre 2 présentant l'état de l'art des anomalies de distributions d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère au-dessus des régions de l'Océan Indien et de l'Asie du Sud, fourni les différentes hypothèses qui n'ont aujourd'hui pas trouvées de consensus. Cette thèse propose, avec la combinaison d'outils d'observations et de modélisation décrit dans le chapitre suivant (chapitre 3), d'étudier à travers deux cas d'étude, l'origine et le transport de ces anomalies d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère au-dessus des régions de l'Océan Indien (chapitre 4) et de l'Asie du Sud (chapitre 5) et de prendre part à ces hypothèses.

# De l'observation à la modélisation

---

Le transport de pollution dans la haute troposphère a lieu à l'échelle intercontinentale alors que les systèmes convectifs qui sont responsables du mélange vertical des polluants sont des processus qui ont lieu à des échelles de quelques dizaines à quelques centaines de kilomètres. Pour étudier ce transport et la transformation photochimique des polluants qui a lieu pendant le transport il est donc nécessaire de faire appel à des outils d'observation et de modélisation multi-échelle. En ce qui concerne la chimie, l'instrument IASI permet d'avoir une vision régionale et quotidienne des distributions d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère avec une résolution verticale et une précision limitées. Les observations aéroportées des concentrations de CO et d'O<sub>3</sub> par les instruments du programme MOZAIC-IAGOS sont sporadiques et restreintes aux couloirs aériens mais sont très bien résolues spatio-temporellement et possèdent une grande précision. En ce qui concerne la situation météorologique, les données de la plate-forme spatiale TRMM permettent une caractérisation tri-dimensionnelle des systèmes convectifs et les données des satellites géostationnaires Meteosat sont utilisées pour le suivi continu de la couverture nuageuse. L'ensemble de ces observations et leurs principales caractéristiques sont décrites dans la section 3.1.

Pour comprendre les processus d'émissions, de chimie et de transport responsables des distributions observées nous avons eu recours de manière complémentaire à 2 modèles numériques très différents. Le modèle de dispersion lagrangien FLEXPART est utilisé à grande échelle pour déterminer les régions sources à prendre en compte dans le cadre de nos cas d'étude. Le modèle méso-échelle Méso-NH couplant météorologie et chimie est appliqué sur les domaines identifiés par FLEXPART pour reproduire les processus dynamiques et chimiques à haute résolution et caractériser leur impact sur la composition de la haute troposphère. Une brève description de ces modèles et de leur mise en place est donnée dans la section 3.2.

## 3.1 Observations spatiales et aéroportées

### 3.1.1 Données spatiales IASI

Le sondeur infrarouge IASI (*Interféromètre Atmosphérique de Sondage Infrarouge*) a été développé par le CNES dans le but d'améliorer les prévisions météorologiques à moyen terme

et de contribuer à l'étude du climat. Les deux premiers instruments, IASI-A et IASI-B, sont actuellement sur orbite à bord des deux satellites météorologiques MetOp-A et B de l'agence EUMETSAT lancés en 2006 et 2012. Le troisième sondeur, IASI-C doit suivre en 2017. Ces plate-formes sont toutes deux en orbite polaire héliosynchrone basse, à une altitude de 817 km et fonctionneront en parallèle aussi longtemps que les capacités de MetOp-A seront disponibles.

IASI est un spectromètre à transformée de Fourier qui mesure le rayonnement infrarouge thermique émis par le système Terre-atmosphère. Il possède une résolution spectrale de  $0.5 \text{ cm}^{-1}$  entre  $645$  à  $2760 \text{ cm}^{-1}$ . Grâce à son champ de vue de  $48^\circ$  de part et d'autre de la trace du satellite (Figure 3.1), IASI permet une couverture spatio-temporelle exceptionnelle, avec une revisite 2 fois par jour (le matin vers 9h30 et le soir vers 21h30 heure solaire locale) de chaque scène. Les pixels sont échantillonnés par groupe de 4 et possèdent un diamètre de 12 km avec un espacement de 25 km au nadir (Figure 3.1). Conçu pour mesurer les profils de température et de vapeur d'eau atmosphériques, IASI permet aussi de quantifier le contenu de gaz atmosphériques réactifs tels que le CO (George et al., 2009; De Wachter et al., 2012) et l'O<sub>3</sub> (Barret et al., 2011; Dufour et al., 2012) et de gaz à effet de serre comme le méthane (Crevoisier et al., 2009). Il a aussi permis la détection d'un certain nombre de gaz traces dans la troposphère à l'échelle globale (Lieven et al., 2009). Les données de température et de vapeur d'eau fournies par IASI alimentent les modèles de prévision météorologiques, les données de CO sont assimilées en NRT (*Near Real Time*) dans le système IFS (*Integrated Forecasting System*) de ECMWF et ont été utilisées pour l'estimation "top-down" des émissions globales de CO (Stavrakou and Müller, 2006).

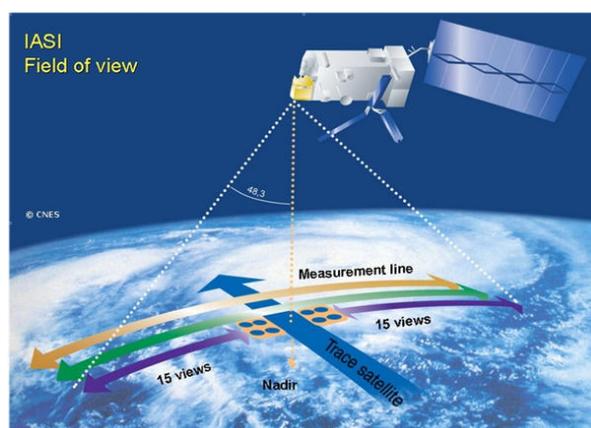


FIGURE 3.1 – Principe d'acquisition des données IASI, par balayage transversal à la trace du satellite. – CNES

Les profils d'O<sub>3</sub> utilisés dans la thèse sont extraits des radiances IASI avec la chaîne de restitution SOFRID (*Software for a Fast Retrieval of IASI Data*) développée au Laboratoire d'Aérodologie

par l'équipe 'Ozone et Précurseurs'. Cette chaîne de traitement ultra-rapide est basée sur le code de transfert radiatif opérationnel RTTOV (*Radiative Transfer for TOVS*) communautaire (Saunders et al., 1999; Matricardi et al., 2004) développé conjointement par les centres météorologiques européens (ECMWF, UKMO, KNMI et Météo-France) et mis à disposition par le NWPSAF. La restitution est effectuée par la méthode d'estimation optimale (Rodgers, 2000) à l'aide du code 1D-Var développé au UKMO (Pavelin et al., 2008) et mis à disposition par le NWPSAF. Les données produites par SOFRID au Laboratoire d'Aérodologie sont des profils verticaux de CO et d'O<sub>3</sub> et leurs matrices d'erreurs associées stockées dans des fichiers binaires auto-descriptifs HDF5-EOS.

Les irradiances infrarouges mesurées au sommet de l'atmosphère sont impactées par la couverture nuageuse. Les nuages absorbent le rayonnement infra-rouge émis par la surface de la Terre et réémettent un rayonnement à une température plus faible aussi bien vers la surface de la Terre que vers les plus hautes couches de l'atmosphère. Le signal mesuré au sommet de l'atmosphère est donc plus ou moins atténué en présence de nuages, selon leur type, leur altitude et leur épaisseur optique. De plus, les signatures spectrales de certaines couches atmosphériques situées sous le nuage disparaissent. A l'heure actuelle, les algorithmes de restitution des données chimiques ne prennent pas en compte la couverture nuageuse et travaillent uniquement à partir de pixels dits en ciel clair. La différence entre ciel clair et nuageux se fait de manière relativement empirique à partir de la fraction nuageuse associée à chaque pixel IASI et déterminée à l'aide des données du radiomètre haute-résolution (1 km) AVHRR (*Advanced Very High Resolution Radiometer*). Dans le cas des restitutions par le logiciel SOFRID, le terme ciel clair s'applique aux pixels pour lesquels la couverture nuageuse est <25%. Au delà de ce seuil, la qualité des ajustements entre spectre modélisé et spectre observé se détériore de manière significative. La période de mousson, caractérisée par la présence fréquente de nuages étendus et hauts, limite donc l'observation dans l'infrarouge thermique. Cependant, la revisite deux fois par jour permet de pallier en partie à cet inconvénient.

Barret et al. (2011) décrivent le logiciel SOFRID et valident les premières données d'O<sub>3</sub> troposphérique produites sur 6 mois à l'échelle globale avec les radiosondages d'O<sub>3</sub> des réseaux internationaux (WOUDC, SHADOZ). Ils se sont particulièrement intéressés à la variabilité intra-saisonniers de l'O<sub>3</sub> troposphérique en Asie du Sud détectée par IASI et validée par les données aéroportées du programme MOZAIC-IAGOS, unique source de données *in-situ* continue au centre de l'Inde. Dans leur étude Dufour et al. (2012) évaluent les données d'O<sub>3</sub> troposphériques produites par les chaînes de restitution développées au LISA (KOPRA-FIT), au Laboratoire

d’Aérologie (SOFRID) et à l’ULB–LATMOS (FORLI) avec les radiosondages globaux pour une période d’une année complète (2008).

D’après l’analyse du contenu en information effectuée par [Dufour et al. \(2012\)](#), les profils d’O<sub>3</sub> tropicaux restitués à partir de IASI avec le logiciel SOFRID contiennent environ 3 éléments d’information indépendants au total et 1.4 pour la troposphère (0–16 km) et 1.2 pour l’UTLS (11–20 km), résultats équivalents à ceux des chaînes de traitement KOPRA–FIT et FORLI. [Barret et al. \(2011\)](#) estiment le nombre d’éléments d’information indépendants au-dessus de la mer d’Arabie à 0.8 pour la troposphère (Surface–225 hPa) et à 0.9 pour l’UTLS (225–78 hPa) ce qui est proche des résultats de [Dufour et al. \(2012\)](#) dont les couches sont définies différemment. Ces résultats montrent que IASI fournit une information quasiment indépendante sur l’O<sub>3</sub> contenu dans ces deux couches atmosphériques. En ce qui concerne la validité des données, [Dufour et al. \(2012\)](#) évaluent le biais entre les sondes d’O<sub>3</sub> et les données IASI–SOFRID à  $18 \pm 19\%$  dans l’UTLS aux tropiques et à  $13 \pm 16\%$  et  $24 \pm 11\%$  pour les logiciels FORLI et KOPRA–FIT. Une surestimation importante (10 à 15%) de l’O<sub>3</sub> dans l’UTLS des latitudes moyennes est aussi mise en évidence par [Dufour et al. \(2012\)](#) pour les trois algorithmes de restitution. Malgré la présence de ce biais, les données d’O<sub>3</sub> IASI sont particulièrement adaptées pour étudier les variations d’O<sub>3</sub> dans l’UTLS. En effet, [Barret et al. \(2011\)](#) calculent un coefficient de corrélation R de 0.93 entre les colonnes d’O<sub>3</sub> de IASI et celles des sondes pour les latitudes inférieures à 40° contre 0.81 évalué par [Dufour et al. \(2012\)](#) pour les tropiques.

Bien que le sondeur spatial IASI fournisse une couverture globale, ses données possèdent une résolution verticale et une précision limitée et ne fournissent pas d’information en présence de nuages. Ces observations nécessitent donc d’être complétées avec des mesures *in-situ*, précises et parfaitement résolues spatialement.

### **3.1.2 Données aéroportées MOZAIC**

Le programme européen MOZAIC (*Measurements of OZone and water vapour by in-service Airbus airCraft*) résulte d’une collaboration initiée en 1993 entre scientifiques, industriels de l’aéronautique et compagnies aériennes qui se sont associés dans le but de fournir des données de vapeur d’eau et d’O<sub>3</sub> dans la haute troposphère (entre 9–12 km) pour évaluer l’impact de la flotte aérienne commerciale sur l’atmosphère. Le projet s’est développé au-delà de la durée de 2 ans initialement prévue afin d’étudier les processus physiques et chimiques troposphériques sur le long terme et de valider les modèles globaux de chimie et de transport ([www.iagos.fr](http://www.iagos.fr) and [Marenco](#)

et al., 1998). Le premier vol MOZAIC a eu lieu en 1994 et le programme a ensuite connu son apogée en décembre 2001 avec une flotte de 5 avions et des vols couvrant les latitudes moyennes de l'hémisphère nord (transatlantiques et transpacifiques) mais aussi les tropiques avec des vols vers l'Afrique, l'Asie du Sud et l'Amérique du Sud. En 2005 le programme MOZAIC ne possède plus que 3 avions effectuant essentiellement des vols transatlantiques. Le programme IAGOS (*In-service Aircraft for a Global Observing System*) prend le relais du programme MOZAIC en 2011 en fédérant les différents acteurs au sein d'une infrastructure de recherche. Ce programme possède actuellement 5 avions équipés (Figure 3.2), avec une prévision de 20 pour 2020. Cette année (2014) clôture le programme MOZAIC avec la désinstallation des instruments de mesures du dernier avion.

Les données de CO et d'O<sub>3</sub> présentées dans le chapitre 4 ont été mesurées lors de plusieurs vols entre l'Inde centrale (Hyderabad, 17.2°N, 78.3°E) et l'Europe (Francfort, 50°N, 8.6°E). Basé sur le principe d'absorption ultraviolet à double colonne, la précision des mesures d'O<sub>3</sub> est estimée à  $\pm 2$  ppbv ( $\sim 2\%$ ) pour un temps de réponse de 4s (Thouret et al., 1998) ce qui correspond à une résolution verticale de 20–30 m au décollage et à l'atterrissage et à une résolution horizontale d'environ 1 km en altitude de croisière. Concernant la mesure du CO qui s'appuie sur un analyseur infrarouge, on estime la précision à  $\pm 5$  ppbv ( $\sim 5\%$ ) pour un temps de réponse de 30s (Nédélec et al., 2003). Les mesures sont échantillonnées toutes les 4s entre le décollage et l'atterrissage de l'avion, elles sont géolocalisées (latitude, longitude et pression) et livrées avec des mesures météorologiques (direction et force du vent, humidité et température). MOZAIC–IAGOS couvre les principaux itinéraires des avions de ligne et fournit des observations *in-situ* de la composition de l'UTLS, couche atmosphérique peu documentée de manière régulière et sur le long terme par d'autres types d'observations. Les ballons météorologiques ne mesurent que l'humidité et la température, la composition de l'UTLS n'est documentée en des points précis du globe, avec une fréquence relativement faible (quelques ballons par mois), que par les radiosondes d'O<sub>3</sub>.

La composition atmosphérique de la région de l'Océan Indien a été fortement documentée lors du programme INDOEX entre 1998 et 2001 (Lelieveld et al., 2001) mais reste particulièrement dénuée d'observations régulières, ce qui entrave l'étude des processus physico-chimiques qui la contrôlent. Néanmoins, la combinaison d'observations spatiales (IASI et TRMM) et aéroportées (MOZAIC) nous a permis d'identifier des cas d'études qui éclairent sur le transport de polluants dans cette région.

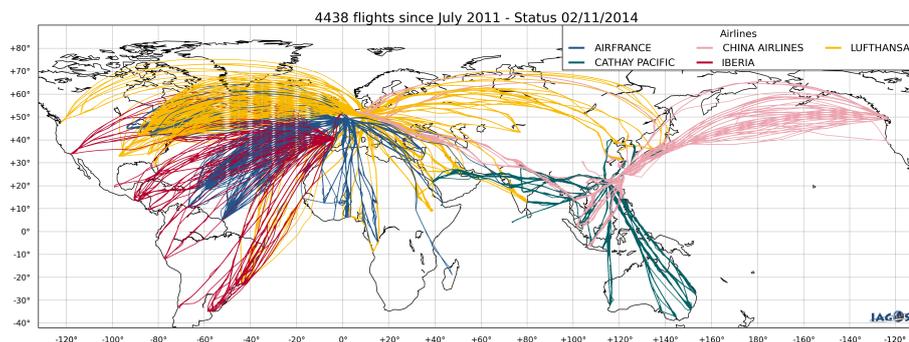


FIGURE 3.2 – Trajectoires des vols IAGOS en Novembre 2014

### 3.1.3 Données spatiales TRMM - MétéoSat

La plate-forme TRMM (*Tropical Rainfall Measuring Mission*) est un programme conjoint entre la JAXA et la NASA pour étudier et surveiller les précipitations tropicales (Kummerow et al., 1998; Jobard, 2001). TRMM a été lancé le 27 novembre 1997 et il est encore en activité. TRMM est placé sur orbite circulaire basse à 350 km d'altitude (surélevé à 403 km d'altitude en août 2001 pour prolonger sa durée de vie (nommé "boost")), inclinée de 35° par rapport à l'équateur. L'orbite choisie non-synchrone peu inclinée, permet d'obtenir des données avec une résolution spatiale élevée dans les régions situées dans la bande de latitude 38°N–38°S et de documenter les processus à différents moments du cycle diurne. TRMM complète 16 orbites par jour au-dessus des tropiques, la fréquence et la résolution de revisite d'une zone géographique dépendent de chaque instrument.

TRMM est composé de cinq instruments. Le radar de précipitation (PR) a été conçu pour fournir des cartes tridimensionnelles de la structure des précipitations dans les systèmes convectifs. C'est un système actif fonctionnant à 13.8 GHz, avec une résolution horizontale de 5 km, une largeur de fauchée de 247 km (après le "boost") (Figure 3.3). Un autre instrument clé sur TRMM est l'imageur micro-onde (TMI), qui est un récepteur passif mesurant le rayonnement micro-onde émis par l'atmosphère et les nuages. Il possède 5 fréquences, allant de 10.7 à 85.5 GHz et une largeur de fauchée 3 fois plus grande que PR, de 878 km (après le "boost") (Figure 3.3). Il mesure la répartition horizontale des grosses gouttes précipitantes (taille  $>100\mu\text{m}$ ) mais aussi des particules de glace ou encore du grésil, afin de quantifier les fortes précipitations tropicales avec une résolution de 5 km. L'instrument VIRS (*Visible and Infra-Red Scanner*) fournit des informations sur la température et la réflectance du sommet nuageux avec une résolution horizontale de 2,4 km et une fauchée de 833 km (après le "boost"). Enfin le satellite possède un détecteur d'éclairs optique, l'instrument LIS (*Lightning's Imaging Spectrometer*).

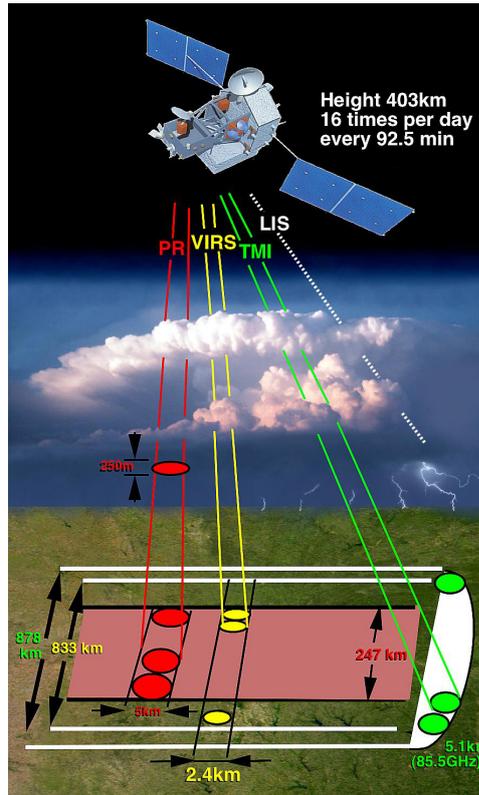


FIGURE 3.3 – Vue schématique des géométries d'acquisition des données des instruments de la plate-forme TRMM : PR, TMI, VIRS, LIS. – (NASA)

C'est en combinant les informations de tous ces instruments, que le TSDIS (*TRMM Science Data and Information System*) peut fournir différents produits qui caractérisent la structure des nuages, leurs propriétés, incluant leur base, l'altitude de leur sommet, leur couverture et la taille des gouttelettes et cristaux de glace qui les forment. Dans le cadre de cette thèse, nous avons utilisé les produits :

- 1B01 qui correspond à la radiance ( $\text{mW.cm}^{-2}\mu\text{m}^{-1}.\text{sr}^{-1}$ ) mesurée par VIRS dans ses 5 canaux (0,63, 1,60, 3,75, 10,8 et 12,0  $\mu\text{m}$ ) et informe sur la hauteur des nuages.
- 2A12 qui correspond à une estimation du taux de pluie en surface (mm/h) et aux profils verticaux de la densité des hydrométéores (liquide, glace, nuageux et précipitants) sur 28 niveaux, obtenus à partir des données du canal 37 GHz du radiomètre TMI.
- 2A25 qui correspond à une estimation du facteur de réflectivité (dBZ) et du taux de précipitations (mm/h) entre 0 et 20 km sur 80 niveaux pour une description tridimensionnelle de la pluie instantanée à partir des données du radar PR à 13,8  $\mu\text{m}$ .
- 2A23 qui donne l'altitude du sommet nuageux et le type de précipitation à partir des données du radar PR.

Pour une description de l'ensemble des algorithmes ou produits de TRMM, on pourra se référer à [Simpson et al. \(1996\)](#) et au site <http://disc.sci.gsfc.nasa.gov/precipitation/documentation>.

La mission TRMM permet la combinaison d'instruments actifs et passifs pour une analyse quasi-tridimensionnelle des structures nuageuses et des précipitations, offrant aussi l'opportunité d'une validation des paramétrisations convectives des modèles numériques. Les différents mécanismes utilisés par les trois instruments (TMI, PR, VIRS) sont présentés sur la figure 3.4. On peut voir que les mesures par le radiomètre micro-onde TMI dépendent à la fois de l'émission et de la diffusion des hydrométéores et donc du type de nuage, tandis que le radiomètre VIRS travaillant dans l'infrarouge et le visible détecte l'émission des parties supérieures du nuage. L'avantage des observations du radar PR provient du fait qu'il donne accès à une information verticale sur les précipitations, et qu'il fournit des données indépendamment de la couverture nuageuse de jour comme de nuit. Plus récemment ce couplage de systèmes de détection actifs et passifs apparaît dans la mission CALIPSO (*Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations*) (Avril 2006), qui fait partie de la constellation A-train, composée de satellites évoluant sur la même orbite quasi polaire et permettant d'observer les mêmes phénomènes atmosphériques à quelques minutes d'intervalle.

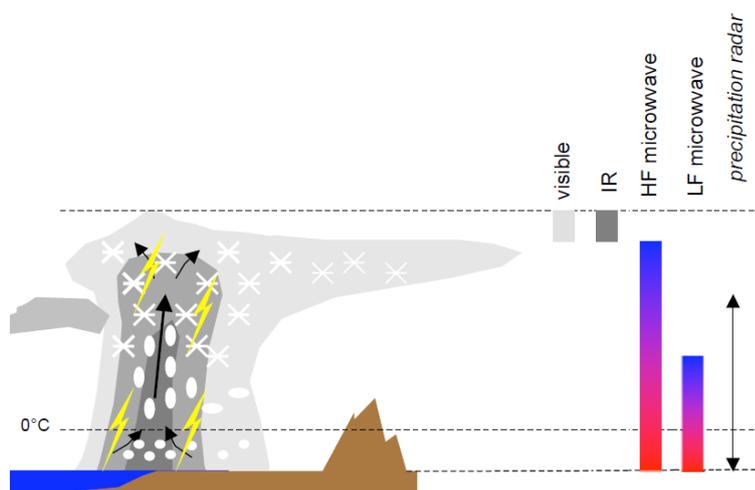


FIGURE 3.4 – Partie nuageuse détectée par les différents types d'instruments spatiaux. – Eric Defer (LERMA – Paris)

**Météosat** est une famille de satellites météorologiques géostationnaires qui permettent l'observation en continu d'une zone du globe. Depuis 1977, 7 satellites Météosat ont été lancés pour l'observation des circulations atmosphériques et de la météorologie. Météosat07 le dernier de cette première génération (lancé en 1998) est toujours opérationnel à l'heure actuel. Les 4 sa-

tellites de la série Météosat Seconde Génération (MSG) dont le premier a été lancé en 2002 opéreront jusqu'en 2020. L'orbite de certains satellites Météosat a été modifiée afin de couvrir des bandes longitudinales différentes de celles initialement programmées. Météosat05 a ainsi été déplacé de sa position initiale (10°W) vers l'Océan Indien (63°W) en support au programme international INDOEX (*INDian Ocean EXperiment*) entre 1998 et 2005. Depuis 2005, Météosat05 a été remplacé par Météosat07 positionné à 57.5° pour l'observation de la région indienne.

Les satellites Météosat possèdent un radiomètre à 3 canaux spectraux. Le canal visible (0.45 à 1  $\mu\text{m}$ ) permet d'observer le spectre solaire et documente l'albédo des surfaces claires ou des nuages. Le canal dans l'infrarouge thermique (10,5 à 12,5  $\mu\text{m}$ ) renseigne sur la température au sommet des nuages (Figure 3.4). Enfin un canal centré sur une bande d'absorption de la vapeur d'eau aux environs de 6,3  $\mu\text{m}$  apporte de l'information sur le contenu en vapeur d'eau. L'étude de systèmes convectifs nécessite souvent des données météorologiques complémentaires temporellement et spatialement afin d'avoir une vue complète de la colonne convective et de son évolution mais aussi de diminuer les incertitudes sur ses caractéristiques et comportement. Le satellite géostationnaire Météosat07 complète temporellement les informations sur la région tropicale entre l'Afrique et l'Inde. Le schéma figure 3.4 de Mr DEFER Eric du LERMA résume les informations obtenues par les instruments décrits précédemment.

## 3.2 Les modèles numériques

### 3.2.1 FLEXPART

FLEXPART (*FLEXible PARTicle dispersion model*) est un modèle lagrangien qui simule le transport et la dispersion de traceurs (Stohl et al., 1998, 2005) et permet d'établir le lien entre une source qui peut être une région caractérisée par l'émission de polluants et un récepteur qui peut être une région impactée par ces polluants. Un grand nombre de particules est relâché de la région réceptrice (émettrice) puis transporté en arrière (en avant) dans le temps. FLEXPART simule le temps de résidence de toutes les particules qui est un champ à 4 dimensions qui représente la sensibilité de la source au récepteur. Dans les simulations effectuées dans le cadre de cette thèse, le temps de résidence est produit toutes les 3h d'intégration sur une grille de 1° de latitude x 1° de longitude dans 22 couches verticales (allant de 0 à 22 km avec une épaisseur de 500 à 1000 m pour les plus hautes couches). Le modèle est forcé par les champs de vent ECMWF qui possèdent une résolution temporelle de 3h, une résolution horizontale de 0.3° x 0.3° sur 91 niveaux verticaux. Les perturbations stochastiques, obtenues en résolvant les équations de Langevin (Stohl and Thomson, 1999), sont superposées aux vents ECMWF pour représenter le transport par les

tourbillons de turbulence. Le transport convectif est simulé par la paramétrisation de [Emanuel and Zivkovic-Rothman \(1999\)](#). Le transport vertical des masses d'air résulte de la combinaison de l'advection de grande échelle par les vents ECMWF et du mélange vertical par les flux de masse verticaux calculés par le schéma de convection. FLEXPART peut inclure des termes de perte comme les dépôts secs et humides ou la désintégration radioactive (qui n'ont pas été activés dans nos cas d'étude), mais il ne simule pas la chimie le long des trajectoires.

FLEXPART (version 6.2) a été utilisé dans le cadre du cas d'étude du chapitre 4 pour déterminer les régions sources influençant la composition atmosphérique de la haute troposphère au-dessus de la mer d'Arabie à partir de calculs de rétro-trajectoires sur 20 jours. Dans le chapitre 5, FLEXPART a aussi permis de sélectionner un évènement convectif qui transporte des masses d'air polluées de la couche limite de la plaine indo-gangétique vers l'UTLS à l'intérieur de l'AMA grâce à des simulations de 7 jours en avant et en arrière.

### 3.2.2 Méso–NH

Méso–NH est un modèle atmosphérique non-hydrostatique à méso-échelle, qui a été développé conjointement depuis 1993 par le CNRM et le Laboratoire d'Aérodynamique. C'est un modèle eulérien à point de grille, basé sur un système d'équations non-hydrostatiques, qui couple météorologie et chimie et permet de traiter une vaste gamme de phénomènes atmosphériques allant de l'échelle synoptique (domaines de quelques milliers de kilomètres), jusqu'à l'échelle locale (celle de la convection, des tourbillons, domaines de l'ordre de quelques centaines de mètres)([Lafore et al., 1999](#)).

- Méso–NH (version 4.8) est appliqué dans le chapitre 4 sur un domaine couvrant l'Océan Indien, l'Afrique centrale et le Sud-ouest de l'Asie [20°S–40°N ; 4°–85°E]. La simulation est réalisée sur un domaine unique avec une dimension horizontale de 6700 km par 9300 km avec une résolution horizontale de 15 km. Sa grille verticale est composée de 72 niveaux entre la surface et 30 km avec une résolution allant de 60 m près de la surface à 600 m dans l'UTLS. La simulation est effectuée sur la période du 20 Novembre 2008 au 15 Décembre 2008, avec un pas de temps de 15 secondes sur 256 processeurs du calculateur Hyperion de CALMIP. Trois traceurs passifs ont été implémentés pour imiter les précurseurs d'O<sub>3</sub> issus des 3 sources identifiées par les simulations FLEXPART et ainsi évaluer leur contribution potentielle. Ces trois sources sont : la combustion de biomasse en Afrique centrale, les éclairs associés aux nuages convectifs et la pollution anthropique provenant de l'Asie du Sud. Les traceurs ont été initialisés à zéro et leur durée vie a été fixée arbitrairement à 10

jours.

- La seconde simulation Méso-NH (version 4.8) présentée dans le chapitre 5, couvre une vaste région [10°S-45°N ; 28°-92°E] centrée sur l’Asie centrale. Ce domaine a été sélectionné pour inclure le très grand système convectif étudié, qui a été détecté par TRMM au Népal, mais aussi la région source qui correspond à la plaine du Gange et la région réceptrice dans lequel sont transportés les masses d’air soulevées par le système convectif et qui correspond à l’AMA. La simulation a été lancée sur les serveurs de l’IDRIS, pour une durée de 7 jours avec un pas de temps de 10s. Elle a été effectuée avec une résolution horizontale de 10 km, sur 92 niveaux verticaux dont la résolution verticale est équivalente à la précédente et donnant une altitude maximale à 42 km. Le schéma chimique a été activé pour l’analyse de l’impact des polluants transportés sur l’O<sub>3</sub> dans la haute troposphère. La simulation chimique a nécessité d’implémenter les sources de précurseurs d’O<sub>3</sub> à partir de cadastres d’émissions et de forcer les distributions des composés chimiques aux bords du modèle à partir des distributions simulées par le modèle global MOZART.

Méso-NH est doté de paramétrisations qui permettent de représenter les phénomènes physiques tels que les interactions avec la surface, la turbulence, la microphysique, la convection et le rayonnement. Les échanges d’énergie à la surface sont représentés par quatre types possibles de surface (surfaces naturelles, zones urbaines, océans et lacs) dans le modèle SURFEX (*SURFace EXternalisée*) qui est couplé avec Méso-NH. Les flux de rayonnement sont fournis par le schéma radiatif ECMWF (Gregory et al., 2000). Les variables pronostiques du modèle (vent, température potentielle, vapeur d’eau,...) sont initialisées à partir de champs issus d’analyses grandes échelles du modèle opérationnel européen (ECMWF). La microphysique nuageuse est paramétrée avec le schéma mixte à 6 espèces ICE3 de Pinty et Jabouille, comprenant la vapeur d’eau, les gouttelettes et la glace nuageuses, la pluie, le grésil et la neige (Pinty and Jabouille, 1998). La physique du modèle inclut le calcul pronostique de la turbulence et un schéma de convection sur la base des calculs de flux de masse. Dans les travaux présentés dans ce manuscrit, le schéma de paramétrisation de convection profonde utilisé est celui de Kain-Fritsch-Bechtold (KA-FR) (Bechtold et al., 2001), pour lequel une convection profonde est déclenchée lorsqu’un certain seuil d’instabilité de la colonne verticale est atteint. En réponse à cette dernière, la paramétrisation augmente le gradient vertical de température, des flux ascendants et descendants transportent des espèces microphysiques et produisent des précipitations au sol, ce qui permet de stabiliser la colonne verticale et engendre un mélange de masse d’air. Dans la simulation du chapitre 4, la convection peu profonde est elle aussi issue de la paramétrisation de KA-FR. Pour la simulation du chapitre 5, le schéma de convection peu profonde activé est EDKF (*Eddy-Diffusivity-Kain-Fritsch*), dont la paramétrisation Pergaud et al. (2009) basée sur le concept Eddy-Diffusivity/Mass Flux,

décrit mieux le mélange et la représentation des nuages dans les couches limites convectives. Il détermine les processus turbulents et de convection peu profonde, dans la couche limite de l’atmosphère produite par le chauffage de la surface.

### **Les émissions de surfaces**

Dans les modèles numériques, les émissions surfaciques de gaz qu’elles soient d’origine anthropique, issues de la combustion de biomasse ou encore biogéniques sont initialisées à partir de cadastres d’émissions décrivant qualitativement et quantitativement ces rejets dans l’atmosphère. Il existe deux méthodes pour établir un cadastre d’émission. La plus répandue, la méthode “bottom-up” consiste en un calcul théorique du flux de polluants émis dans l’atmosphère. Il est généralement réalisé en combinant mesures directes, données statistiques socio-économiques relatives aux activités domestiques, à la production industrielle et facteurs d’émissions issus d’expériences ou de modélisation. Ces informations ont une grande hétérogénéité et nécessitent une extrapolation des données pour étendre les estimations aux échelles régionale et globale. Les incertitudes sur les cadastres d’émission sont principalement liées aux informations socio-économiques (localisation, quantification) et à l’estimation des facteurs d’émissions des différents polluants par les différentes sources. La méthode “top-down” fournit une estimation des émissions par modélisation inverse à partir de mesures spatiales des contenus troposphériques des constituants. Cette méthode ne permet pas d’obtenir une résolution fine mais elle conduit à un ajustement des cadastres “bottom-up” dans les régions où les données socio-économiques sont erronées ou incomplètes. En particulier, des études basées sur des méthodes “top-down” ont mis en évidence une sous-estimation d’un facteur 2 concernant les émissions de NO<sub>x</sub> au-dessus de la Chine ([van Noije et al., 2006](#); [Miyazaki et al., 2012](#)) ou encore une sous-estimation des émissions de CO d’un facteur 1,8 à 2 ([Stavrakou and Müller, 2006](#); [Arellano et al., 2004](#)).

Dans nos simulations, les émissions anthropiques sont extraites de l’inventaire mensuel MACCity ([Granier et al., 2011](#); [Diehl et al., 2012](#); [Lamarque et al., 2010](#)) et le cadastre d’émissions mensuelles de combustion de biomasse provient de GFEDv3 ([van der Werf et al., 2010](#); [Giglio et al., 2010](#)). Tous deux ont été établis par une approche “bottom-up” à une résolution de 0.5°x 0.5°. Les émissions biogéniques sont basées sur l’inventaire mensuel MEGAN-MACC ([Sindelarova et al., 2014](#)) dont la résolution de 0.5°x 0.5° est issue des données obtenues avec le modèle numérique d’émissions naturelles de gaz et d’aérosols (MEGAN) initialisé par les champs météorologiques du système d’analyse MERRA.

### La production de NOx par les éclairs

La production de NOx par les éclairs est implémentée dans le schéma de convection de Méso-NH selon la paramétrisation de [Mari et al. \(2008\)](#). Lors de la formation d'une colonne convective, le taux d'éclairs est calculé empiriquement comme une fonction de l'altitude du sommet nuageux d'après les travaux de [Price and Rind \(1992\)](#); [Price et al. \(1997\)](#). Pour reproduire les fortes différences de taux d'éclairs entre les deux types de surface, les paramètres utilisés sont différents pour les orages continentaux et les orages océaniques. L'approche de [Price et al. \(1997\)](#) distingue aussi les éclairs intra-nuage (IC = IntraCloud), des éclairs nuage-sol (CG = Cloud-to-Ground), ces derniers étant moins fréquents mais plus énergétiques. La fraction des éclairs CG est paramétrée comme une fonction de l'épaisseur de la couche nuageuse froide (entre 0°C et le sommet du nuage) ([Price and Rind, 1994](#)). La production de molécules de NO est proportionnelle au taux d'éclairs. Une fois produites à l'intérieur de la colonne convective, les molécules de NO sont redistribuées par le schéma de convection dans les flux ascendants, descendants et par détrainement. D'autre part, dans leur synthèse sur la production de NOx par les éclairs, [Schumann and Huntrieser \(2007\)](#) montrent que la plupart des modèles utilisent un paramètre  $\beta$ , rapport entre fréquence d'éclairs IC et CG, variant de 2 à 4. D'après [Schumann and Huntrieser \(2007\)](#) la meilleure estimation du nombre de molécules de NOx par éclair (*flash*) est de  $15 \times 10^{25}$  *molec/ft* avec une gamme de variation de  $2 \times 10^{25}$  à  $40 \times 10^{25}$  *molec/ft*.

Dans le cas d'étude du chapitre 5, les premières simulations montrent que les valeurs de  $\beta$  et les nombres de molécules de NOx par éclairs préconisés par [Schumann and Huntrieser \(2007\)](#) sont trop élevées et conduisent à des concentrations de NOx irréalistes.  $\beta$  est alors fixé à 1 et le nombre de molécules de NOx produites par éclair IC et par éclair CG est fixé respectivement à  $1,0 \times 10^{25}$  et  $2,0 \times 10^{25}$ . On se situe donc dans les limites basses des estimations de [Schumann and Huntrieser \(2007\)](#). Enfin, il est à noter que, toujours d'après [Schumann and Huntrieser \(2007\)](#), la production annuelle globale de NOx par les éclairs est estimée à  $5 \pm 3$  Tg.yr<sup>-1</sup>. Les modèles globaux de chimie transport ajustent leurs paramétrisations pour atteindre des valeurs proches de ce chiffre, ce qui est impossible de faire avec un modèle régional limité en temps et en espace comme Méso-NH.

### Le schéma chimique

La modélisation de la chimie nécessite l'initialisation des émissions de surface des espèces chimiques par les cadastres, dont les espèces répertoriées sont relâchées de manière continue. Les concentrations des constituants atmosphériques aux limites latérales et supérieure du modèle régional sont fournies toutes les 6h à partir d'une simulation du modèle global de chimie-transport MOZART-4 (*Model for OZone and Related chemical Tracers*) ([Emmons et al., 2010](#)). Les mé-

canismes chimiques de MOZART-4 et de Mésó-NH (ReLACs : *Regional Lumped Atmospheric Chemical Scheme*) sont différents et ne traitent pas les espèces chimiques de la même manière. En particulier, les familles qui regroupent les espèces de même type et leur nombre sont différentes. Une correspondance entre les familles et les espèces chimiques de ReLACs et MOZART-4 basée sur des facteurs d'agrégation a été établie par [Emmons et al. \(2010\)](#) (Table 3.1) et mise en place pour Mésó-NH lors de cette thèse. De même il a fallu mettre en place la correspondance entre les espèces de ReLACs et celles des différents inventaires d'émissions utilisés qui sont généralement plus détaillés (Table 3.2).

ReLACs	Nom des espèces	MOZART-4
Ethane	ETH	C2H6
Alcane	ALKA	C3H8
		BIGALK*
Ethène/Alcènes	ALKE	C2H4
		C3H6
		BIGENE*
Isoprène	BIO	ISOP
Aromatique	ARO	TOLUENE
		CRESOL
Aldéhydes	ALD	CH3CHO
		GLYALD
Formaldéhyde	HCHO	CH2O
Cétone	KET	CH3COCH3
Carbonyle	CARBO	GLYOXAL
		CH3COCHO
Nitrate organique	ONIT	ONIT
Nitrate d'Acide Peroxyacétyle	PAN	PAN
Méthyle d'hydroperoxyde	OP1	CH3OOH
Haut peroxyde organique	OP2	C2H5OOH

TABLE 3.1 – Correspondance entre les familles d'espèces des mécanismes chimiques ReLACs et MOZART-4 (Emmons et al., 2010). Avec \*BIGALK qui est le regroupement des alcanes qui ont plus de 3 carbones et \*BIGENE le regroupement alcènes qui ont plus de 3 carbones.

Espèces	Cadastre	ReLACS	Facteur Agg
Monoxyde de carbone	CO	CO	1,00
Monoxyde d'azote	NO	NO	0,70
Dioxyde d'azote	NO2	NO2	0,30
Dioxyde de soufre	SO2	SO2	1,00
Ammoniac	NH3	NH3	1,00
Ethane	C2H6	ETH	1,00
Ethene	C2H4	ALKE	0,96
Alcènes	C3H6 ; Autres Alcènes	ALKE	1,04
Alcanes , alcools, ... *1	Ethanol ; Méthanol ; Propane	ALKA	0,44
Alcanes , alcools, ... *2	Autres alcanes	ALKA	1,19
Formaldéhyde	CH2O	HCHO	1,00
Aldéhydes	CH3CHO ; GLYALD	ALD	1,00
Cétones	CH3COCH3	KET	0,33
Crésol	CRESOL	ARO	1,04
Acide acétique	CH3COOH	ORA2	1,00
Méthane	CH4	CH4	1,00
Isoprène	ISOP	BIO	1,00
Toluène	TOLUENE	ARO	0,87
Xylène	TOLUENE	ARO	1,04

TABLE 3.2 – Correspondance entre les espèces chimiques des cadastres d'émissions et les familles du mécanisme chimique ReLACs avec les facteurs d'agrégation associés.



# Épisode de transport d’ozone entre l’Afrique et l’Asie du Sud

---

### 4.1 Introduction

Ce chapitre présente l’analyse d’un épisode de transport de masses d’air enrichies en  $O_3$  dans la haute troposphère au-dessus de la mer d’Arabie pendant la saison de post-mousson asiatique en 2008. Cet événement a été détecté par le sondeur spatial IASI utilisé pour la première fois pour documenter le transport intercontinental dans la haute troposphère. Grâce à sa couverture spatio-temporelle exceptionnelle, IASI a en effet permis de suivre l’évènement à l’échelle régionale jour après jour. Cette étude s’insère dans la thématique de l’ $O_3$  dans la troposphère de l’Océan Indien qui a été étudiée dans le cadre du projet INDOEX et dont les principales conclusions ont été détaillées dans la section 2.3.2 du chapitre 2 de ce manuscrit.

Les différentes études INDOEX basées essentiellement sur des radiosondages d’ $O_3$  au nord de l’Océan Indien ont montré la présence de fortes valeurs d’ $O_3$  (jusqu’à 120 ppbv) dans la moyenne et haute troposphère. Ces études ont cherché à déterminer l’origine de ces pics et filaments d’ $O_3$ . D’après Zachariasse et al. (2000, 2001) qui utilisent un modèle de rétro-trajectoire, les fortes valeurs d’ $O_3$  observées dans la haute troposphère auraient pour origine des événements d’échange entre la stratosphère et la troposphère avec parfois un transport inter-hémisphérique (Zachariasse et al., 2001). En se basant sur les observations INDOEX complétées par des observations d’ $O_3$  du sondeur TOMS et des calculs de rétro-trajectoires, Chatfield et al. (2007) confirment les échanges stratosphère-troposphère comme origine des maxima dans la haute troposphère et montrent l’importance potentielle de l’export de pollution du Sud asiatique sur la moyenne et haute troposphère au-dessus de la mer d’Arabie. Seul De Laat (2002) affirme que le transport de masses d’air impactées par des sources africaines (les feux de forêt en l’occurrence) contribue notablement aux fortes valeurs d’ $O_3$  dans la moyenne troposphère au travers d’une étude basée sur des simulations d’un modèle de chimie transport donc plus complète que les études de Zachariasse et al. (2000, 2001) et Chatfield et al. (2007) qui n’ont utilisé que des calculs de rétro-trajectoires. Plus récemment Zhang et al. (2012) ont attribué les maxima d’ $O_3$ , observés dans la moyenne et haute troposphère au sud de l’Océan Indien en mai par les sondeurs TES et

MLS aux LiNO<sub>x</sub> émis en Afrique en utilisant le modèle de chimie de transport GEOS-Chem.

L'épisode de transport détecté par IASI est remarquable dans le sens où il est documenté sur toute sa durée de vie, de la formation du canal d'O<sub>3</sub> (appelé "ozone river" ou O3R) à l'est des côtes africaines à son arrivée au nord de l'Inde. La présence d'observations MOZAIC à l'ouest des côtes indiennes a d'ailleurs permis de corroborer la présence de ce canal d'O<sub>3</sub>. Celui-ci est le résultat de la combinaison d'une situation météorologique particulière (section 4.3.2) et d'une ou de plusieurs sources d'O<sub>3</sub>. Bien que les études citées ci-dessus portaient essentiellement sur les échanges stratosphère-troposphère et les feux de biomasse africains, il est aussi nécessaire de considérer la pollution asiatique et les LiNO<sub>x</sub> comme origine potentielle du canal d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère au-dessus de la mer d'Arabie. La caractérisation chimique des masses d'air à l'aide des observations MOZAIC montre (section 4.4.1) l'influence de sources troposphériques à l'O3R. Pour déterminer plus précisément cette origine, une stratégie de modélisation en 2 temps est privilégiée. La première étape permet de déterminer les sources probables et leur extension géographique à partir de simulations lagrangiennes avec le modèle FLEXPART. Une simulation haute résolution avec le modèle Méso-NH a ensuite permis de simuler le transport de trois traceurs passifs reproduisant les émissions émis par les éclairs ou issus des sources de surface, feux de biomasse et anthropiques sur le domaine identifié par FLEXPART et de préciser l'origine du canal d'O<sub>3</sub> (section 4.4.3). Ce travail fait l'objet d'un article en révision pour le journal Tellus-B qui est présenté ci-dessous. Des éléments supplémentaires sont présentés sur la contribution potentielle des intrusions stratosphériques au canal d'O<sub>3</sub> pour répondre aux remarques d'un lecteur de l'article (Section 4.5.1). Enfin, la disponibilité de 5 années de données IASI a permis d'établir une statistique de ce type d'évènement d'enrichissement d'O<sub>3</sub> au-dessus de l'Océan Indien qui est discutée dans la section 4.5.2.

Publication in review for *Tellus–B* in special issue MOZAIC–IAGOS  
20th Anniversary Symposium.



## 4.2 An upper tropospheric "ozone river" from Africa to India

### 4.2.1 Abstract

We have used ozone data from the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) to follow an event of ozone enriched airmasses transported in the upper troposphere from eastern Africa to northern India. The ozone transport (hereafter called 'ozone river' or O3R) occurred during the Asian post-monsoon season in 2008 and was associated with Rossby wave propagation. The persistence of the ozone river in a narrow channel was confirmed by MOZAIC airborne data over the northwestern Indian coast. The regions of origin of the ozone river were identified by a transport analysis based on the lagrangian model FLEXPART. A high resolution eulerian model, Meso-NH, with tagged tracers was used to discriminate between African biomass burning, lightning and Indian anthropogenic pollution as potential sources of precursors for the O3R. Lightning NO<sub>x</sub> emissions, associated with convective clouds over Africa, were found to be the principal contributor to the ozone enhancement over the Indian Ocean taking advantage of a northeastward jet. This case study illustrates African lightning emissions as an important source for enhanced O<sub>3</sub> in the upper-troposphere over the Indian Ocean region during the Asian post-monsoon season.

### 4.2.2 Introduction

Ozone (O<sub>3</sub>) is one of the most important greenhouse gases contributing to global warming. The net radiative forcing resulting from changes in tropospheric O<sub>3</sub> during next century is particularly important within the northern tropics from central America to South Asia and the Indian Ocean (Shindell et al., 2013). In the tropics, the upper troposphere O<sub>3</sub> is characterized by a global Wave-number-one zonal variability with the highest O<sub>3</sub> concentrations over the Atlantic and the lowest O<sub>3</sub> concentrations over the Western Pacific (Fishman et al., 1990; Thompson et al.,

2003). As part of this global pattern, upper troposphere  $O_3$  is low over the whole Indian Ocean region while it is much higher over Africa, where, it benefits from a process of injection of  $O_3$  precursors followed by zonal  $O_3$  buildup inside Walker cells (Sauvage et al., 2007b).

Nevertheless,  $O_3$  profiles measured during the Pre-INDOEX (1995–1998) and INDOEX (1999) campaigns in the northern Indian Ocean region revealed the frequent occurrence of elevated  $O_3$  concentrations in the mid- to upper-troposphere during the winter season (Zachariasse et al., 2000, 2001; De Laat, 2002; Chatfield et al., 2007; Lawrence and Lelieveld, 2010). In particular,  $O_3$  peaks reaching 120 ppbv were often found in the upper troposphere within layers 1 to 2 km thick just below the tropopause (De Laat et al., 1999).

Several sources and transport processes were put forward to explain these high concentrations of  $O_3$  in the mid- and upper-troposphere over the Indian Ocean. Using ozonesondes launched in winter 1998 and back-trajectories analysis, Zachariasse et al. (2000) demonstrate that  $O_3$  laminae in the upper troposphere originate from stratosphere to troposphere exchange along the subtropical westerly jet. This direct contribution of  $O_3$  by isentropic intrusion of stratospheric air masses is characterized by high  $O_3$  concentrations associated with low humidity. Based on  $O_3$  observations from radiosondes during INDOEX 1999, satellite measurements and back-trajectories analysis, Chatfield et al. (2007) attribute  $O_3$  peaks in the mid-troposphere primarily to stratosphere to troposphere exchange and convective lofting of pollution from the Indian continental outflow in the intertropical convergence zone (ITCZ).

Furthermore, Chatfield et al. (2004, 2007) attribute east-west streaks of elevated mid-tropospheric  $O_3$  observed from space over the Indian Ocean to highlevel westward transport of pollution potentially contributing to the south Atlantic  $O_3$  maxima in boreal winter. Indeed, the biomass burning season in Africa in the Northern Hemisphere takes place from October to January (Cooke et al., 1996). Transport of biomass burning emissions in the free troposphere is observed and described in Edwards et al. (2003) and explains the inter-hemispheric transport of African  $O_3$  precursors. Through the analysis of modeled CO (carbon monoxide) and  $O_3$  distributions, De Laat (2002) explains winter mid-tropospheric  $O_3$  peaks observed on radiosonde made over the Indian Ocean with the eastward advection of air masses impacted by African biomass burning emissions caused by the propagation of waves along the subtropical westerly jet. It must be emphasised that in their review of the outflow of atmospheric pollution from south Asia, Lawrence and Lelieveld (2010) point to some possible inconsistency in De Laat (2002) and rather support the scheme of Chatfield et al. (2007) to explain the elevated layers of  $O_3$  in the Indian Ocean mid-troposphere.

Another significant source of  $O_3$  precursors over this equatorial region is lightning. Deep

convection that characterizes central Africa during austral summer is both promoting vertical mixing of air masses but also a high electrical activity. From spaceborne data [Bond et al. \(2002\)](#) present an overview of the distribution of nitrogen oxides (NO<sub>x</sub>) produced by lightning (LiNO<sub>x</sub>) with a peak production between September and November and show the importance of these emissions relative to other sources of NO<sub>x</sub> in this region. Based on simulations from a chemical transport model and airborne observations, [Barret et al. \(2010\)](#) demonstrate the significant impact of LiNO<sub>x</sub> on the middle to upper troposphere over Africa and the tropical Atlantic. Indeed, LiNO<sub>x</sub> emitted directly into the upper troposphere have a longer life-time and can therefore travel longer distances increasing their impact on tropospheric chemistry ([Labrador et al., 2005](#)). The tropospheric O<sub>3</sub> distributions over the Indian Ocean between 2005 and 2009 have been examined in a study by [Zhang et al. \(2012\)](#). Based on spaceborne observations they document an annual maximum of O<sub>3</sub> in the mid- and upper-troposphere of the equatorial southern Indian ocean during May and conclude that this maximum results from lightning NO<sub>x</sub> emissions. Referring to [Zhang et al. \(2011\)](#), they explain the important O<sub>3</sub> maximum detected in the mid- and upper-troposphere over the Indian Ocean during autumn 2006 by the strong El-Nino event. This event was indeed responsible for large scale fires in equatorial Asia and perturbations of the tropospheric circulation that resulted in the transport of biomass burning impacted air masses to the Indian Ocean.

This study focuses on an event of O<sub>3</sub> elevated airmasses transport from Africa to northern India during the early winter 2008, identified from spaceborne IASI observations, hereafter referred to as 'ozone river' (O3R). This observed episode provides an opportunity to better understand the transport processes responsible for O<sub>3</sub> enrichments within the Indian Ocean troposphere. The chemical and meteorological context associated with the O3R are described in section 4.3. In section 4.4 we use Lagrangian and Eulerian simulations to provide insights into the emission sources of the O3R and their transport-pathways.

## 4.3 Observations analysis

### 4.3.1 IASI upper tropospheric ozone

The mean O<sub>3</sub> distribution observed by IASI in the upper troposphere (190–290 hPa) from Africa to South Asia during the post-monsoon season of 2008 (Oct.–Dec.) is marked by high concentrations of O<sub>3</sub> over Africa and low concentrations over the Indian Ocean (Fig. 4.1). This feature is the regional part of the tropospheric ozone zonal wave-one initially detected with satellite data by ([Fishman et al., 1990](#)) and characterised by tropospheric columns of O<sub>3</sub> minima over

the western Pacific and maxima over the tropical Atlantic. The wave–one was later documented by Thompson et al. (2003) with tropical ozonesonde data, completed over continental Africa by Sauvage et al. (2006) with MOZAIC data and globally by Sauvage et al. (2007b) with satellite data and model simulations.

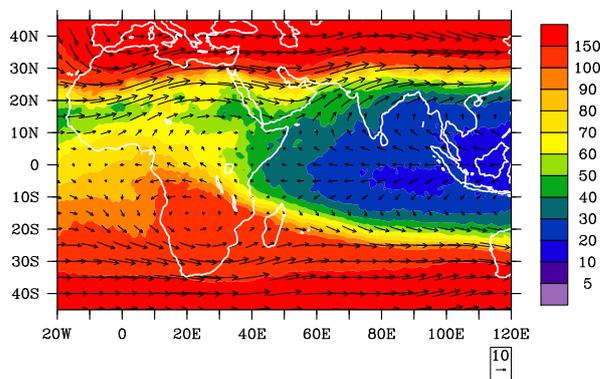


FIGURE 4.1 – IASI-SOFRID  $O_3$  upper troposphere (190–290 hPa), in ppbv, for 3 months averaged (Oct. to Dec., 2008). 200–300 hPa horizontal wind from ECMWF reanalysis are represented as black arrows. The white line represents the  $\pm 1.5$  PV units surface from ECMWF reanalysis at 200 hPa for the same period.

At the end of November 2008, the upper troposphere  $O_3$  distribution observed by IASI shows a striking evolution with a channel of elevated  $O_3$  that starts from the coast of Somalia around Nov. 26 (Fig. 4.2 (a)), crosses the Arabian Sea and northern India (Fig. 4.2 (b), (c)) and recedes after December 4. We have called this phenomenon ‘ $O_3$  River’ (O3R). During this period, the region encompassing the Bay of Bengal, south India and the southeastern Indian Ocean from  $20^\circ S$  to  $20^\circ N$  remains little perturbed with a persistent  $O_3$  minimum in the upper troposphere. The high  $O_3$  concentrations following the undulations of the Subtropical Westerly Jet correspond to extratropical stratospheric air masses as will be discussed further in the text.

### 4.3.2 MOZAIC ozone observations

The MOZAIC Hyderabad–Frankfurt observations are used to corroborate the occurrence and composition of the O3R over the Arabian Sea . Fig. 4.3 shows MOZAIC in–flight observations off the western coast of India and IASI  $O_3$  pressure–longitude cross–sections along MOZAIC flight tracks during the O3R period. The corresponding flight tracks are displayed on top of the IASI  $O_3$  distribution in Fig. 4.2 (a) and (c). On November 27<sup>th</sup>, IASI and MOZAIC ozone mixing ratios were in good agreement showing both a longitudinal gradient from low  $O_3$  concentrations typical of the tropical oceanic upper troposphere to enhanced  $O_3$  concentrations when the aircraft crossed the subtropical westerly jet and entered the extratropical stratosphere. On December 3<sup>rd</sup>,

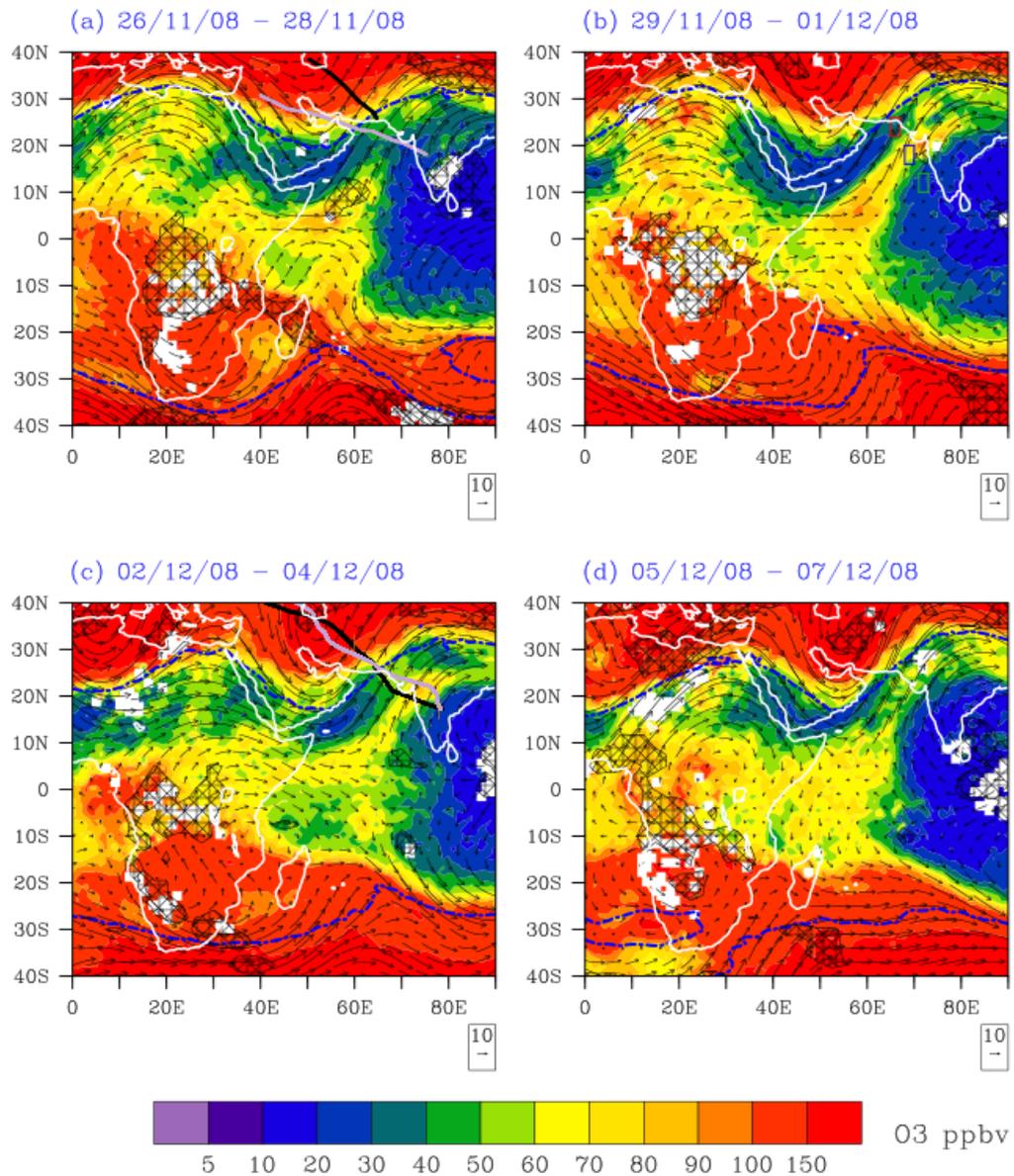


FIGURE 4.2 – IASI-SOFRID upper troposphere  $O_3$  (190–290 hPa average), in ppbv, for (a) 26–28 Nov. (b) 29 Nov.–01 Dec. (c) 02–04 Dec. (d) 05–07 Dec. 2008. 200–300 hPa averaged horizontal wind from ECMWF reanalysis are represented as black arrows. The blue line represents the  $\pm 1.5$  PV units surface from ECMWF reanalysis at 200 hPa. Black hatched contours indicate OLR (Outgoing Longwave Radiation) below  $220 \text{ W/m}^2$ . The black and gray lines in (a) and (c) indicate the flight track for MOZAIC observations, Hy-Fr and Fr-Hy respectively. The colored boxes in (b) over the Arabian Sea indicates the starting boxes of particulate emissions for FLEXPART simulations.

the  $O_3$  features observed during the outward and return MOZAIC flights between  $70^\circ$  and  $80^\circ\text{E}$  are well captured by IASI. The correlation coefficient between IASI and MOZAIC data for this

episode taking all the observations displayed in Fig. 4.3 into account, is  $R=0.85$ , which shows that IASI is able to capture the variability of upper troposphere  $O_3$ . This comparison remains qualitative as IASI profiles have a vertical resolution of about 8 km in the upper troposphere while MOZAIC data are *in-situ*.

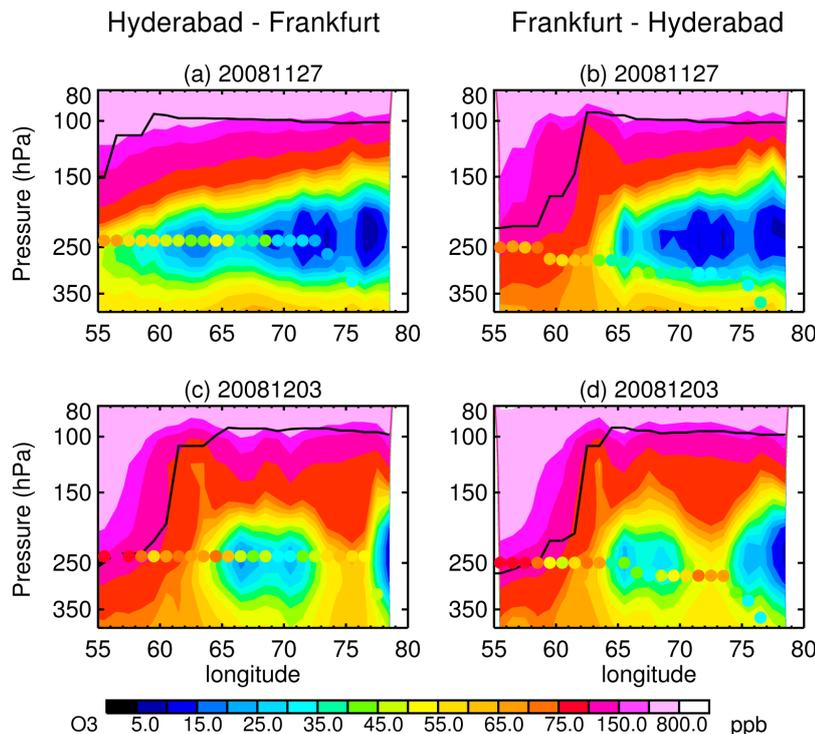


FIGURE 4.3 – Longitude–pressure cross sections of IASI  $O_3$  volume mixing ratios vertical profiles along four MOZAIC flight tracks for (a)(b) 27 Nov., (c)(d) 03 Dec., 2008. The IASI data are averaged over (a)(b) 26–28 Nov., (c)(d) 02–04 Dec., 2008. The coincident  $O_3$  MOZAIC observed volume mixing ratios are displayed with the color-coded circles. The black solid line is the tropopause derived from NCEP data.

### 4.3.3 Meteorological situation

The horizontal 200 hPa winds and the 1.5 PVU contours (in absolute values) from ECMWF reanalyses are displayed in Fig. 4.2 for the O3R period. During the O3R period, strong winds lie along the Northern Hemisphere subtropical westerly jet and result from midlatitude Rossby waves propagating into the tropics, over the Arabian peninsula. A number of studies show that Rossby waves tend to propagate through an equatorial westerly duct in the upper troposphere (e.g. Webster and Holton (1982); Yang and Hoskins (1996); Homeyer and Bowman (2012)). A climatology of westerly ducts in the Northern Hemisphere based on 20 years (1980–1999) of

meteorological reanalyses by [Vaugh and Polvani \(2000\)](#) show an autumn–winter occurrence peak. An analysis of the wind anomalies conducted over 4 months (Oct 2008–Jan 2009; not displayed) over the Indian Ocean also shows the same abnormal flow to the NE across the equatorial band. On November 26–28 2008, the westerly duct lies across the equator at about 50°E (Fig. 4.2) and encompasses region from the Arabian Sea in the Northern Hemisphere to the northwest of Madagascar in the Southern Hemisphere. The westerly duct leads to the formation of a strong jet over the equatorial Indian Ocean with a northeastward branch over the Arabian Sea that marks the O3R. Deep convective areas corresponding to OLR (*Outgoing Longwave Radiation*) below 220 W/m<sup>2</sup> ([Park et al., 2007](#)) are displayed in Fig. 4.2 in black hatched contours. These convective areas are located over central Africa and the convective outflow probably impact the air masses transported by the westerly duct. After December 4, only weak winds remains over the Arabian peninsula and the westerly duct has disappeared from the Indian Ocean. Extended clusters of deep convective storms are observed over southern India and the Bay of Bengal in Fig. 4.2 (a), (c) and (d), confirmed by MODIS satellite images (Fig. 4.4 (a) and (c)) and brightness temperature provided by VIRS/TRMM (Fig. 4.4 (b) and (d)). The first one (Fig. 4.4 (a) (b)) corresponds to cyclonic storm Nisha ([Barret et al., 2011](#)) which formed over Sri Lanka on November 26 and died over central India on November 28. Nisha was a severe storm that resulted in more than 200 deaths and significant damages in India and Sri Lanka. The second convective cluster (Fig. 4.4 (c) and (d)) is an important deep depression which lasted from December 04 to 07, 2008 over the southern Bay of Bengal within the ITCZ (hereafter BOB08) and propagated westward.

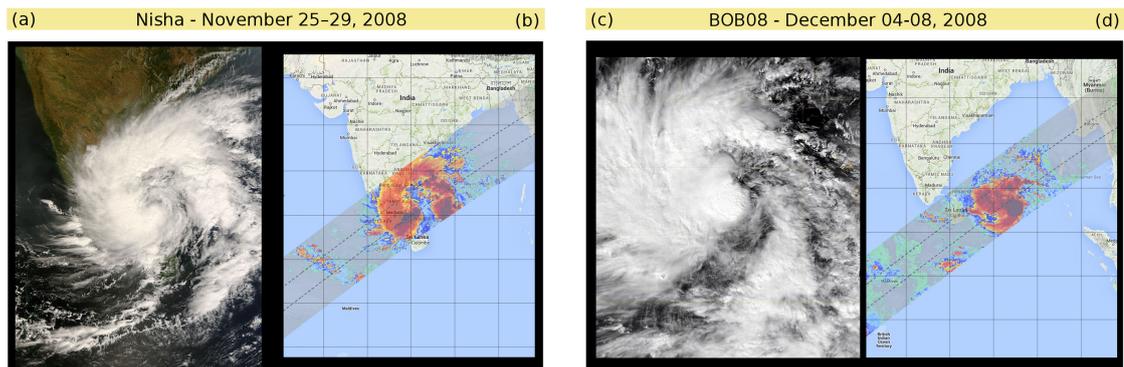


FIGURE 4.4 – Storm images of Nisha on November 26, 2008 (a) and BOB08 on December 4, 2008 (c) from the MODIS instrument and their respective brightness temperatures provided by VIRS/TRMM (b)(d).

## 4.4 Origin of the ozone river

### 4.4.1 MOZAIC air–mass characterization

In this section we use O<sub>3</sub> and CO observations from the MOZAIC program to better characterize the composition and the possible origin of the air masses during the O3R event. The O<sub>3</sub> and CO concentrations observed along the MOZAIC Hyderabad–Frankfurt (HY–FR) flight of December 3<sup>rd</sup> are displayed in Fig. 4.5 (a). Four distinct air masses are observed. On the southeast side of the flight, CO concentrations reached their maximum values (100–140 ppbv) while the O<sub>3</sub> concentrations remained low (30–50 ppbv) and stable. This O<sub>3</sub>–CO relationship is typical of fresh pollution that has not yet been photochemically processed (Chin et al., 1994). The sampled polluted air–masses were probably recently uplifted in the upper troposphere through convection. Within the O3R (68°–74,5°E), O<sub>3</sub> and CO are both elevated and highly correlated (R=0.76) with an almost linear relationship. The slope  $\Delta O_3/\Delta CO=0.98$  ppbv/ppbv is larger than climatological values (0.20–0.27) computed for the tropical upper troposphere during the autumn winter season from CARIBIC data (Zahn et al., 2002). The  $\Delta O_3/\Delta CO$  measured within the O3R corresponds to photochemically aged tropospheric air. Further northwestwards (60°–64,5°E near the Northern Hemisphere subtropical westerly jet) O<sub>3</sub>–CO are highly anti correlated (R=-0,73) with an almost linear relationship and a large negative slope (-1.3 ppbv/ppbv) indicating the import of stratospheric air–masses as the most likely dominant process controlling the O<sub>3</sub> distribution (Zahn et al., 2002; Fadnavis et al., 2010). In between (from 64.5° to 68°E), the air masses are characterised by intermediate values of O<sub>3</sub> and CO peaks which origin are investigated in section 4.4.3.

### 4.4.2 Simulation of retroplumes

The analysis of MOZAIC observations showed that the air–masses involved in the O3R region have different chemical signatures which probably correspond to different origins from the mid-latitude stratosphere to the marine boundary layer. The aim of the present section is to identify the potential sources of O<sub>3</sub> precursors which are responsible for the O<sub>3</sub> enrichment in the O3R from lagrangian simulation FLEXPART. The IASI observations are used to define three boxes between 9 and 12 km over the Arabian Sea, just off the west coast of India (see Fig. 4.2 and 4.6). The red box (22°–26°N, 65°–67°E) and the green box (10°–14°N, 71°–73°E) are located respectively northwestward and southeastward of the O3R and the blue box (16°–20°N, 68°–70°E) is located within the O3R (rectangles on the AS in Fig. 4.2 (b)). Particles are released from these 3 boxes during 4 days between the Nov. 29 12 UTC and Dec. 2 12 UTC which corresponds to

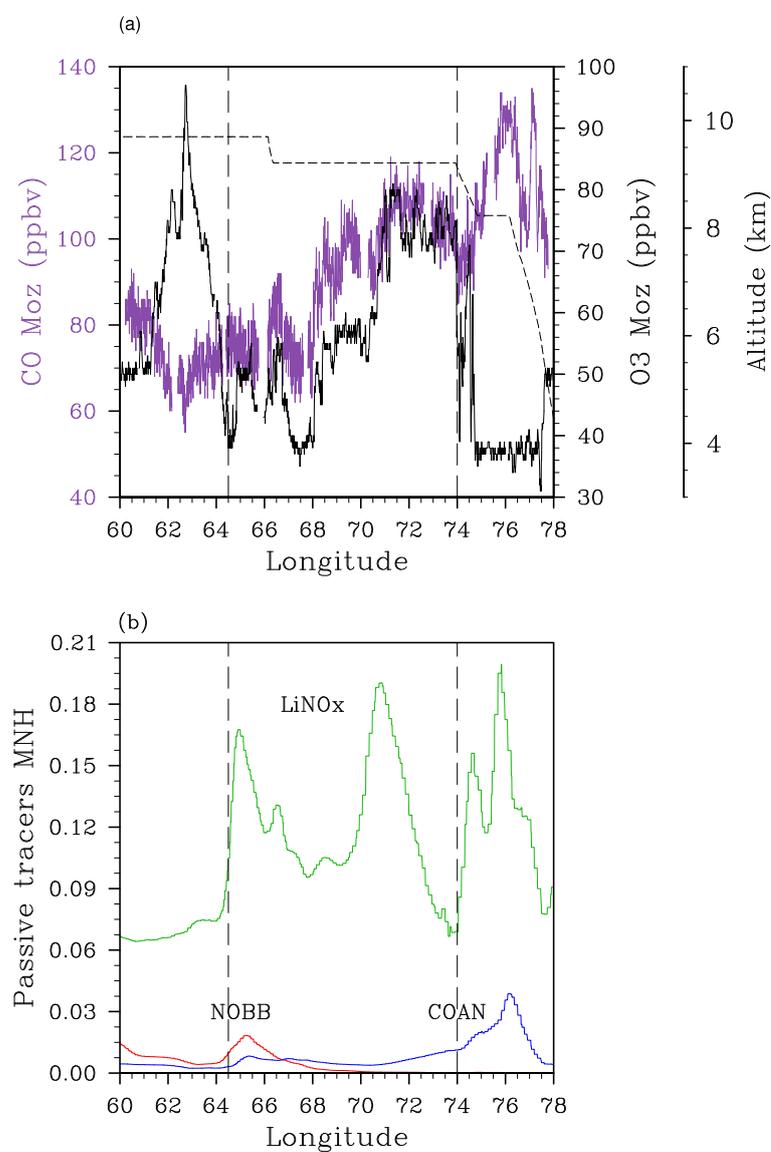


FIGURE 4.5 – (a) longitudinal profiles of MOZAIC O<sub>3</sub> (black line) and CO (violet line) mixing ratios along a Hyderabad–Frankfurt flight on December 3<sup>rd</sup>, 2008 with the altitude of the aircraft (dashed black line). (b) Meso–NH passive tracers concentrations, along the MOZAIC flight at 258 hPa with concentrations normalized by their respective maximum values over the domain. The red curve correspond to BBTR, the green to LITR and the blue to ANTR.

the period with the highest  $O_3$  concentration according to IASI. Back trajectories calculation period is set to 10 days. Fig. 4.6 shows the regions which encompass 70% of the mean residence times within the boundary layer (0–3 km, Fig. 4.6 (a)) and within the upper troposphere (9–20 km, Fig. 4.6 (b)) for the corresponding three boxes.

November–December corresponds to the dry season over the African continent north of the Equator. During this period, biomass burning (BB) emissions occur over a large zonal band extending from  $5^\circ$  to  $15^\circ$ N which roughly corresponds to the African savannah and forests (Cooke et al., 1996) (Fig. 4.6 (a)). Anthropogenic emissions are high all over India but more particularly over the Indo Gangetic Plain in Northern India (Fig. 4.6 (a)). From Fig. 4.6 (a), it can be seen that air masses which reach the three boxes have spend time in the boundary layer mostly over the northern Indian Ocean region. The contours are shifted in latitude according to the position of the box. It is interesting to note that none of the three boundary layer contours are overlapping the region of African biomass burning emissions that have therefore probably little impact upon the observed upper troposphere composition. On the contrary, the three contours are overlapping regions of large anthropogenic emissions from the Indian continent. The green box is the most impacted by boundary layer air masses with the 0–3 km layer contributing to 16% of the total residence times compared to 5% for the blue box and 3% for the red one. Convective uplift of these air-masses was probably favored by the crossing of cyclonic storm Nisha from the Bay of Bengal to central India at the end of November (Barret et al., 2011).

In order to determine the region with LiNO<sub>x</sub> emissions, we are using the High Resolution Monthly Climatology (HRMC, ftp://ghrc.nsstc.nasa.gov) from the *Lightning Imaging Sensor* (LIS) and the Optical Transient detector (OTD) onboard the TRMM platform (Christian et al., 2003). The HRMC product is a  $0.5^\circ \times 0.5^\circ$  gridded composite of total (Intra-Cloud + Cloud-Ground) lightning bulk production, expressed as a flash density (fl/km<sup>2</sup>/yr). In November 2008 most of the lightning occurs over Central and Southern Africa between equator and  $15^\circ$ S corresponding to the rainy season. Air masses reaching the red box are mostly originating from the tropical upper troposphere over west and north Africa and the Arabian peninsula (Fig. 4.6 (b)). They are advected by the strong winds following the Rossby waves south of the tropopause (see (Fig. 4.2 for the location of the tropopause). They are therefore characterised by lower concentrations of  $O_3$  than the lower stratospheric air masses to the north and than the O3R to the south as detected by IASI and MOZAIC (Fig. 4.2). The green contour, centered over the Indian Ocean at the southern tip of India is probably the signature of cyclonic storm Nisha. The blue contour is the only one to extend southwestward into Africa and overlap with the large region where LIS detects most lightning. Lightning is thus a distinct source of ozone in the O3R compared to the two bordering regions.

As mentioned in the introduction, previous studies (Chatfield et al., 2007; Zachariasse et al., 2000) have shown that stratospheric intrusions could play a role in  $O_3$  increase in the mid and upper-troposphere over the Indian Ocean. In the case of the O3R we have ruled out this hypothesis based on the lagrangian simulations. Indeed, the blue contour displayed in Fig. 4.6 (b) concerning residence times within the 9–12 km layer is confined within the tropical band ( $15^\circ\text{S}$ – $20^\circ\text{N}$ ) while the 2 PVU limit displayed in Fig. 4.2 clearly shows that at 200 hPa the stratosphere is outside the  $30^\circ\text{S}$ – $20^\circ\text{N}$  band. Furthermore, as discussed above (section 4.4.1) MOZAIC data indicates photochemically aged air-masses within the O3R.

FLEXPART simulations point out that African biomass burning emissions have probably little impact upon the  $O_3$  or CO increase over the Arabian Sea during the O3R period. On the contrary, the back-trajectories highlight the potential contribution of LiNOx emissions from southern Africa to the  $O_3$  increase observed within the O3R. High CO over the Arabian Sea probably originate from Indian polluted air masses freshly uplifted by cyclonic storm Nisha. To confirm the assumptions on the sources and the transport pathways responsible for the O3R, we have performed an onward simulation with the eulerian Meso-NH model over a domain encompassing the main sources identified with FLEXPART.

### 4.4.3 Tagged simulations at mesoscale

A high resolution forward simulation was performed with the mesoscale meteorological model Meso-NH from November 20 to December 15, 2008 (see section 3.2.2). The domain was chosen in order to represent the  $O_3$  precursors sources identified with the FLEXPART backward simulations. Three passive tracers were implemented to mimic African biomass burning emissions (BBTR), anthropogenic emissions (ANTR) and emissions from lightning (LiTR) (see section 3.2.2 for details). In the following, the transport pathways of these tracers are illustrated with concentrations normalized by their respective maximum values on all vertical levels.

Figure 4.7 shows the contours of the forward normalized plumes for the three passive tracers from November 26 to December 7, 2008 at 210 hPa. Surface emissions (BBTR and ANTR) are uplifted to the UT. The two tracers originating from the African continent (BBTR, LiTR) experience a northeastward transport by the southwesterly duct. ANTR higher concentrations are located over the Bay of Bengal and central India south of the O3R. The tracers thus have three quite distinct transport pathways.

During the studied period the most intense convective systems occur in the region of central Africa where LIS detected the largest flash frequencies (Fig. 4.6 (b)). The largest lightning frequencies simulated by Meso-NH (not displayed) are in good agreement with the LIS observations

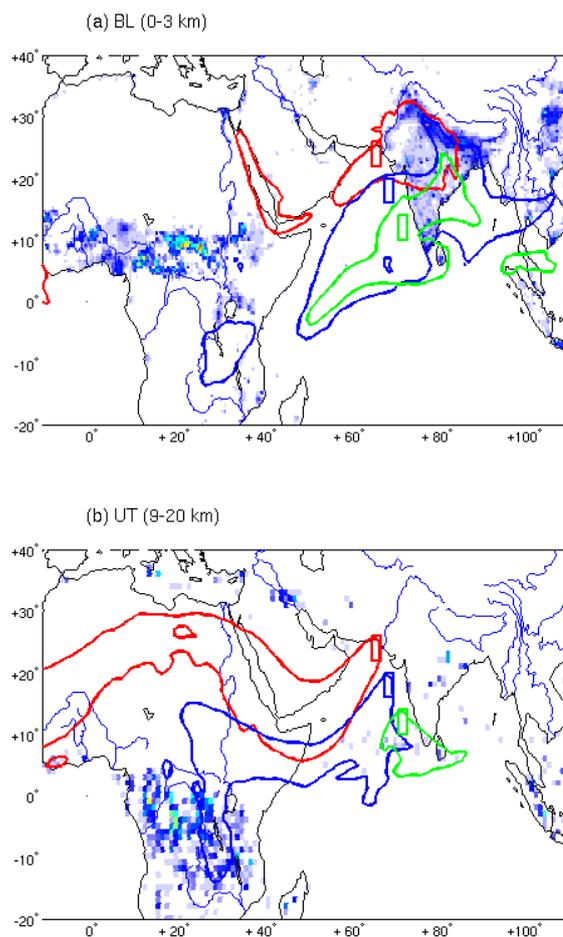


FIGURE 4.6 – The color coded solid contours represent the area encompassing 70% of the FLEX-PART total retroplume residence times for particles released between Nov. 29 12 upper troposphere to Dec. 2 12 upper troposphere from the corresponding color coded boxes (blue rectangle is within the O3R) (a) residence times within the boundary layer (0–3 km) with monthly GFED3 fire data and monthly antropogenic MACCity anthropogenic emissions data and (b) residence times within the upper troposphere (9–12 km) with LIS/OTD HRMC flash densities ( $\text{fl}/\text{km}^2/\text{yr}$ ) for November 2008.

in capturing the central African maximum. Figure 4.7 shows that, once emitted in the central African UT, the LiNOx tracer is rapidly transported eastward over the Indian Ocean and northeastward within the southwesterly duct. Throughout the studied period, the LiTR plume is the one that best fits within the blue contour that corresponds to the O3R ( $O_3$  concentrations greater than 60 ppbv) (Fig. 4.7 (b)). The maximum of LiTR concentration over the south-western part of the Indian Ocean (Fig. 4.7) is also in good agreement with the upper troposphere  $O_3$  high concentrations observed by IASI in this region (Fig. 4.2). Nevertheless, after December 1 the LiTR recedes faster over the Arabian Sea than the  $O_3$  enhanced concentrations and both remain high above the western equatorial Indian Ocean (Fig. 4.7 (c)). The NOx lifetime range from 4 days to 1 week in the upper troposphere (Brasseur et al., 1999) and we have chosen a longer lifetime (10 days) for our LiTR. Tropospheric  $O_3$  has a lifetime of more than 20 days (Stevenson et al., 2006) which makes  $O_3$  produced from LiNOx themselves. This probably explains the inconsistency between the LiTR and  $O_3$  enhancements in Fig. 4.7 (c). Deep convective systems associated with storm Nisha over India have also produced LiTR but east of the O3R observed by IASI (Fig. 4.7 (b)).

The simulated southwestern branch of biomass burning transport, was described by Edwards et al. (2003). biomass burning emissions from eastern Africa are uplifted to the free troposphere by pyroconvection and advected southwesterly by the prevailing Harmattan winds. When they reach the ITCZ, the polluted air masses are lofted on top of the incoming cool "monsoon" flow from the Atlantic and end-up over southern central Africa or over the gulf of Guinea. In our case study, the transport of biomass burning is noteworthy because it is characterized by an upper troposphere circulation which then favors a northeastward transport by the southwesterly duct to end up over the Indian continent. The simulated BBTR plume overflows the Asian continent but north of the Arabian Sea which excludes a potential contribution to the O3R.

According to Barret et al. (2011), the cyclonic storm Nisha formed over Sri-lanka on November 26 and crossed the south-east Indian coast in the morning of November 27<sup>th</sup> and headed northwest. Figure 4.8 displays the brightness temperature at  $10.8 \mu\text{m}$  as simulated by the Meso-NH model (Fig. 4.8 (b)) and as observed by the VIRS sensor onboard the TRMM satellite at  $10.8 \mu\text{m}$  (Barnes et al., 2000) (Fig. 4.8 (a)). The position of the storm modeled by Meso-NH is in good agreement with that measured by VIRS/TRMM. Meso-NH slightly overestimates the brightness temperature, and therefore underestimates the cloud top. Both model and observations give brightness temperature below  $220^\circ\text{K}$  within the storm corresponding to a cloud top above 12 km. The cyclonic circulation associated with Nisha (see Fig. 4.8 (b)) is responsible for the transport of polluted air masses from northern and central India to the center of the storm located around  $80^\circ\text{E}$  and  $12^\circ\text{N}$  on November 26. The vertical transport of the ANTR tracer by

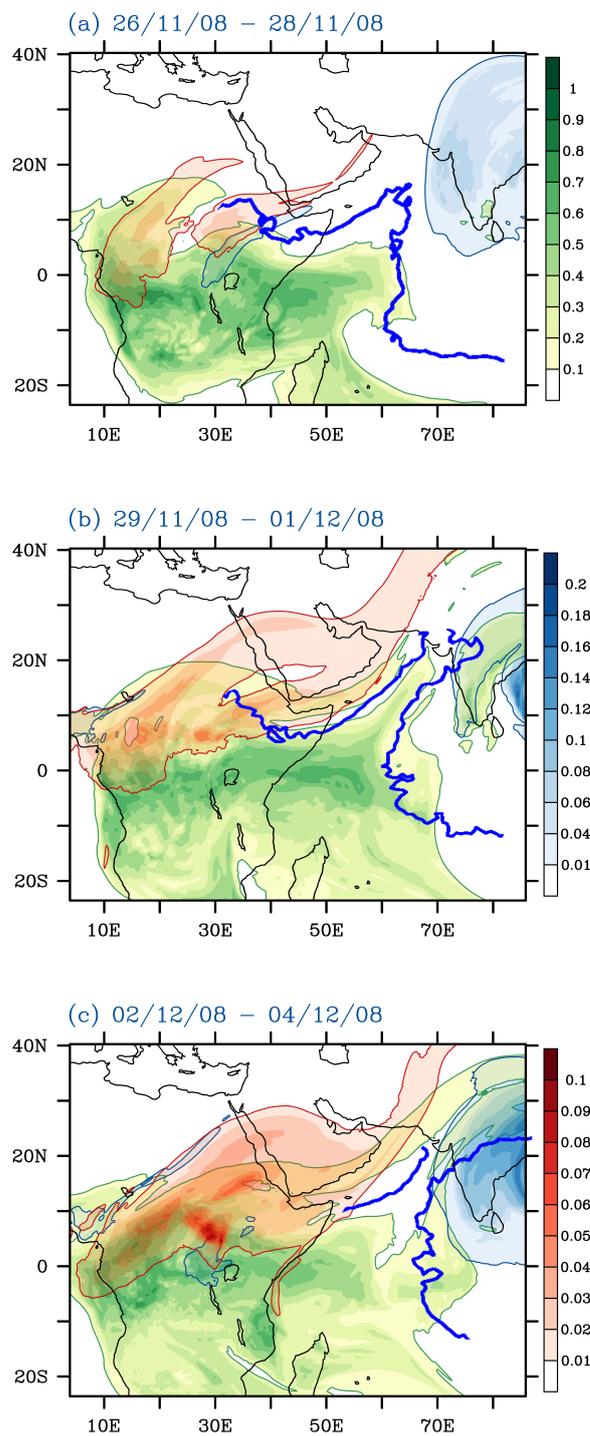


FIGURE 4.7 – Meso-NH passive tracers distributions at 210 hPa from Nov. 26 To Dec. 4, 2008 averaged over 3 days. Concentrations were normalized to the maximum value of all vertical levels in each plot. The red plume correspond to BBTR, the green one to LiTR and the blue one to ANTR. And the blue isocontour corresponds to 60 ppbv  $O_3$  from IASI and delimits the position of the O3R.

storm Nisha is highlighted by Fig. 4.8 (c) which displays the longitude–pressure cross section of ANTR at 12°N averaged from November 26 to 28 and normalized by its maximum values at this latitude. The ANTR tracer reaches the upper troposphere and then spreads westward towards the Arabian sea where it is transported northeastward on the southern edge of the southwesterly duct described earlier. The uplift of air–masses from the boundary layer to the upper troposphere associated with the storm is responsible for the low O<sub>3</sub> concentrations around the storm (see Fig. 4.2 (a) with the storm represented by the hatched contour at the southern tip of India) and for the high concentrations of ANTR (see Fig. 4.7 (a)). Cyclonic storm BOB08 is responsible for a very similar vertical transport of Indian boundary layer pollution to the upper troposphere in early December. The ANTR transport to the upper troposphere by BOB08 is clear in Fig. 4.7 (c) and its chemical signature is observed by MOZAIC flight of December 3<sup>rd</sup>, 2008 with low O<sub>3</sub> and high CO south–east of the O3R (Fig. 4.5 (a)).

Figure 4.5 (b) shows the three simulated tracers along the MOZAIC flight track on December 3<sup>rd</sup>. In the following, we analyse the MOZAIC and coincident Meso–NH longitudinal transects from west to east. The large O<sub>3</sub> maximum detected by MOZAIC west of 64°E (Fig. 4.5 (b)) is associated with low concentrations of the LiNO<sub>x</sub> tracer which was expected due to its stratospheric characteristics. From 64° to 75°E, we can identify 5 relative maxima of the LiNO<sub>x</sub> tracer associated with relative O<sub>3</sub> maxima observed by MOZAIC. The 4 western–most LiTR maxima are associated with negligible ANTR concentrations and are therefore most likely of African origin. The western–most maximum is even associated with a low maximum of the BBTR indicating the convective lifting of a small fraction of African biomass burning emissions further transported by the southwesterly duct as discussed previously (see Fig. 4.7 (c)). The 2 eastern–most LiNO<sub>x</sub> tracer maxima are noteworthy because they are only separated by about 1.5° but their analysis demonstrates different origins. Firstly, the maximum at 74.5°E is associated with a sharp O<sub>3</sub> maximum from MOZAIC corresponding to 'old' LiNO<sub>x</sub> from African origin responsible for important O<sub>3</sub> production. Secondly, the large LiNO<sub>x</sub> tracer maximum at 76°E is associated with the lowest MOZAIC O<sub>3</sub> concentrations and both with the maximum of ANTR tracer and of MOZAIC CO concentrations, all indicating fresh convective outflow from the BOB08 storm. The model results indicate that elevated O<sub>3</sub> in the O3R, is most consistent with African LiNO<sub>x</sub>. Their analysis have also shown that the Meso–NH simulation was able to explain qualitatively most of the structure of the high resolution MOZAIC O<sub>3</sub> and CO transect.

#### 4.4.4 Conclusions

With its high spatio temporal resolution, IASI allows the study of upper troposphere transport and chemistry processes at a day to weekly time scale. In the present study, we have focused on a

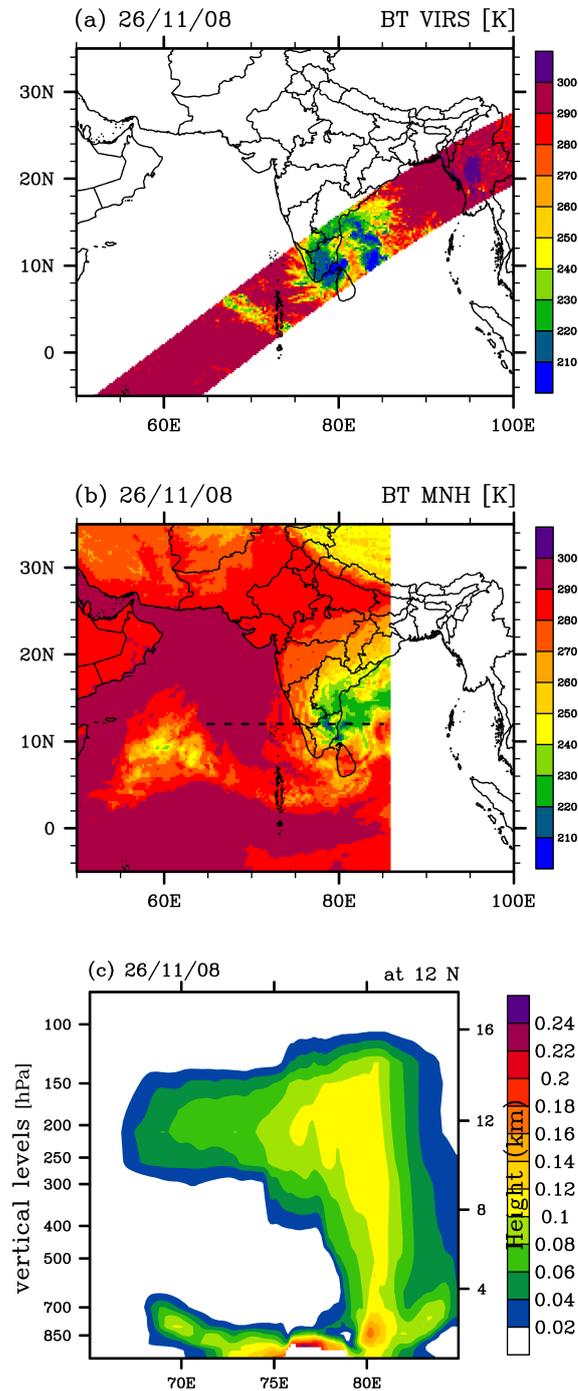


FIGURE 4.8 – (a)  $10.8 \mu\text{m}$  brightness temperature ( $^{\circ}\text{K}$ ) from TRMM/VIRS for November 26, 2008, (b) brightness temperature at  $10.8 \mu\text{m}$  computed by Meso-NH to reproduce Meteosat 07 observations and (c) a cross section of Meso-NH simulated anthropogenic tracer ANTR at  $12^{\circ}\text{N}$  with concentrations normalized by its maximum values, which is represented by black line on the plot (b).

case of  $O_3$  enriched air masses flowing from Africa to northern India during 2008 post-monsoon season, the O3R. This transport event is related to Rossby waves propagating into the tropics and leading to the formation of an equatorial south-westerly duct over the Arabian Sea. The MOZAIC airborne observations have confirmed the crossing of the O3R over the northwestern coast of India during our period of analysis. Moreover, MOZAIC *in-situ* CO observations enabled us to determine that air-masses involved in the O3R were of tropospheric rather than stratospheric origin. Lagrangian simulations with the FLEXPART model were used to identify the regions of the atmosphere through which air masses reaching the O3R had recently passed. They show that air masses that fed the O3R mostly originate from the tropical African UT. In order to have a more accurate determination of the sources and transport pathways of the emissions we have performed meso-scale high resolution simulations with the Meso-NH model. The simulation has been set-up over a large domain encompassing the source regions identified with FLEXPART and with passive tracers implemented for the  $O_3$  precursors sources anticipated with the lagrangian analyses. The Meso-NH simulations have shown that the elevated  $O_3$  values within the O3R over the Arabian Sea are mostly resulting from the LiNOx emissions from central Africa and subsequent transport within the south-westerly duct. This transport pathway brings other elements than the previous studies by [Chatfield et al. \(2007\)](#), [Zachariasse et al. \(2000, 2001\)](#) that have mostly emphasized stratosphere to troposphere exchange as a source of enhanced upper troposphere  $O_3$  in this region. African biomass burning is shown to play a negligible role to the formation of the O3R and this case therefore does not support the hypothesis of [De Laat \(2002\)](#). On the north-eastern edge of the O3R, we have shown that the upper troposphere composition is impacted by Indian pollution that has been uplifted by the tropical storms Nisha and BOB08 resulting in the significant  $O_3/CO$  relationship observed by MOZAIC. This particular transport pathway agrees with the results of [Chatfield et al. \(2007\)](#) which have identified the uplift of Indian pollution as one of the source for enhanced mid- to upper- tropospheric  $O_3$  over the Arabian sea.

## 4.5 Discussions et perspectives

### 4.5.1 Contribution des masses d'air stratosphérique

Dans les commentaires de l'article par les relecteurs, la critique la plus importante revient sur les LiNO<sub>x</sub> comme source principale de l'O<sub>3</sub>R en lui préférant le transport inter-hémisphérique d'O<sub>3</sub> stratosphérique en référence aux travaux de [Zachariasse et al. \(2001\)](#). Cette partie est donc la réponse apportée au relecteur pour montrer que la thèse des LiNO<sub>x</sub> est solide.

Le relecteur insiste sur le fait que l'activité des ondes de Rossby est très intense pendant la période de l'O<sub>3</sub>R ce qui est entre autres responsable de la formation du canal de sud-ouest qui va transporter l'O<sub>3</sub> depuis l'Afrique. D'après lui, cette activité est aussi responsable de l'incursion de masses d'air stratosphériques profondément dans les tropiques pendant cette période, masses d'air qui vont ensuite être transportées par le canal et fortement sinon principalement contribuer à l'O<sub>3</sub>R. Plusieurs éléments issus des observations, des analyses météorologiques et des simulations contredisent cette thèse de l'origine stratosphérique.

Tout d'abord, les cartes de tourbillon potentiel et de vents à 200 hPa issues des analyses ECMWF montrent que du 23 novembre au 1<sup>er</sup> décembre, les masses d'air stratosphérique ( $PV > 1.5$  PVU) sont essentiellement situées au sud de 30°S (Figure 4.9). Des bandes d'air stratosphériques, détachées de la stratosphère extra-tropicale par l'activité ondulatoire, évoluent du 23 novembre au 1<sup>er</sup> décembre entre 30° et 20°S, qui est la limite méridionale des contours de temps de résidence des particules contribuant à l'O<sub>3</sub>R présenté dans l'article (Figure 4.6). Entre le 26 novembre et le 1<sup>er</sup> décembre l'activité ondulatoire est très importante ce qui entraîne le détachement d'un filament d'air stratosphérique ( $PV > 1.5$  PVU) sur Madagascar et le canal du Mozambique les 27 et 28 novembre. Cependant, cette bulle d'air stratosphérique est fortement isolée par la circulation anti-cyclonique de l'onde de Rossby du Jet d'Ouest Subtropical (champs de vents sur la Figure 4.9) et est peu susceptible de traverser l'équateur en raison du blocage par les vents d'un Jet d'Ouest situé de part et d'autre de l'équateur au sud de l'O<sub>3</sub>R. Au-dessus du continent africain, la bande d'air stratosphérique détachée de la stratosphère extra-tropicale présente du 23 au 25 novembre est confinée au sud de 20°S et le creusement de l'onde de Rossby repousse la stratosphère et le Jet d'Ouest Subtropical au sud de 30°S pour la fin de la période (Figure 4.9). Les masses d'air de la haute troposphère africaine du sud de l'équateur sont donc transportées vers le nord à travers l'équateur par la circulation cyclonique établie au nord de 20°S et peuvent entrer dans le canal d'O<sub>3</sub> au-dessus de la mer d'Arabie.

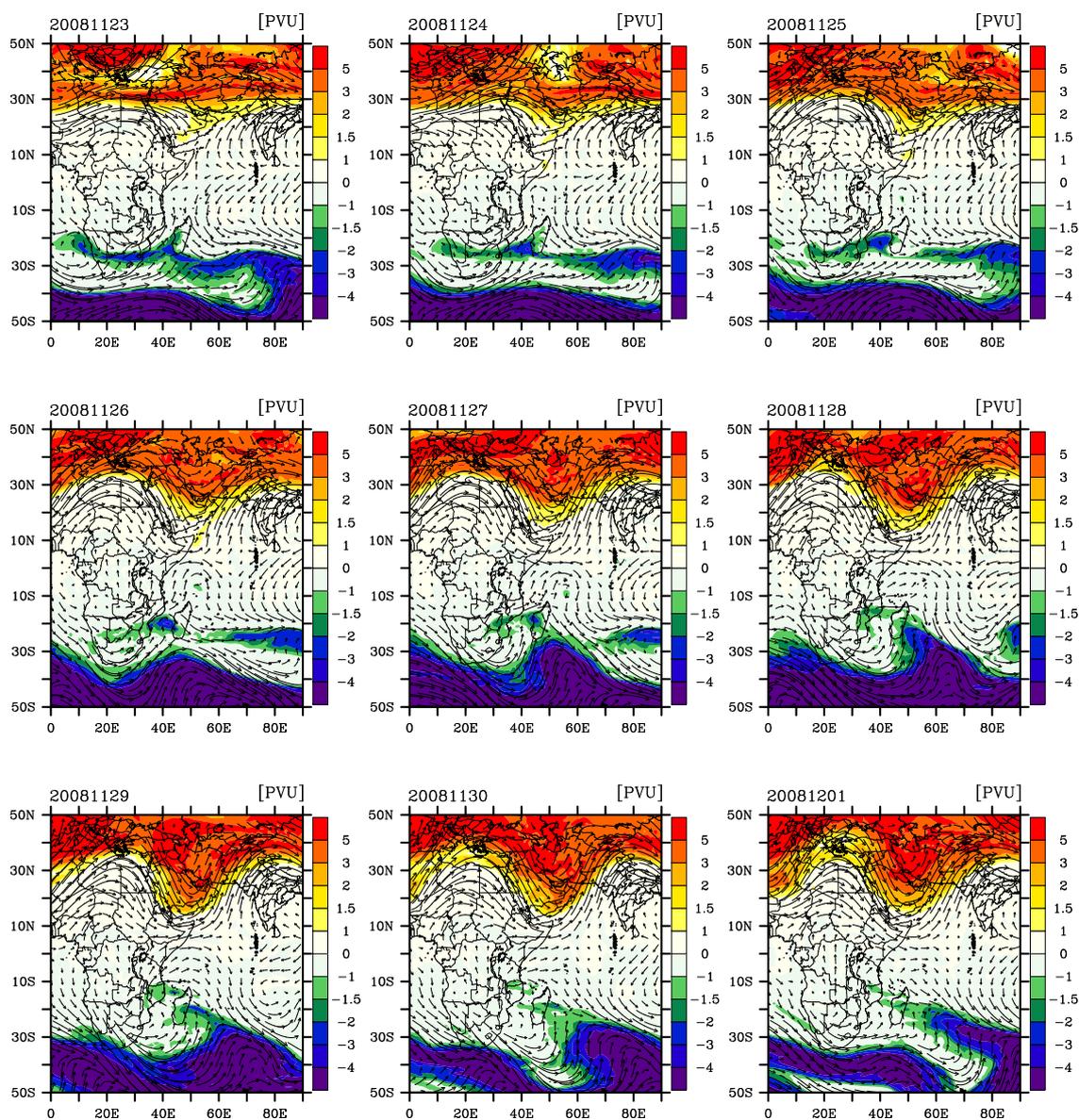


FIGURE 4.9 – Distributions journalières du tourbillon potentiel (PV) et des vents horizontaux issus des analyses ECMWF à 200 hPa pour la période du 23/11/2008 au 01/12/2008.

Ce schéma de transport est confirmé par les temps de résidence issus des simulations FLEXPART (Section 4.6) qui ont montré que sur 10 jours en arrière les masses d'air de la haute troposphère impactant l'O3R provenaient de l'Afrique, au nord de 15°S et de la mer d'Arabie mais pas de la région de Madagascar et du canal du Mozambique. Le relecteur faisant remarquer à juste titre que l'O<sub>3</sub> dans l'UTLS avait une durée de vie supérieure à 10 jours, de nouvelles simulations FLEXPART étendues à 20 jours en arrière ont été effectuées (Figure 4.10). Il est à noter

que les cartes de tourbillon potentiel et de vents ECMWF du 10 au 22 novembre (non montrées) indiquent une activité ondulatoire plus faible qu'à la fin du mois et montrent que la stratosphère reste cantonnée au sud de 20°S pendant cette période. Les nouvelles simulations FLEXPART étendent la zone de l'UTLS (9–15 km) impactant l'O3R à l'ensemble de l'Afrique tropicale de 20°S à 20°N ce qui exclut toujours un rôle important du transport inter-hémisphérique d'air stratosphérique. Les tracés englobent totalement la région impactée par les éclairs détectés par le sondeur LIS confirmant le rôle prépondérant des LiNOx sur l'O3R. Les résultats à 20 jours pour la couche 9–12 km (celle présentée dans l'article) sont peu différents avec une région un peu moins étendue en particulier du côté de l'Afrique de l'ouest.

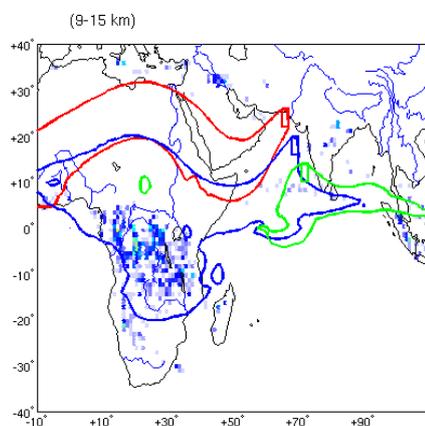


FIGURE 4.10 – Les contours de couleurs représentent la zone recouvrant 70% des temps de résidence total des particules libérées par les boîtes de couleurs correspondantes (le rectangle bleu est celui situé dans l'O3R). Les temps de résidences rétroplumes FLEXPART sont calculés entre 9 et 15 km sur 20 jours, pour des particules libérées entre le 29 Nov. à 12h UTC et le 02 Déc. 2008 12h UTC depuis les trois boîtes situées au-dessus de la mer d'Arabie, et sont présentés avec les taux d'éclairs LIS (intégrés entre le 12 Nov et le 02 Déc. 2008).

D'autre part, le relecteur questionne le potentiel des LiNOx à produire une quantité d'O<sub>3</sub> qui conduit à un aussi fort contraste avec les masses d'air environnantes. D'après les données IASI, à l'intérieur de l'O3R les concentrations d'O<sub>3</sub> sont de l'ordre de 70 ppbv alors qu'elles sont inférieures à 30 ppbv au-dessus de l'Océan Indien. Les mesures *in-situ* des vols MOZAIC qui traversent l'O3R donnent des concentrations de l'ordre de 40 ppbv en dehors de l'O3R à l'altitude de croisière dans la haute troposphère tropicale et de 70–75 ppbv dans l'O3R ce qui est en accord qualitatif avec IASI comme le montre la Fig. 4.3 de l'article. Néanmoins, étant donné que les masses d'air au sein de l'O3R proviennent essentiellement d'Afrique il faut comparer les concentrations mesurées aux concentrations d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère africaine pendant la

saison de post-mousson. Les transects méridiens climatologiques d'O<sub>3</sub> au-dessus de l'Afrique et de l'Atlantique tropicaux pour les 4 saisons obtenus par MOZAIC ont justement été décrits et analysés par [Sauvage et al. \(2006\)](#). Pour la saison SON, le contraste entre les hémisphères nord et sud est très marqué sur ces deux régions avec des valeurs de 50 (<40) ppbv au nord et de >70 (60) ppbv au sud de l'Afrique (Atlantique). D'autre part [Sauvage et al. \(2007b\)](#) ont estimé par un calcul simple que les LiNOx pouvaient conduire à une production de 1.6 ppbv d'O<sub>3</sub> par jour en Afrique pendant la mousson à partir des observations MOZAIC. Pour des valeurs de fonds d'O<sub>3</sub> dans la haute troposphère de 40–50 ppbv on obtiendrait donc des concentrations d'O<sub>3</sub> de 70–80 ppbv en 20 jours. Enfin, l'étude de [Sauvage et al. \(2007a\)](#) basée sur des simulations avec le modèle de chimie de transport GEOS-Chem a montré que l'essentiel du gradient méridien au-dessus de l'Afrique et de l'Atlantique était causé par les LiNOx qui peuvent conduire à une contribution atteignant 30 ppbv d'O<sub>3</sub> dans la moyenne et haute troposphère de l'Afrique tropicale sud ([Sauvage et al., 2007a](#)). Les 70–75 ppbv observés au sein de l'O3R sont donc du même ordre que les valeurs climatologiques dans l'UT d'Afrique du sud en SON et le gradient de 30 ppbv est de l'ordre de grandeur de ce que peuvent produire les LiNOx d'après l'ensemble des études citées.

Enfin, le relecteur n'a pas discuté les observations MOZAIC qui montrent des fortes valeurs de CO (110 ppbv) corrélatives aux fortes valeurs d'O<sub>3</sub> au sein de l'O3R. Une influence prépondérante de la stratosphère ne pourrait expliquer de si fortes valeurs de CO. Malheureusement, pour les vols coïncidant avec le passage de l'O3R, l'instrument de mesure de la vapeur d'eau MOZAIC était en panne. Les champs de vapeur d'eau issus des simulations Mésos-NH et des analyses ECMWF sont tracés sur la Figure 4.11. Le modèle et les analyses sont en bon accord avec des masses d'air très sèches (RH<20%) à l'ouest de 66°E, une augmentation de l'humidité relative de 66° à 71°E et des masses d'air très humides (RH>80%) à l'est de 71°E. Les très fortes valeurs d'humidité au sein de l'O3R sont incompatibles avec une forte influence stratosphérique comme le confirme les études passées. Les couches d'O<sub>3</sub> élevé observées pendant INDOEX dans la haute troposphère sont en effet expliquées par des intrusions d'air stratosphérique extra-tropical du Jet d'Ouest Subtropical nord ([Zachariasse et al., 2000](#)) et sud ([Zachariasse et al., 2001](#)) et, dans tous les cas analysés, dont ceux de transport inter-hémisphérique, les couches d'O<sub>3</sub> élevé sont très sèches (RH<30%). Les valeurs d'humidité >80% des simulations Mésos-NH et des analyses ECMWF écartent donc un impact important d'intrusions stratosphériques pour la formation de l'O3R.

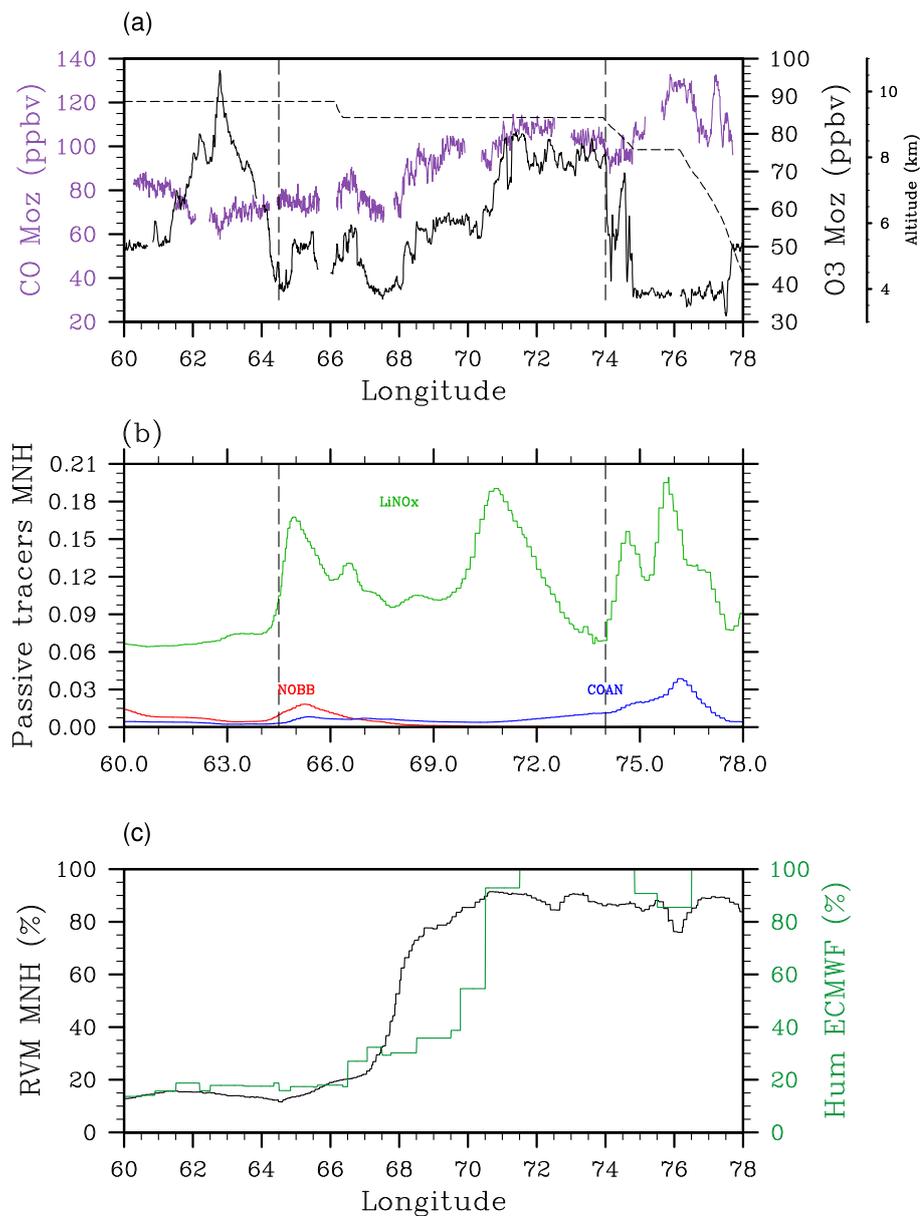


FIGURE 4.11 – (a) : Profils longitudinaux des rapports de mélange de l’O<sub>3</sub> (ligne noire) et du CO (ligne violette) MOZAIC le long du vol Hyderabad–Frankfurt le 3 Décembre 2008. L’altitude de l’avion est tracée en ligne noire tiretée. (b) Sont tracées les concentrations des traceurs passifs Meso-NH le long du même vol MOZAIC à 258 hPa. Leurs concentrations sont normalisées par leur valeur maximale sur tout le domaine. La courbe rouge correspond au NOxBB, la verte aux LiNOx et la bleue au COAN. (c) Profils of Meso-NH (black line) and ECMWF (green line) water vapor mixing ratio along the same MOZAIC flight. The orange vertical dashed lines define longitudes associated to O3R.

### 4.5.2 Fréquence des événements d'export d'O<sub>3</sub> d'Afrique vers l'Asie du Sud

A la suite de l'étude sur l'O3R, la question est de savoir si un tel phénomène de transport intercontinental d'O<sub>3</sub> entre l'Afrique et l'Asie du Sud est fréquent pendant la saison de post-mousson. Les données globales d'O<sub>3</sub> IASI sont produites au LA par le logiciel SOFRID sur la période 2008–2012 ce qui a rendu possible l'analyse de la série temporelle d'O<sub>3</sub> IASI au-dessus de l'Océan Indien pour ces 5 années. L'O3R est une anomalie d'O<sub>3</sub> qui apparaît et persiste le plus longtemps à l'est des côtes africaines entre l'équateur et 10°N. Cet événement est lié à une forte activité des ondes de Rossby qui descendent dans la bande tropicale jusqu'au sud de l'Arabie. A partir des données spatiales IASI et des réanalyses ECMWF, des diagrammes de Hovmöller ont été construits avec :

- les anomalies d'O<sub>3</sub> moyennées sur la bande 0–10°N dans la couche 190–290 hPa calculées comme la différence entre les valeurs journalières et les moyennes pour les mois Oct.–Nov.–Déc.–Janv.
- les anomalies de vents méridiens moyennées sur la bande 15–25°N à 200 hPa
- le tourbillon potentiel (PV) moyenné sur la bande 15–25°N à 200 hPa

La Fig. 4.12 présente ces diagrammes entre 45 et 73°E entre les côtes d'Afrique de l'est et le sud de l'Inde. L'O3R est clairement visible sur les diagrammes de Hovmöller fin novembre début décembre 2008 avec un enrichissement important d'O<sub>3</sub> (jusqu'à 50 ppbv) entre 0 et 10°N corrélatif d'une intensification des vents méridiens (de plus de 14 m/s) et des valeurs de PV indiquant des masses d'air stratosphériques entre 15 et 25°N. D'autres anomalies positives d'O<sub>3</sub> du même ordre sont observables en octobre et décembre 2009, octobre et novembre 2010 et novembre 2012. Néanmoins, seule l'anomalie d'octobre 2009 est corrélée avec une anomalie des vents méridiens de l'amplitude et de l'extension zonale de l'ampleur de celles observées pendant l'O3R. Cet événement a donc été analysé plus en détail pour déterminer les similitudes avec l'O3R. En ce qui concerne la dynamique, l'analyse des champs de vent et de PV ECMWF a montré que l'activité des ondes de Rossby est très forte du 13 au 21 octobre 2009 (Fig. 4.14), particulièrement pour le JOS sud alors que pendant l'O3R la forte activité des ondes de Rossby concernait plutôt le JOS nord. Cela se traduit par des incursions de masses d'air stratosphériques importantes dans la bande tropicale sud au-dessus de Madagascar du 13 au 16 octobre et par l'absence de telles incursions au nord. L'évolution des vents présente aussi des similitudes avec la période de l'O3R. Un jet d'ouest se forme sur l'Océan Indien équatorial dès le 9 octobre pour se renforcer du 13 au 18 octobre en réponse à la forte activité ondulatoire du JOS sud. Ce jet d'ouest se transforme

en un canal de sud-ouest similaire à celui de l'O3R du 19 au 21 octobre. Enfin, les distributions d'O<sub>3</sub> et de vents dans l'UT (Fig. 4.13) présentent des similarités avec celles observées pendant l'O3R avec des valeurs élevées qui apparaissent d'abord au sud-ouest de l'Océan Indien tropical puis au-dessus de la mer d'Arabie en fonction de la présence des jets décrits précédemment. Les incursions de masses d'air stratosphériques discutées précédemment expliquent sans doute en grande partie les fortes valeurs d'O<sub>3</sub> au-dessus de Madagascar. Le programme MOZAIC ne fournit malheureusement pas de données exploitables pour l'évènement d'octobre 2009 car l'analyseur d'O<sub>3</sub> était en panne.

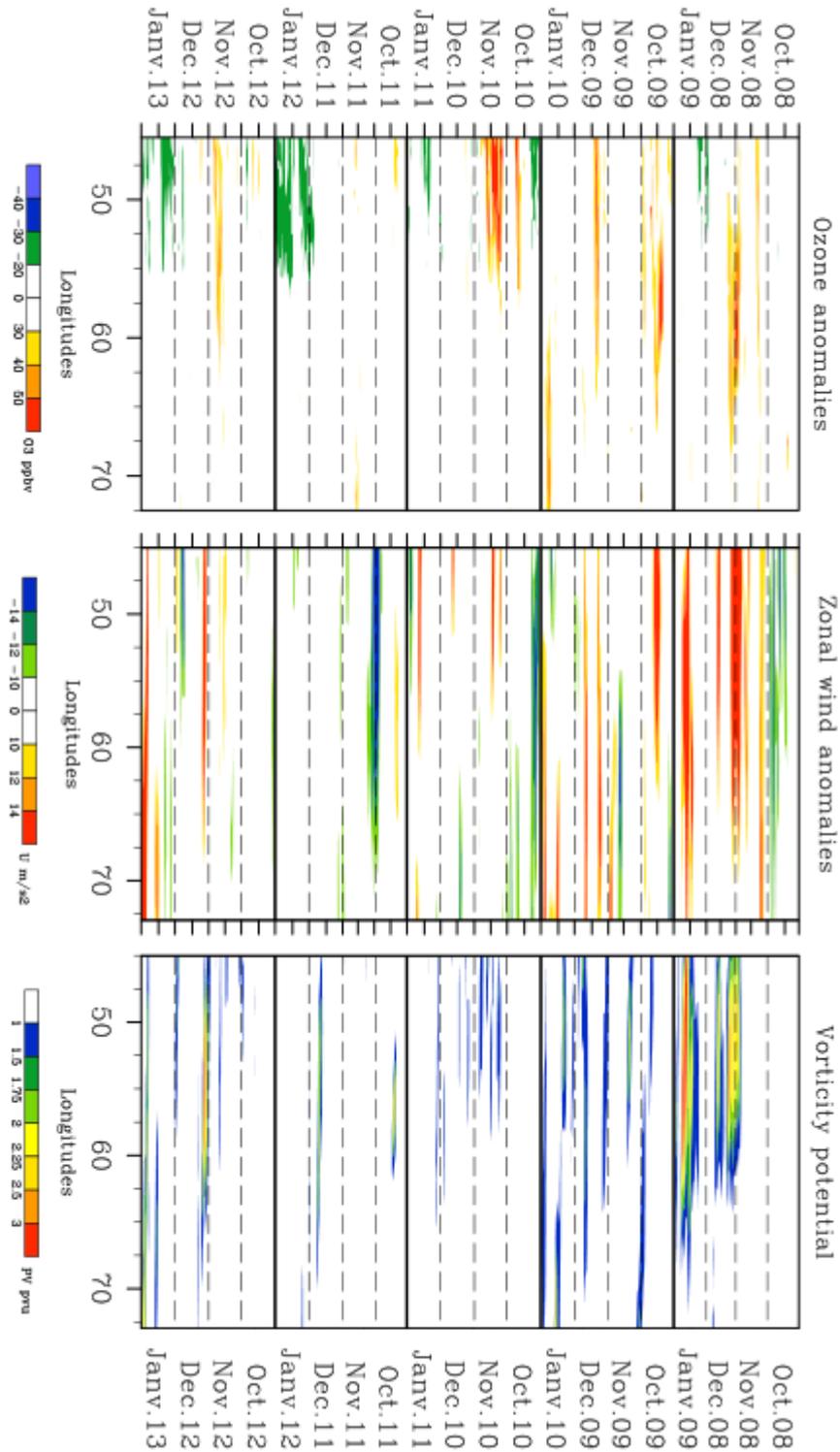


FIGURE 4.12 – (a) Anomalies des concentrations d’ozone IASI entre 190–290 hPa par rapport aux valeurs moyennes sur l’ensemble de cette saison des années 2008 à 2011, moyennées sur 0–10°N. (b) Anomalies de vents méridiens ECMWF à 200 hPa par rapport aux valeurs moyennes sur l’ensemble des saisons des 4 mêmes années, moyennées sur 15–25°N. (c) Le tourbillon potentiel (PV) moyenné sur la bande 15–25°N à 200 hPa.

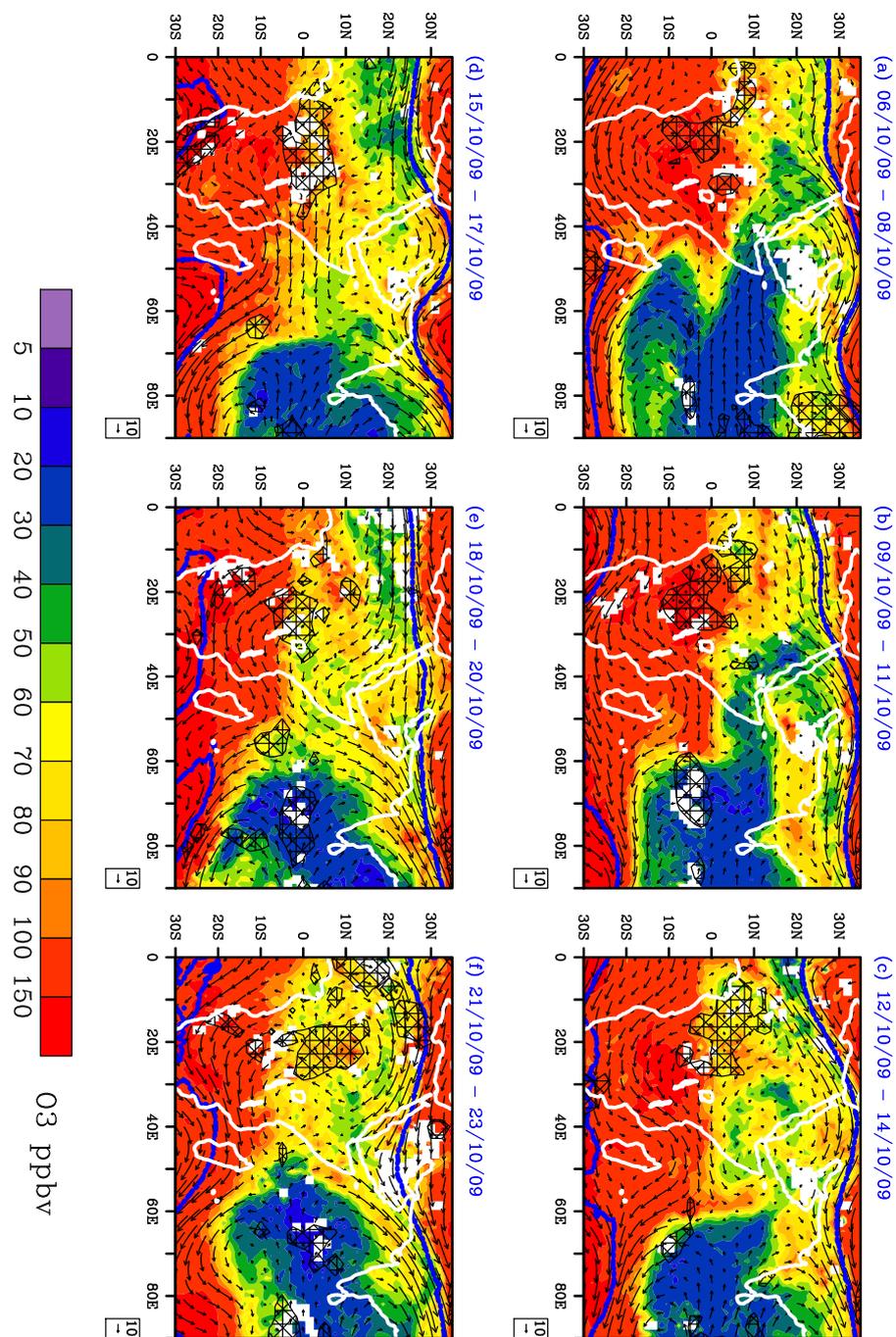


FIGURE 4.13 – Distributions des concentrations d'O<sub>3</sub> upper troposphere IASI-SOFRID (190–290 hPa) pour (a) 06–08 Oct. (b) 09–11 Oct. (c) 12–14 Oct. (d) 15–17 Oct. (e) 18–20 Oct. (f) 21–23 Oct. 2009. Les vents horizontaux à 200 hPa sont représentés par les flèches noires et la ligne bleu représente l'isocontour de tourbillon potentiel à  $\pm 1.5$  PVU à 200 hPa. Les contours hachurés noirs indiquent les zones d'OLR (Outgoing Longwave Radiation) inférieure à 220 W/m<sup>2</sup>.

### 4.5.3 Conclusions et perspectives

L'étude sur l'O3R présentée dans l'article a montré que de fortes concentrations d'O<sub>3</sub> dans l'UT au-dessus de la mer d'Arabie pouvaient avoir d'autres origines que le stratosphere to troposphere exchange qui avait été mis en avant dans les études liées au programme INDOEX (Zachariasse et al., 2000, 2001; Chatfield et al., 2007). Le transport depuis l'Afrique avait déjà été montré comme source d'enrichissement en O<sub>3</sub> dans la MT au-dessus de l'Océan Indien par De Laat (2002) pour les feux de biomasse. La présente étude favorise la source de NO<sub>x</sub> par les éclairs dans la convection continentale au-dessus du continent africain comme la source la plus importante pour la production d'O<sub>3</sub> à l'origine de l'O3R. Le fait que le canal de sud-ouest qui transporte les masses d'air impactées par les éclairs africains au-dessus de la mer d'Arabie se forme suite à une forte activité des ondes de Rossby dans les deux hémisphères, a conduit un des relecteurs de l'article à discuter cette origine et à proposer le stratosphere to troposphere exchange inter-hémisphérique comme plus probable en s'appuyant sur l'étude de Zachariasse et al. (2001). Pour démontrer que cette hypothèse est erronée, une analyse plus fine des champs de PV et de vents pendant la période de l'O3R est réalisée. Malgré la forte activité ondulatoire, les masses d'air ne pénètrent jamais assez profondément dans les tropiques et les simulations lagrangiennes en rétro-plume étendues à 20 jours et jusqu'à 15 km montrent que, en ce qui concerne l'UTLS, les masses d'air de l'O3R ont pour origine l'UT de l'Afrique tropicale dans laquelle la principale source d'O<sub>3</sub> sont les LiNO<sub>x</sub>. La présence de fortes concentrations de CO et l'humidité relative très élevée confirment l'absence de grande quantité d'air d'origine stratosphérique dans l'O3R.

La question se pose ensuite de la fréquence de ces épisodes dans la haute troposphère de l'Océan Indien. Une estimation de l'occurrence de ces épisodes est fournie par les anomalies d'O<sub>3</sub> IASI à l'équateur conjointement avec l'activité ondulatoire du JOS nord au travers des vents méridiens et du tourbillon potentiel. Bien que des enrichissements d'O<sub>3</sub> aient lieu chaque année au-dessus de l'Océan Indien équatorial, seul un événement présente une activité corrélative des ondes de Rossby importante en octobre 2009. Cet événement présente de nombreuses similitudes avec l'O3R avec la formation d'un canal de sud-ouest mais est caractérisé par une activité ondulatoire du JOS plus importante au sud qu'au nord et un enrichissement en O<sub>3</sub> au-dessus du sud-ouest de l'Océan Indien lié à une intrusion stratosphérique.

En terme de perspectives, les anomalies d'O<sub>3</sub> IASI pourraient être utilisées dans la partie sud de l'Océan Indien en combinaison avec l'activité du JOS sud pour caractériser l'impact du transport de masses d'air africaines sur l'Océan Indien et compléter l'étude de Zhang et al. (2012). Il faudrait aussi étudier la saison suivante, ciblée par INDOEX pour déterminer si les LiNO<sub>x</sub> africains

n'ont pas aussi un rôle dans les enrichissements d' $O_3$  au printemps. En ce qui concerne la modélisation, le logiciel IAGOS-FLEXPART-ECCAD développé au LA et qui combine simulations lagrangiennes et inventaires d'émissions pour déterminer l'origine des panaches observés le long des vols IAGOS est un outil pertinent pour étudier systématiquement l'origine des enrichissements en  $O_3$  et CO au-dessus de la mer d'Arabie. Les nouveaux avions IAGOS effectuant les liaisons Asie de l'Est-Moyen Orient permettront aussi de mieux documenter cette région. Enfin, en ce qui concerne MésO-NH, la simulation effectuée pour étudier l'O3R a montré que les LiNOx simulés coïncidaient avec les pics d' $O_3$  observés par MOZAIC à haute résolution. Cette simulation reproduit aussi le transport de pollution anthropique par la tempête tropicale Nisha. Ces résultats très encourageants montrent l'intérêt d'une modélisation haute résolution pour étudier la chimie tropicale. Néanmoins, l'utilisation de traceurs passifs mimant les précurseurs d' $O_3$  ne permet pas de déterminer de manière univoque l'origine de l'enrichissement en  $O_3$  observé. L'activation de la chimie dans MésO-NH permettra de caractériser l'impact des différentes sources de précurseurs sur les distributions d' $O_3$ .

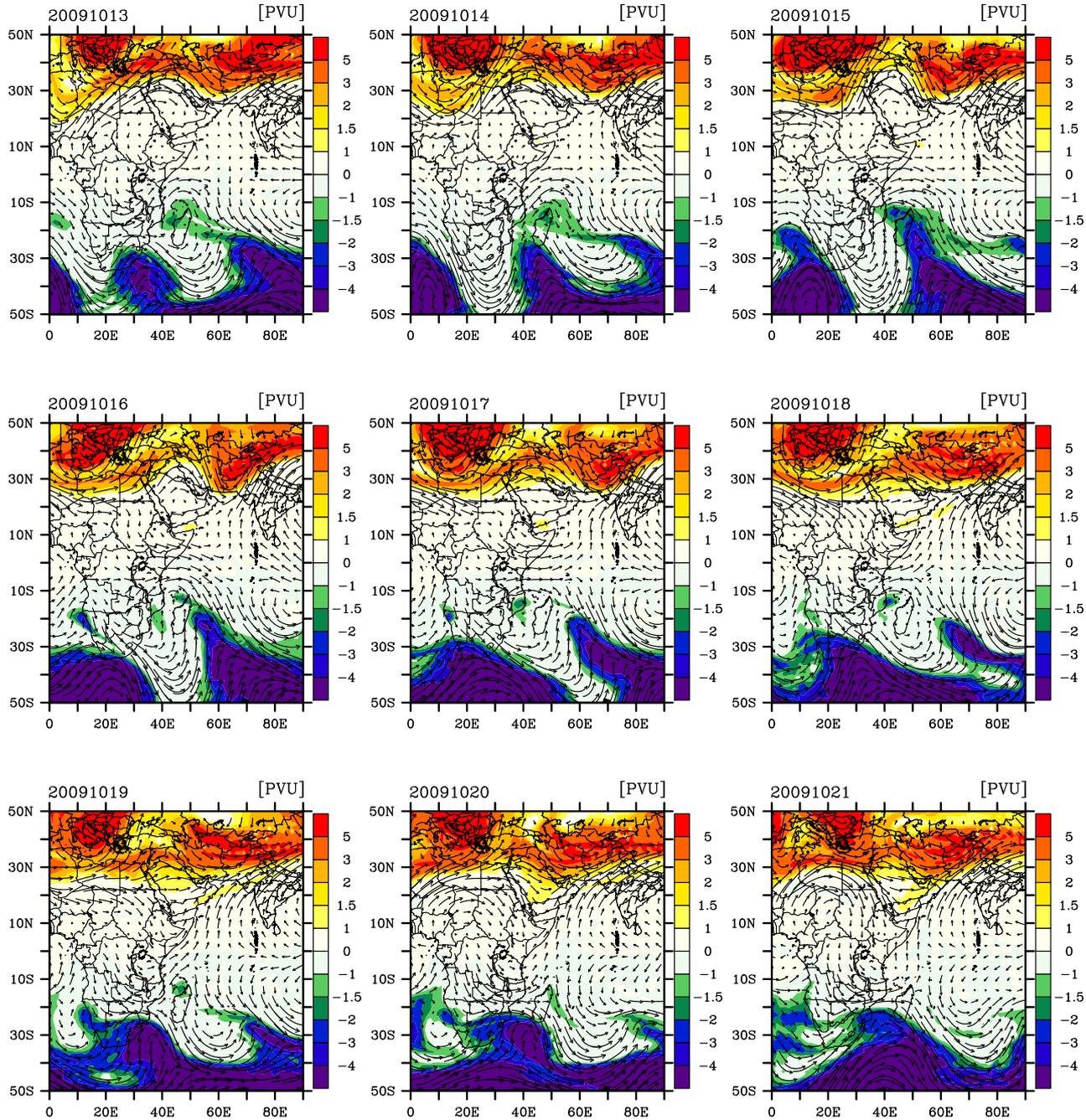


FIGURE 4.14 – Distributions journalières du tourbillon potentiel (PV) et des vents horizontaux issues des analyses ECMWF à 200 hPa pour la période du 13/10/2009 au 21/10/2009



# Transport et transformation de la pollution par la convection nuageuse profonde pendant la mousson asiatique

---

## 5.1 Introduction

Pendant la période de la mousson asiatique, la pollution de la couche limite est soulevée dans l'UTLS où elle est confinée dans l'AMA, engendrant des anomalies de gaz traces (Chapitre 2). Ce processus conduit à l'enrichissement en polluants tels que CO (Park et al., 2007), le cyanure d'hydrogène (HCN) (Randel et al., 2010) et des particules (Vernier et al., 2011) observés par les satellites dans l'AMA jusqu'à 100 hPa. Les études qui ont discuté ces anomalies de concentrations, se sont penchées sur l'origine des polluants et les processus privilégiés de transport de la couche limite vers l'UTLS. La première question est en effet de savoir si le transport jusqu'à 100 hPa est principalement un transport lent par chauffage diabatique ou un transport rapide et sporadique par les mouvements ascendants associées aux systèmes convectifs. L'autre question reliée à la précédente est de connaître l'origine des masses d'air qui pénètrent jusqu'à la basse stratosphère pendant la mousson. Pour certains, ces masses d'air proviennent de la région de la mousson (Inde et golfe du Bengale, Park et al. (2007, 2009)) alors que pour d'autres (Fu et al., 2006; Heath and Fuelberg, 2013) elles proviennent de la convection profonde qui a lieu sur le plateau tibétain. En ce qui concerne les polluants, il faut cependant une conjonction entre la zone de soulèvement et une couche limite polluée ce qui n'est pas le cas du plateau tibétain. L'étude de Bergman et al. (2013) montre que le chemin de transport privilégié de la couche limite vers l'AMA serait un "conduit" qui se situe à cheval sur la pente sud de l'Himalaya au niveau du Népal et sur le plateau tibétain, régions caractérisées par des systèmes convectifs nuageux profonds d'après Houze et al. (2007).

De nombreuses études ont utilisé des modèles de chimie atmosphérique pour étudier ces questions. Les modèles de chimie de transport (Li et al., 2005; Park et al., 2009) ont des résolutions de l'ordre de 200 km, beaucoup trop faibles pour reproduire les systèmes convectifs. Kumar

[et al. \(2012\)](#) évaluent la capacité du modèle à aire limitée WRF-Chem à reproduire les signatures chimiques dans la basse troposphère de l'Asie du Sud sur une année. Les auteurs utilisent une résolution spatiale relativement faible (45 km) et concluent à la nécessité d'augmenter la résolution du modèle (15 km) pour représenter correctement le transport induit par la topographie complexe de la région himalayenne. [Heath and Fuelberg \(2013\)](#) démontrent le rôle de la convection dans le transport de la pollution depuis la couche limite en Asie du Sud par des simulations avec le modèle WRF à haute résolution (de 4 à 12 km). Les auteurs utilisent les champs météorologiques de WRF pour forcer le modèle lagrangien FLEXPART mais leur étude ne comporte pas de chimie.

L'objectif de cette partie de la thèse est de caractériser l'impact de différents systèmes convectifs himalayens sur la composition de l'UTLS pendant la mousson au travers du transport et de la transformation chimique de polluants issus de la couche limite. L'étude se concentre sur un système nuageux choisi comme représentatif d'une convection nuageuse profonde dans la partie centrale de l'Himalaya. La première partie des résultats présente la méthode utilisée pour choisir le cas d'étude. Cette méthode est basée sur les observations de la plateforme TRMM et des simulations du modèle FLEXPART. La deuxième partie expose la simulation du cas d'étude avec le modèle Méso-NH et la validation du système convectif simulé avec les données de la plateforme TRMM. Le cas d'étude permet d'illustrer les processus de transport privilégiés des polluants anthropiques issus de la couche limite à partir d'une simulation incluant un traceur passif et d'amorcer une première discussion sur l'impact de ce transport sur la composition de l'UTLS à partir d'une simulation incluant la chimie complète de l'O<sub>3</sub>.

## 5.2 Les systèmes convectifs pendant la mousson

[Houze et al. \(2007\)](#) caractérisent les systèmes convectifs himalayens pendant la mousson en utilisant les observations du radar de précipitation (PR) de la plateforme TRMM. Ils identifient trois régions du piémont himalayen avec des systèmes convectifs de types différents. La partie Ouest est caractérisée par des systèmes très profonds (echo à 40 dBZ jusqu'à 17 km) peu étendus et non précipitants. Les masses d'air soulevées dans ces systèmes proviennent de la mer d'Arabie et traversent la zone très sèche du désert du Thar ([Medina et al., 2010](#)). Elles ne sont donc pas particulièrement chargées en pollution. Dans la partie centrale les systèmes nuageux sont plus étendus mais restent profonds (echo 40 dBZ jusqu'à 14-15 km). Pour ces systèmes les masses d'air proviennent généralement du golfe du Bengale et traversent la zone très polluée de la plaine du Gange avant d'être soulevées. Enfin, dans la partie orientale de l'Himalaya, les systèmes sont

moins intenses (echo à 40 dBZ jusqu'à 10-11 km) très étendus et donnent lieu à des précipitations stratiformes. Houze et al. (2007) ont aussi montré que le plateau tibétain est impacté par des systèmes convectifs peu larges mais profonds (echo à 40 dBZ jusqu'à 12-13 km).

En suivant les études de Houze et al. (2007) et de Medina et al. (2010) les données de la plateforme TRMM sont utilisées pour caractériser statistiquement les systèmes convectifs pendant la mousson. Les histogrammes des sommets des systèmes convectifs tracés sur la figure 5.1 (a) sur une grille de  $4 \times 4^\circ$  pour la période juillet-août 2009 sont analysés. Les systèmes convectifs de la région du golfe de Bengale atteignent des altitudes assez faibles ( $< 12$  km). Dans la région de l'Himalaya centrale les systèmes sont effectivement plus profonds avec un nombre d'occurrence équivalent pour les systèmes atteignant des altitudes entre 11 et 15 km. Les réflectivités moyennes du radar PR sont tracées pour la même période sur la figure 5.1 (b). Les systèmes convectifs les plus intenses se trouvent aussi dans les région de l'Himalaya de l'Ouest et centrale. L'observation de systèmes convectifs très intenses et profonds au centre de l'Himalaya corrobore la présence du "conduit" de transport décrit par Bergman et al. (2013).

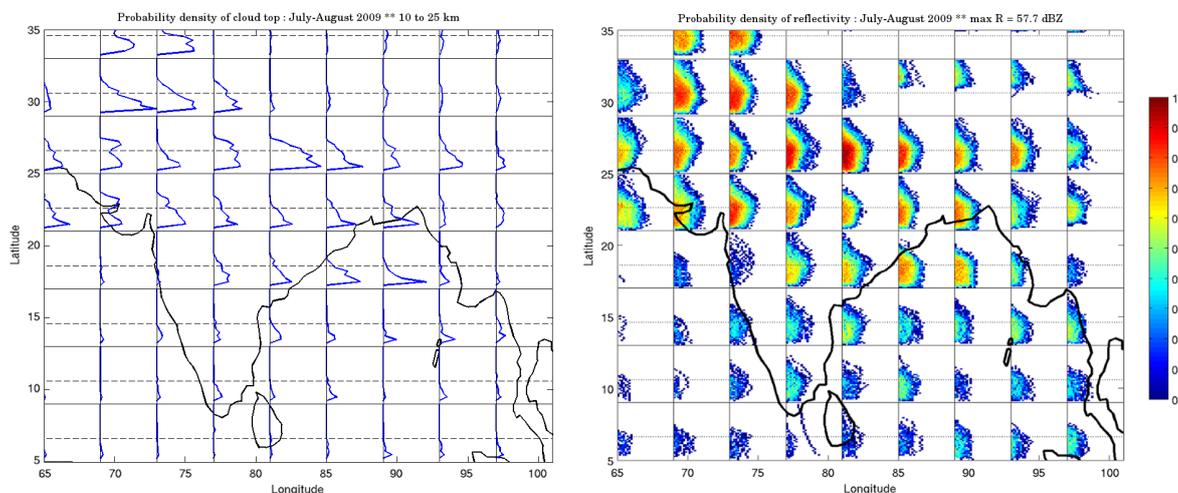


FIGURE 5.1 – Carte de densités de probabilité (a) de la hauteur des sommets nuageux et (b) de la réflectivité détecté par le satellite TRMM avec l'instrument PR (respectivement produit 2A23 et 2A25). (a) Chaque panneau a en son ordonnée l'altitude entre 10 et 25 km et en abscisse la densité de probabilité de la zone recouverte calculée par rapport à la valeur maximale du domaine global. (b) L'altitude sur les ordonnées des figures est comprise entre 10 et 20 km et en abscisse sont représentés les valeurs de réflectivité. Le code couleur représente la densité de probabilité de la zone géographique recouverte calculé par rapport à la valeur maximale sur le graphe. Les lignes pointillées représentent l'altitude à 14 km.

L'identification d'un système convectif à même de participer au transport de pollution de la

couche limite vers l'UTLS est réalisé sur la base de donnée développée par [Liu et al. \(2008\)](#). Cette base de donnée utilisable en ligne via le site <http://www.met.utah.edu.trmm/> compile et rend accessible l'ensemble des observations de la plateforme TRMM de 1998 à 2014. Elle a été construite en 3 étapes : tout d'abord, les mesures des différents instruments sont colocalisées sur une grille commune correspondant aux pixels de l'instrument PR (données de niveau 1). Les caractéristiques des nuages et des précipitations sont alors déterminées par différentes méthodes à partir des données colocalisées de niveau 1 (données de niveau 2). Par exemple, suivant la méthode de [Nesbitt et al. \(2000\)](#), un évènement de précipitation correspond à des données ayant une réflectivité PR près de la surface  $\geq 20$  dBZ ou un signal de diffusion par la glace correspondant à des valeurs de la température de brillance mesurée par TMI à 85 GHz corrigée de la polarisation (PCT)  $\leq 250$  K [Spencer et al. \(1989\)](#). D'autres produits tels que la superficie et le volume de pluies stratiformes et convectives, la hauteur maximale atteintes par les systèmes convectifs à 20, 30 et 40 dBz, le minimum de PCT à 37 et 85 GHz, la température de brillance la plus faible, la température de brillance maximale près de la surface et de nombreux autres paramètres. En utilisant les critères définis précédemment, des climatologies des nuages et des précipitations sont produites (données de niveau 3). Grâce à cet outil les évènements convectifs les plus intenses et les plus profonds ont été identifiés pour la période de la mousson de l'année 2009 dans la région de l'Himalaya. S'appuyant sur les travaux de [Houze et al. \(2007\)](#), les critères de sélection utilisés sont :

- Une hauteur de sommet nuageux  $> 10$  km
- Une réflectivité  $> 40$  dBz sur plus de 5 km d'altitude
- Une localisation dans la région du versant sud de l'Himalaya

Dans un deuxième temps l'origine et le devenir des masses d'air soulevées par ces systèmes sont déterminés à l'aide de simulations lagrangiennes du modèle FLEXPART telles que celles décrites au chapitre 3. Le cas d'étude retenu a été observé le 12 août 2009 entre Kanpur et Katmandou à la frontière entre l'Inde et le Népal ( $27.5^{\circ}\text{N} - 83.5^{\circ}\text{E}$ ). Le système s'étend sur  $3^{\circ}$  de longitude et  $1.5^{\circ}$  de latitude avec des altitudes des sommets nuageux supérieures à 8 km (Figure 5.2 (b)). Au centre du système, les sommets nuageux atteignent des altitudes comprises entre 12 et 16 km (Figure 5.2 (b)) et les réflectivités du radar PR sont supérieures à 30 dBZ (Figure 5.2 (c)). Enfin, la coupe verticale de la réflectivité du radar PR donne une idée de la structure du système convectif, avec des mesures de réflectivité  $> 20$  dBZ au-dessus de 15 km, une étendue de près de 250 km et des valeurs de réflectivité  $> 40$  dBZ atteignant 10 km et une température de brillance  $< 150$  °K.

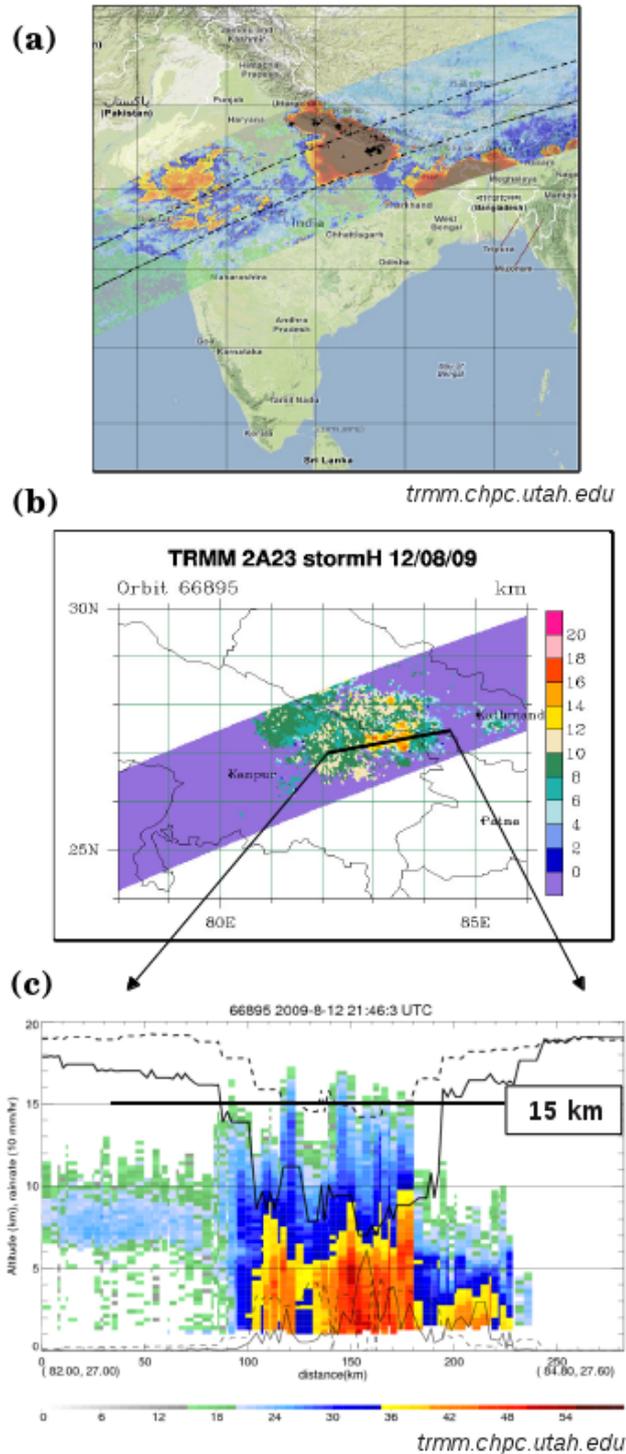


FIGURE 5.2 – (a) Observations de la température de brillance par VIRS/TRMM et des éclairs détectés par LIS (repérés par des croix). (b) Altitude des sommets nuageux déduites des observations du radar PR/TRMM. (c) Coupe verticale de la réflectivité (en dBZ cf code couleur) par le radar PR, dont la section est représenté sur le panel (b). La température de brillance est représenté en trait plein sur l'axe y de droite (Image provenant du site de [University of Utah PMM Science](http://University of Utah PMM Science)).

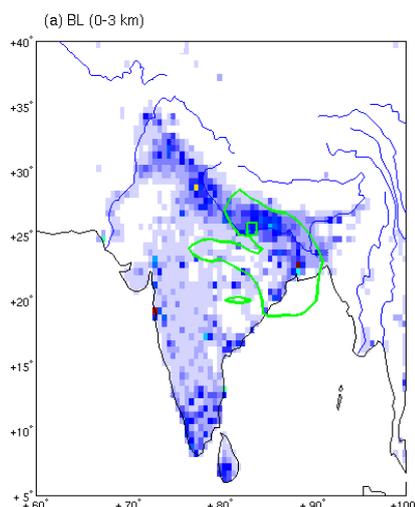


FIGURE 5.3 – Le contour en vert représente 70% des temps de résidence total dans la couche entre la surface et 3 km d’altitude pour des particules libérées par la boîte d’émission (rectangle vert) située entre 3 et 5 km d’altitude. Les temps de résidences rétro–panaches FLEXPART sont calculés sur 7 jours, pour des particules libérées durant 1h à partir du 12 août 2009 21h UTC. Sont représentées en violet les émissions anthropiques mensuelles de l’inventaire MACCity, pour le CO en concentrations normalisées.

Les résultats de la simulation FLEXPART de 7 jours vers l’arrière à partir du 12 août 2009 et d’une boîte centrée sur le système (27.3–27.8°N, 82.5–83.0°E) entre 3 et 5 km d’altitude sont présentés sur la figure 5.3. Les masses d’air de la couche limite qui vont alimenter le système proviennent donc majoritairement du nord–est de l’Inde et en particulier de la plaine du Gange, région la plus polluée d’Asie du Sud comme le montre les émissions mensuelles de CO anthropiques de MACCity sur la figure 5.3. Une simulation de 10 jours vers l’avant temporellement à partir de la même boîte mais située cette fois-ci entre 10 et 12 km, montre le devenir des masses d’air soulevées et entraînés par le système convectif, figure 5.4 (a) pour la couche 8-14 km et (b) 14-18 km. La simulation FLEXPART montre que ce devenir est différent selon les altitudes de déentraînement. Dans la haute troposphère, entre 8 et 14 km, les masses d’air vont être transportées vers l’Est jusqu’en Afrique par le Jet d’Est Tropical. Par contre à plus haute altitude dans l’UTLS, entre 14 et 18 km, les masses d’air sont enfermées dans l’AMA entre la Méditerranée et le nord de l’Inde. Le système sélectionné est donc bien susceptible d’injecter des masses d’air polluées à très haute altitude au sein de l’AMA.

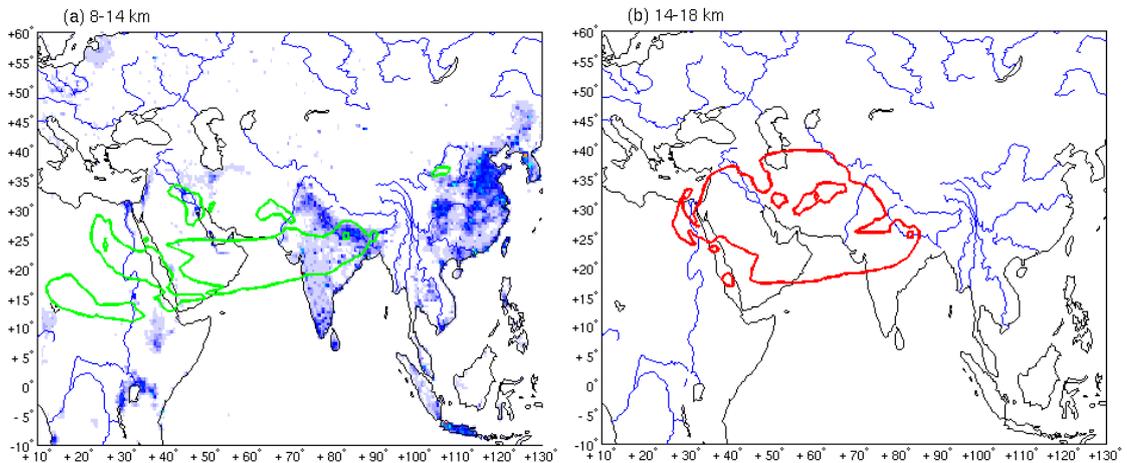


FIGURE 5.4 – Contours représentant 70% des temps de résidence total des particules libérées par la boîte d’émission (a) en vert pour les niveaux entre 8 et 14 km et (b) en rouge pour les niveaux entre 14 et 18 km. Les temps de résidences vers l’avant FLEXPART sont calculés sur 10 jours, pour des particules libérés durant 1h à partir du 12 août 2009 21h UTC. Sont représentées en violet les émissions anthropiques mensuelles de l’inventaire MACCity, pour le CO en concentrations normalisées.

### Simulation du système convectif nuageux avec Méso-NH

La simulation Méso-NH effectuée pour étudier l’impact du système convectif du 12 août 2009 sur la composition de l’UTLS est décrite dans la section 3.2. Etant donné la taille du domaine nécessaire pour englober à la fois la région source et la région impactée identifiées par les simulations FLEXPART, la résolution horizontale a été fixée à 10 km. Elle est donc meilleure que celles de la plupart des modèles utilisés pour étudier la chimie atmosphérique dans cette région mais ne permet pas de représenter la convection de manière explicite. Pour évaluer le réalisme de la simulation du système convectif, nous avons utilisé les observations du sondeur infrarouge VIRS à bord de la plateforme TRMM. Le modèle Méso-NH peut en effet calculer des températures de brillance infrarouge et micro-onde à partir des champs simulés grâce au code de transfert radiatif RTTOV (Saunders et al., 2005) implémenté dans le modèle. Cette approche modèle-vers-satellite permet de valider les simulations Méso-NH à court terme. Les températures de brillance à  $10.8 \mu\text{m}$  simulées par Méso-NH pour la sortie du 12 août 2009 18h et celles mesurées par le sondeur VIRS à son passage à 21h sont tracées sur la figure 5.5. Les températures de brillance  $< 210^\circ\text{K}$  (contour blanc sur le panneau de droite) sont caractéristiques de systèmes convectifs très profonds. Le modèle Méso-NH reproduit donc correctement la localisation et l’intensité du système convectif ciblé. Néanmoins, le modèle a tendance à sur-estimer les températures de brillance et donc à sous-estimer l’altitude atteinte par les nuages.

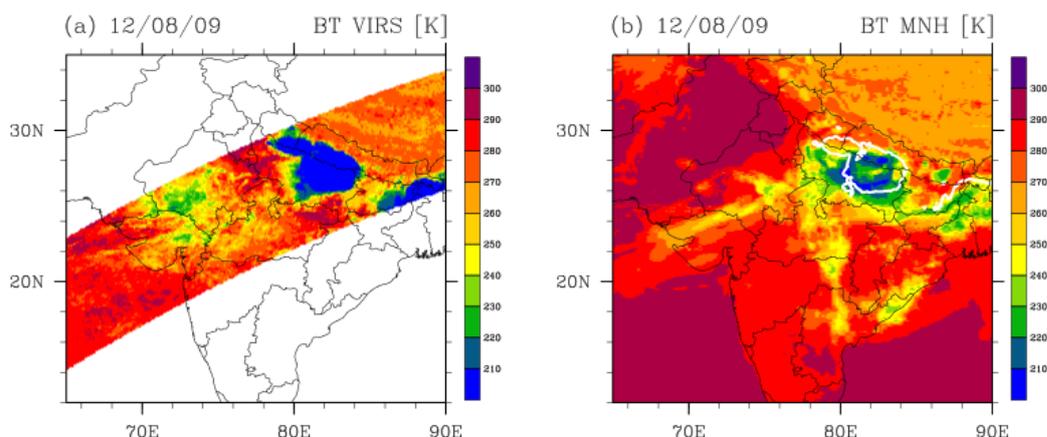


FIGURE 5.5 – (a) Températures de brillance à  $10.8 \mu\text{m}$  ( $^{\circ}\text{K}$ ) observées par l'instrument VIRS/TRMM le 12 août 2009 à 21h. (b) calculé par Mésos-NH le 12 août 2009 à 18h. Le contour blanc est l'isocontour à  $210^{\circ}\text{K}$  des données TRMM.

### 5.3 Alimentation de l'AMA : le cas d'un traceur passif

Les observations satellites ont montré l'accumulation de traceurs de pollution tels que le CO et le HCN au sein de l'AMA entre 200 et 100 hPa. La première approche de modélisation consiste à utiliser un traceur passif initialisé avec les émissions de CO anthropiques pour caractériser les processus de transport de la pollution et en particulier l'altitude maximale atteinte par cette pollution. Les sections latitude-pression à  $82^{\circ}\text{E}$  et longitude-pression à  $28.5^{\circ}\text{N}$  des distributions du traceur sont tracées sur la figure 5.6 pour le 12 août 2009 à 18h. D'après le modèle, des quantités importantes de traceur sont détraînés entre 150 et 100 hPa. Le transport vertical a lieu principalement entre  $25$  et  $28^{\circ}\text{N}$  (Figure 5.6 (b)) et entre  $75$  et  $80^{\circ}\text{E}$  (Figure 5.6 (a)) là où les vents verticaux sont les plus forts et où les sources de surface sont les plus importantes.

Une fois dans la moyenne et haute troposphère ( $p < 400$  hPa) les masses d'air polluées sont advectées vers le sud (Figure 5.6 (b)) et vers l'ouest (Figure 5.6 (a)). L'advection du traceur est mieux visible sur les coupes horizontales à 230, 150 et 110 hPa tracées sur la figure 5.7 pour le 13 août 2009 à 18 h. A 230 hPa, la circulation est déjà caractérisée par un anticyclone centré sur le plateau tibétain et par le Jet d'Est Tropical très marqué entre  $10$  et  $24^{\circ}\text{N}$ . Les masses d'air polluées qui ont été soulevées par les systèmes convectifs dans la région du piémont de l'Himalaya sont transportées vers le sud et confinées dans le Jet d'Est Tropical jusqu'à la mer rouge. A 150 hPa, la circulation anticyclonique est plus marquée et les vents sont nettement plus forts qu'à 230 hPa au centre de l'anticyclone, là où sont détraînés les masses d'air polluées. Le traceur est

transporté par la circulation anticyclonique, d'abord par le Jet d'Est Tropical jusqu'au moyen orient, ensuite vers le nord-est jusqu'à la mer Caspienne puis vers l'est. Enfin, à 110 hPa les quantités de traceur détraînés restent importantes et le traceur est advecté par la circulation anticyclonique presque de la même manière qu'à 150 hPa.

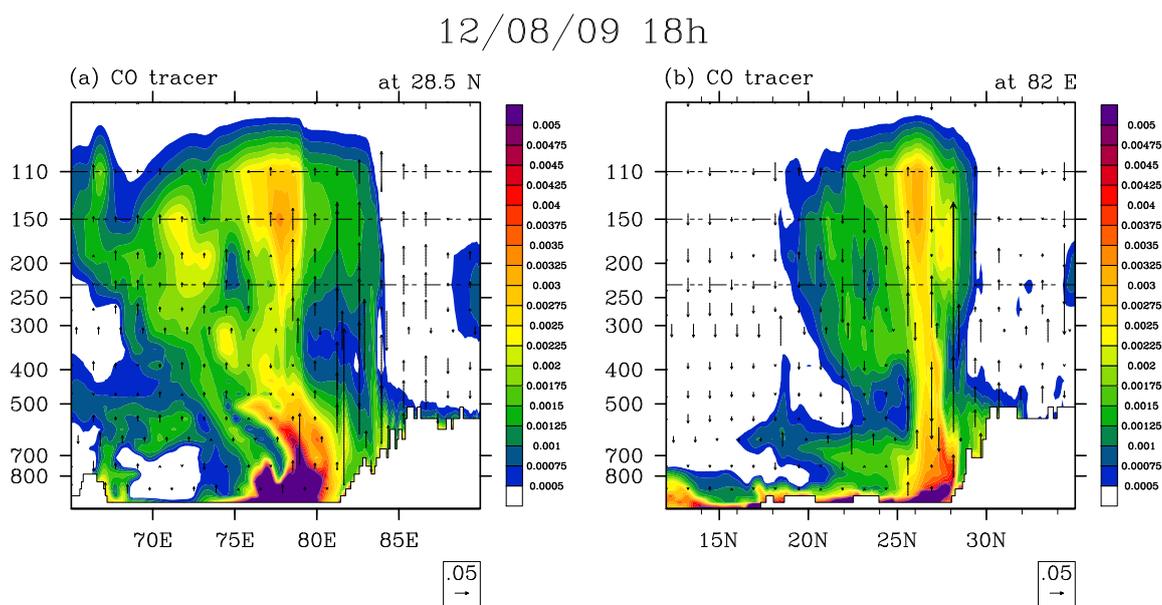


FIGURE 5.6 – Coupes verticales du traceur CO (concentrations normalisées) et du vent vertical (représenté par des flèches – en m/s) modélisé par Méso-NH le 12/08/09 à 18h. (a) à 28,5°N et (b) à 82°E. Les lignes horizontales pointillées repèrent les coupes présentées en figure 5.7.

D'après ces résultats, le détraînement de systèmes convectifs très profonds comme celui du 12 août 2009 peut être en partie responsable de l'alimentation de l'AMA par la pollution asiatique jusqu'à 100 hPa. En effet, la durée de la simulation effectuée (7 jours) ne permettrait pas un transport lent du traceur de pollution par chauffage diabatique jusqu'à cette altitude et les distributions des traceurs à 150 et 110 hPa montrent clairement qu'ils sont advectés à partir des systèmes convectifs de l'Himalaya centrale.

Cette étude de cas ne permet pas de généraliser sur la contribution relative de la convection nuageuse profonde dans l'alimentation de l'AMA sur la période intégrée de la mousson asiatique. Elle démontre par contre l'efficacité de la convection nuageuse profonde comme vecteur de transport des polluants vers la haute troposphère, qui en fait un processus météorologique incontournable pour la compréhension de la dynamique et de la chimie pendant la période de la mousson en Asie.

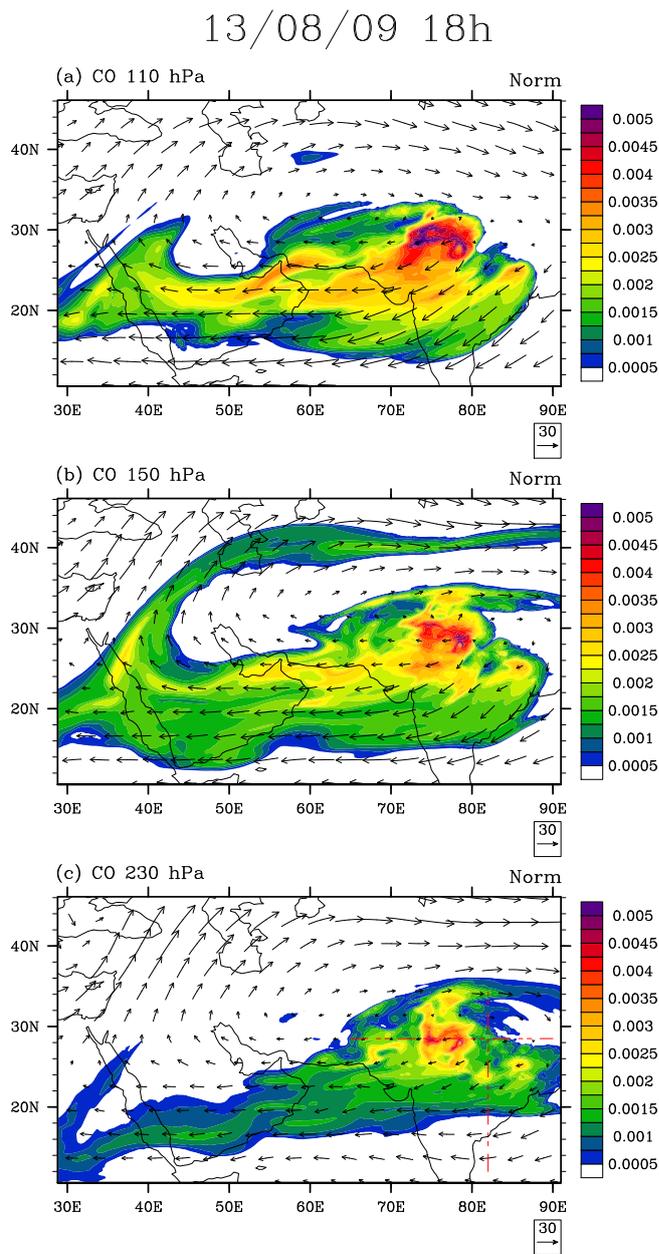


FIGURE 5.7 – Distributions du traceur passif CO (concentrations normalisées) et des vents horizontaux (représentés par des flèches – en m/s) modélisés par Mésos-NH à 110, 150 et 230 hPa pour le 13/08/09 18h. Les lignes horizontales pointillées rouges sur le panneau (c) repèrent les coupes verticales de la figure 5.6.

## 5.4 L’impact du système convectif nuageux sur la composition de l’UTLS

L’utilisation du traceur passif apporte une première information sur les processus de transport empruntés par les polluants anthropiques de la couche limite à l’UTLS. La distribution d’un traceur passif ne peut pas être comparée quantitativement à aucune observation ou climatologie et une telle simulation ne permet pas de connaître l’impact des polluants sur la composition et la chimie de l’UTLS. Une simulation basée sur le schéma chimique ReLACs et les conditions aux limites du domaine imposées par le modèle MOZART (voir chapitre 3 section 3.2.2) a donc été effectuée sur la même période et sur le même domaine que la simulation du transport du traceur passif. Les distributions du CO, des NO<sub>x</sub> et de l’O<sub>3</sub> sont tracées sur la figure 5.8 pour les coupes latitude et longitude–pression et sur la figure 5.9 pour les coupes horizontales de manière analogue à ce qui a été présenté pour le traceur passif.

Le CO, relativement peu réactif, a un comportement assez proche de celui décrit dans la section précédente pour le traceur passif qui est émis à partir du même cadastre. C’est précisément ce que montrent les panneaux (a) et (d) de la figure 5.8, avec des structures spatiales très comparables à celles des panneaux (a) et (b) de la figure 5.6. La simulation chimique est caractérisée par des concentrations de fond non nulles imposées par les conditions initiales alors que les concentrations du traceur sont nulles au début de la simulation en mode traceur passif. De ce fait, les gradients de concentrations sont moins marqués pour les distributions de CO. En outre, certaines structures présentes dans la simulation chimique comme les fortes concentrations de CO entre 200 et 300 hPa au sud (Figure 5.8 (d)) proviennent du transport de CO par le Jet d’Est Tropical depuis les bords du domaine.

L’O<sub>3</sub> présente une structure verticale très différente avec en particulier une forte anti-corrélation avec les distributions de CO. Les valeurs d’O<sub>3</sub> faibles dans la haute troposphère, au niveau des zones ascendantes du système convectif sont attendues du fait que les concentrations d’O<sub>3</sub> sont plus faibles dans la couche limite que dans la haute troposphère. L’appauvrissement en O<sub>3</sub> dans l’UTLS par le mélange convectif a été discuté par Lawrence et al. (2003) et Doherty et al. (2005). Les fortes valeurs d’O<sub>3</sub> au nord-ouest du domaine entre 200 et 100 hPa correspondent à une intrusion d’air stratosphérique le long du Jet d’Ouest Tropical.

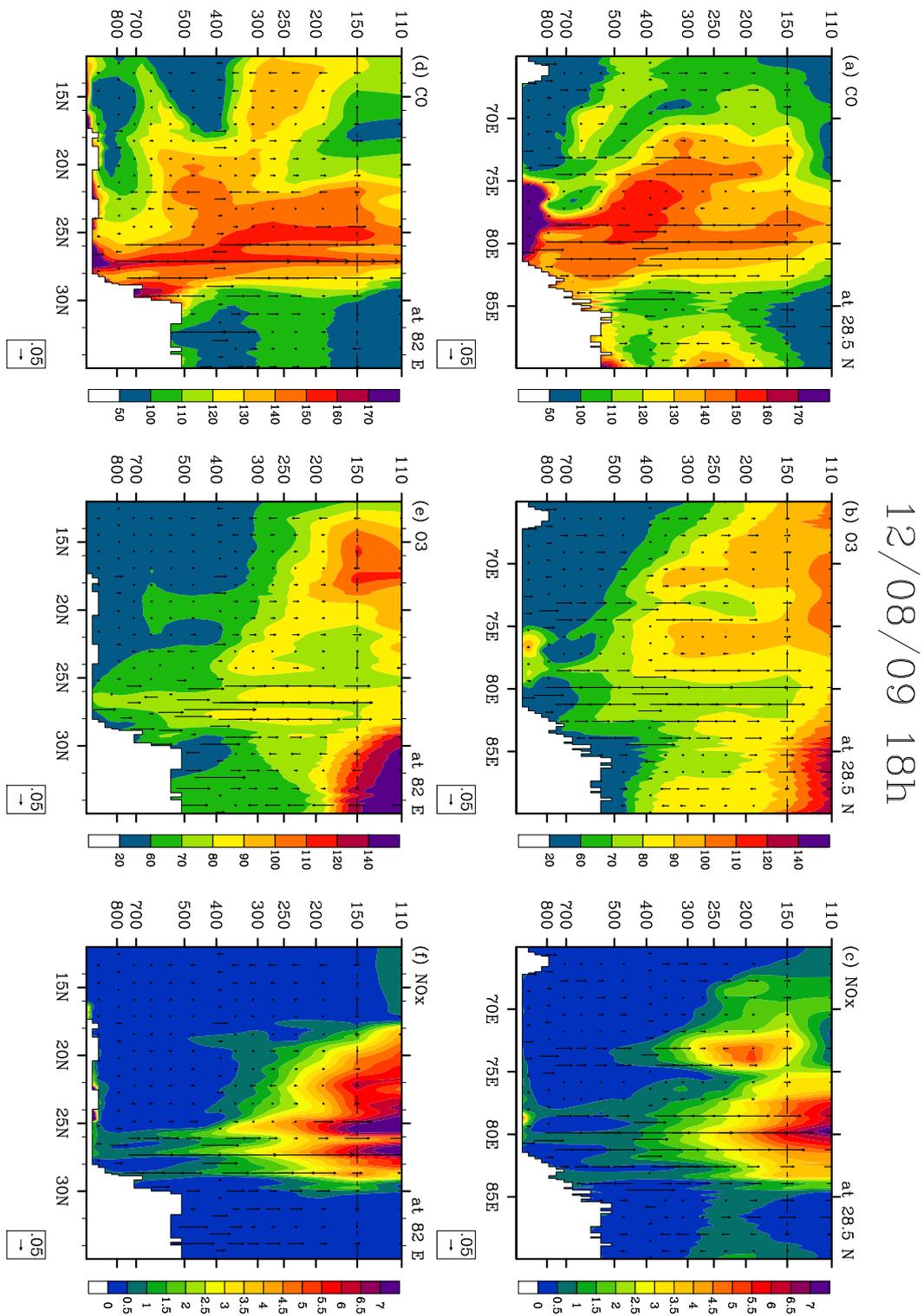


FIGURE 5.8 – Coupes verticales des espèces chimiques modélisées par Mésó-NH : CO, O<sub>3</sub> et NO<sub>x</sub> (en ppbv) et du vent vertical (représenté par des flèches – en m/s) pour le 12/08/09 à 18h. (a)(b)(c) sont les distributions à 28,5°N et (d)(e)(f) à 82°E. Les lignes horizontales pointillées repèrent les coupes présentées en figure 5.9.

Les distributions verticales de NOx (Figure 5.8 (c) et (f)) présentent deux maxima, un dans la couche limite qui correspond aux émissions anthropiques et un dans la haute troposphère au niveau des plus fortes ascendances convectives qui correspond aux LiNOx. Il apparait tout de suite que les quantités de LiNOx produites sont trop élevées avec des rapports de mélange qui atteignent plus de 5 ppbv sur un grand domaine de l’ordre de  $10^{\circ}\times 10^{\circ}$  et des maxima supérieurs à 7 ppbv. Des pics avec des valeurs de NOx de plusieurs dizaine de ppbv peuvent être observés *in-situ* par des instruments aéroportés pendant quelques secondes mais les valeurs moyennes mesurées proches des systèmes convectifs sont de l’ordre de 0.5 à 1 ppbv (Schumann and Huntrieser, 2007).

La simulation ne permet pas de distinguer l’impact des différentes sources de NOx (éclaircis ou transport vertical de NOx depuis la surface) sur les concentrations d’O<sub>3</sub>. Cette distinction nécessiterait une simulation découplant les sources de NOx, ce qui est tout à fait envisageable avec le modèle mais non réalisé pour cette étude. L’analyse conjointe des trois espèces présentées permet de déterminer qualitativement les zones d’impact des LiNOx sur l’O<sub>3</sub>. A 110 hPa, la région de détrainement est caractérisée par de fortes valeurs de CO et NOx corrélées à de faibles valeurs d’O<sub>3</sub> comme cela a été discuté. Par contre, sous le vent de cette région, les valeurs de CO et de NOx restent élevées et les concentrations d’O<sub>3</sub> augmentent ce qui traduit une production photochimique (Figure 5.9 (a), (c) et (d)). Une ”bulle“ originaire de la zone de détrainement convectif et impactée par la production photochimique d’O<sub>3</sub> est obtenue au nord du golfe Persique. Les valeurs les plus fortes d’O<sub>3</sub> corrélées à de faibles valeurs de CO correspondent à des masses d’air d’origine stratosphérique issues des conditions aux limites du modèle. A 150 hPa (Figure 5.9 (b), (d) et (f)), la production photochimique est aussi visible avec des valeurs d’O<sub>3</sub> qui augmentent dans la branche nord-est du panache de NOx et de CO. Cette augmentation est moins marquée qu’à 110 hPa sans doute du fait des moindres quantités de LiNOx produites.

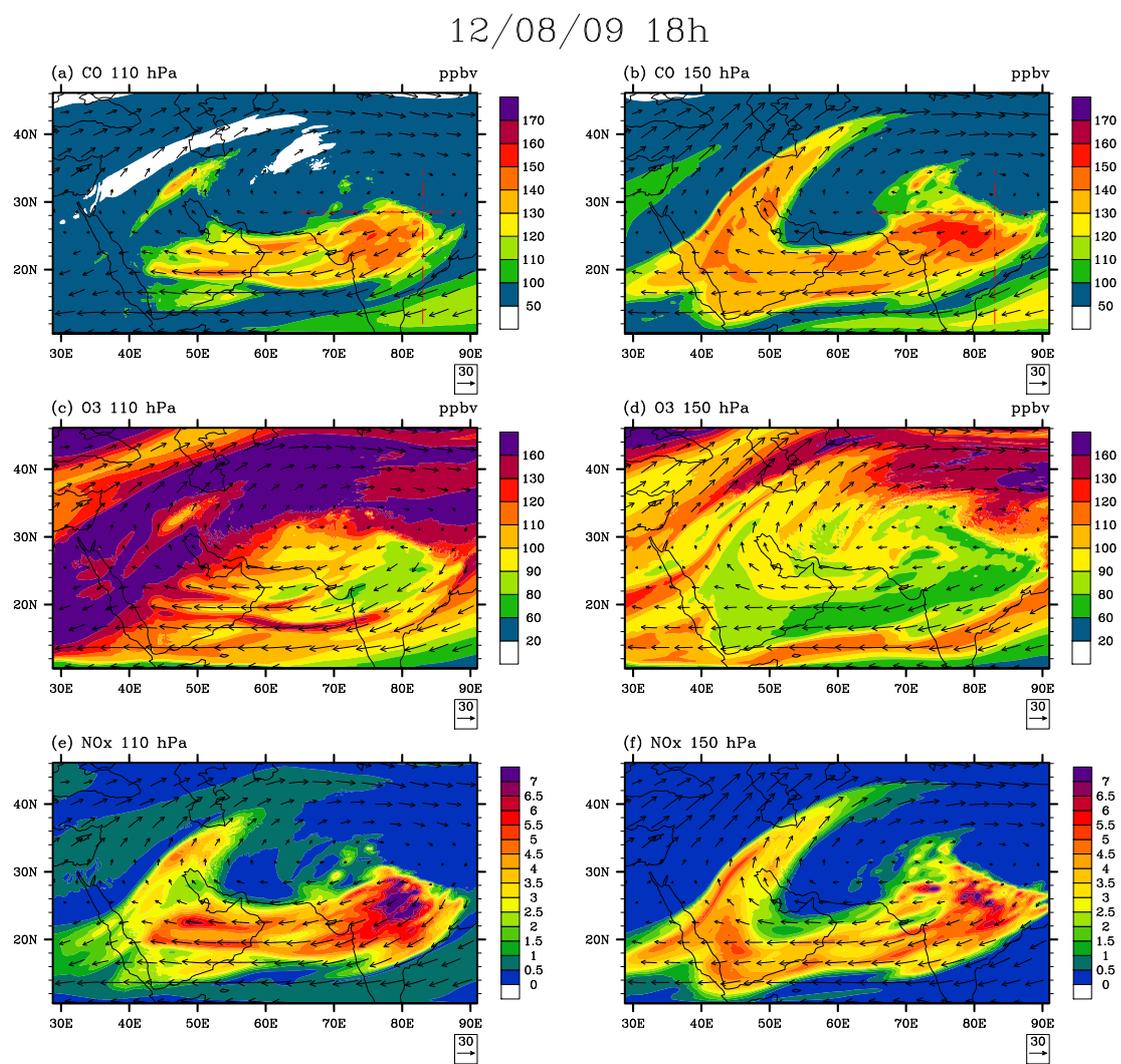


FIGURE 5.9 – Les distributions à 110hPa (colonne de gauche) et 150 hPa (colonne de droite) sont présentés pour des espèces chimiques modélisées par Méso-NH : (a)(b) CO, (c)(d) O<sub>3</sub> et (e)(f) NO<sub>x</sub> (en ppbv) avec les vents horizontaux (représenté par des flèches – en m/s) pour le 12/08/09 à 18h. Les lignes horizontales pointillées rouges sur les panneaux (a) et (b) repèrent les coupes verticales de la figure 5.8.

## 5.5 Conclusion et perspectives

Pendant la mousson, les systèmes convectifs sont particulièrement profonds et étendus au-dessus du piémont de l'Himalaya centrale. Cette région et le sud du plateau tibétain sont identifiés comme la porte d'entrée des masses d'air de la couche limite dans l'AMA par certaines études lagrangienne (Bergman et al., 2013). Les données de la plateforme TRMM sont donc utilisées pour identifier un ensemble de systèmes convectifs particulièrement profonds et étendus dans cette région. La sélection s'appuie sur des simulations lagrangiennes qui ont permis de déterminer les systèmes potentiellement responsables du soulèvement de masses d'air polluées au sein de l'AMA. Le système retenu est observé par les instruments de TRMM le 12 août 2009 à 21 h. Il est très étendu avec des sommets nuageux pouvant atteindre plus de 16 km d'altitude d'après le radar PR. Le modèle Méso-NH a permis d'étudier l'impact d'un tel système sur la composition de l'UTLS. Les simulations montrent que le système identifié est reproduit de manière satisfaisante en termes de localisation et de température de brillance par Méso-NH. La première simulation basée sur un seul traceur passif représentatif des émissions anthropiques met en évidence que le déentraînement principal de masses d'air chargées en traceur a lieu entre 150 et 100 hPa donc à des altitudes beaucoup plus élevées que les 12 km généralement reconnus comme altitude de déentraînement des systèmes convectifs (Folkins et al., 2000). D'autre part, les traceurs détraînés par ce système à 110 et 150 hPa sont transportés par la circulation anticyclonique et restent piégés au sein de l'AMA. Une simulation est effectuée en activant le schéma chimique complet et des conditions chimiques aux limites forcées par le modèle global MOZART. Cette simulation montre que le CO est transporté de manière similaire au traceur passif jusqu'à 100 hPa et que dans la zone de déentraînement l'O<sub>3</sub> est anti-corrélé avec le CO suite au mélange vertical. Concernant l'impact des LiNO<sub>x</sub> sur l'O<sub>3</sub> les résultats de cette simulation sont préliminaires car la quantité de LiNO<sub>x</sub> produite est trop élevée par rapport à la littérature (Schumann and Huntrieser, 2007), atteignant les limites de la paramétrisation des LiNO<sub>x</sub> pour une telle configuration de système convectif profond. Elle montre néanmoins une production d'O<sub>3</sub> importante pendant le transport des masses d'air détraînées au sein de l'AMA.

La suite de cette étude est déjà envisagée. Elle consiste d'abord à ajuster la source de LiNO<sub>x</sub> en modifiant les différents paramètres de production de la paramétrisation, des simulations de sensibilité permettront alors de caractériser l'impact de cette source ainsi que celui du transport convectif des NO<sub>x</sub> anthropiques sur l'O<sub>3</sub> dans l'AMA. Puis une simulation à plus haute résolution (~2 km) permettra de résoudre la convection de manière explicite et d'améliorer la représentation du système convectif et de son impact sur la chimie de l'UTLS. Il faudrait enfin étendre les

### *Section 5.5 – Conclusion et perspectives*

---

simulations à d'autres cas de systèmes convectifs possédant des caractéristiques différentes, en particulier moins extrêmes.

---

---

## Conclusion Générale

---

Cette thèse s’est focalisée sur les processus dynamiques et chimiques qui contrôlent les distributions de l’O<sub>3</sub> et d’autres polluants dans la haute troposphère tropicale et plus particulièrement asiatique. Nous avons d’abord analysé des observations issues du sondeur spatial IASI et des instruments aéroportés du programme MOZAIC–IAGOS pour la composition atmosphérique, des sondeurs TRMM et Méteosat pour les nuages et les systèmes convectifs pour identifier des cas d’études. Le modèle lagrangien FLEXPART a ensuite été utilisé pour déterminer les régions sources potentiellement responsables des anomalies d’O<sub>3</sub> observées à grande échelle ou bien les régions potentiellement impactées par un système convectif dans la haute troposphère. Enfin, le modèle Mésos-NH mis en place sur les domaines identifiés par FLEXPART a permis de déterminer plus finement les chemins de transport des polluants et l’origine des anomalies identifiées. Cette méthodologie a été appliquée à deux cas d’études : l’un, de transport intercontinental de l’Afrique vers l’Inde et l’autre, de soulèvement convectif de pollution asiatique pendant la mousson.

Le premier cas d’étude analysé a été identifié grâce aux observations d’O<sub>3</sub> IASI sensibles à l’UTLS. Il s’agit du transport de masses d’air riches en O<sub>3</sub> depuis l’Afrique jusqu’à l’Inde du Nord dans la haute troposphère au-dessus de la mer d’Arabie à l’automne 2008. Cet événement peut être qualifié d’ “anomalie” car les concentrations d’O<sub>3</sub> observées sont très supérieures aux moyennes saisonnières (de 40 ppbv) et parce que le transport a eu lieu dans un canal bien défini, que l’on a appelé “rivière d’ozone” (O3R, *ozone river*). La formation de ce canal est liée à une forte activité ondulatoire des Jets d’Ouest des hémisphères nord et sud démontrée par l’analyse des champs de vents et de tourbillon potentiel des analyses ECMWF. Les données du programme MOZAIC–IAGOS ont en outre permis de confirmer l’enrichissement en O<sub>3</sub> et la présence de quantités de CO élevées au sein de l’O3R. D’après les résultats du programme INDOEX, les maxima d’O<sub>3</sub> dans la moyenne et haute troposphère observés au printemps au-dessus de la mer d’Arabie sont principalement causés par des intrusions de masses d’air stratosphériques de l’hémisphère nord mais aussi de l’hémisphère sud. D’autres études ont montré que l’export de pollution du sous-continent indien pouvait causer des pics d’O<sub>3</sub> dans la moyenne et haute troposphère de l’Océan Indien. Les feux de savanes africains ont aussi été mis en avant pour expliquer une partie de ces maxima dans la moyenne troposphère. En ce qui concerne l’évènement observé par

## Conclusion Générale

---

IASI, les simulations FLEXPART couplées à l'analyse des paramètres dynamiques des analyses ECMWF ont permis d'écartier les échanges stratosphère-troposphère comme origine privilégiée de l'enrichissement en  $O_3$ . Les simulations FLEXPART ont aussi permis de montrer que les feux de savane africains jouaient sans doute un rôle mineur alors que les éclairs qui ont lieu au sud de l'Afrique seraient probablement la source principale de l'O3R. Néanmoins, ces simulations ont aussi mis en évidence le soulèvement de masse d'air de la couche limite indienne polluée par la tempête tropicale Nisha qui a traversé l'Inde durant cette période comme source potentielle d' $O_3$  et de CO dans l'O3R à l'ouest des côtes indiennes. Pour répondre plus précisément à la question de l'origine de l'O3R nous avons effectué une simulation Méso-NH avec une résolution de 15 km sur 26 jours. Cette simulation utilise des traceurs passifs initialisés depuis les sources de précurseurs d' $O_3$  dans la région : les feux de biomasse, les LiNOx en Afrique et la pollution anthropique en Asie. Les résultats de la simulation montrent que la distribution du traceur LiNOx coïncide très bien avec la zone d'enrichissement d' $O_3$  détectée par IASI mais aussi avec les pics d' $O_3$  observés à haute résolution par MOZAIC. Notre étude a donc mis en évidence une source d' $O_3$  autre que les échanges stratosphère-troposphère dans la haute troposphère de la mer d'Arabie, à savoir les LiNOx africains. L'analyse statistique des observations d' $O_3$  IASI sur 5 ans a permis d'identifier d'autres événements d'enrichissement d' $O_3$  au-dessus de l'Océan Indien partie similaires à l'O3R.

Les perspectives de cette étude sont multiples. Tout d'abord, les anomalies observées par IASI sur la période 2008–2012 pourraient faire l'objet d'analyses détaillées avec des simulations Méso-NH pour caractériser leur origine. Une telle étude pourrait être étendue au printemps boréal, période qui avait été ciblée par INDOEX pour revisiter l'origine des anomalies d' $O_3$  dans la moyenne et haute troposphère de la partie nord de l'Océan Indien. L'utilisation du modèle Méso-NH avec la chimie complète qui a été testé de manière préliminaire pendant la thèse permettrait en outre une identification plus sûre des sources sur les enrichissements d' $O_3$  observés que les simulations de traceurs.

Notre deuxième axe d'étude concernait les chemins de transport de polluants jusqu'à l'anticyclone de la mousson asiatique dans l'UTLS. Plus particulièrement, la question était de déterminer la capacité d'un système convectif très profond à soulever des masses d'air polluées de la couche limite jusqu'à la basse stratosphère et à modifier la composition de l'UTLS. Nous avons d'abord sélectionné les systèmes convectifs les plus profonds à l'aide des données de la plateforme TRMM. Dans un deuxième temps, l'origine et le devenir des masses d'air soulevées par les systèmes convectifs ont été déterminés à l'aide de simulations lagrangiennes. Un système très profond et très étendu a été retenu car il soulevait des masses d'air de la plaine du Gange au

sein de l'AMA. Ce système a été observé le 12 Août 2009 sur le piémont de l'Himalaya central entre l'Inde et le Népal. Le modèle Més0-NH a été utilisé pour simuler le transport d'un traceur passif représentatif des émissions anthropiques par le système ciblé. Cette simulation a d'une part mis en évidence le détrainement de masses d'air chargées en traceur entre 150 et 100 hPa donc à des altitudes beaucoup plus élevées que les 12 km généralement reconnus comme altitude de détrainement des systèmes convectifs. D'autre part, la simulation permet de suivre les traceurs détraînés qui sont transportés par la circulation anti-cyclonique de l'AMA. A plus basse altitude, entre 200 et 300 hPa, les traceurs détraînés sont transportés par le Jet d'Est Tropical jusqu'à l'Afrique. Une simulation effectuée avec le schéma chimique du modèle activé montre une forte anti-corrélation entre concentrations de CO élevées et concentrations d'O<sub>3</sub> faibles dans les masses d'air détraînées. Néanmoins, la production d'O<sub>3</sub> par les LiNOx est évidente sous le vent du système convectif lors du transport par la circulation anticyclonique. Cependant la quantité de LiNOx simulée par le modèle est beaucoup trop importante ce qui limite la possibilité de quantifier l'impact du système convectif sur l'O<sub>3</sub> dans l'UTLS avec cette simulation.

En perspective de ce travail il serait tout d'abord nécessaire d'ajuster la quantité de LiNOx produite et d'effectuer des simulations de sensibilité sur les sources de précurseurs d'O<sub>3</sub> pour déterminer leur impact relatif sur l'O<sub>3</sub> au sein de l'AMA. Une simulation à plus haute résolution (~2km) permettrait de déterminer si une représentation explicite de la convection conduit à une pénétration de la pollution à plus haute altitude par overshoots convectifs. Enfin, des simulations avec d'autres cas d'études centrées sur des systèmes convectifs possédant des caractéristiques différentes et qui se déclenchent sur d'autres parties du piémont himalayen permettraient de confirmer les résultats obtenus et de comparer le potentiel d'enrichissement en pollution de l'AMA des différents types de convection.



---

---

## Liste des Acronymes

---

---

<b>AIRS</b>	Atmospheric InfraRed Sounder
<b>ACAM</b>	Atmospheric Composition and the Asian Monsoon
<b>ACCENT</b>	Atmospheric Composition Change - The European NeTwork of excellence
<b>ACCMIP</b>	Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project
<b>AMA</b>	Asian Monsoon Anticyclone
<b>AVHRR</b>	Advanced Very High Resolution Radiometer
<b>CALIPSO</b>	Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations
<b>CNES</b>	Centre National d'Etudes Spatiales
<b>ECCAD</b>	Emissions of atmospheric Compounds - Compilation of Ancillary Data
<b>ECMWF</b>	European Centre for Medium-range Weather Forecasts
<b>EDKF</b>	Eddy-Diffusivity-Kain-Fritsch
<b>EUMETSAT</b>	Organisation européenne pour l'exploitation des satellites météorologiques
<b>FLEXPART</b>	FLEXible PARTicle dispersion model
<b>FORLI</b>	Fast Optimal Retrievals on Layers for IASI
<b>GEOS-Chem</b>	Goddard Earth Observing System – Chemistry
<b>GIEC</b>	Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat
<b>HALOE</b>	HALogen Occultation Experiment
<b>IAGOS</b>	In-service Aircraft for a Global Observing System
<b>IASI</b>	Interféromètre Atmosphérique de Sondage Infrarouge
<b>ICARB</b>	Integrated Campaign for Aerosols, gases and Radiation Budget
<b>IFS</b>	Integrated Forecasting System
<b>INDOEX</b>	INDian Ocean EXperiment
<b>IPCC</b>	Intergovernmental Panel on Climate Change
<b>ITCZ</b>	InterTropical Convergence Zone
<b>KAIn-FRitsch</b>	KAIn-FRitsch
<b>KNMI</b>	Royal Netherlands Meteorological Institute
<b>KOPRA-FIT</b>	Inversion module of the radiative transfer model : KOPRA

## Liste des Acronymes

---

<b>KOPRA</b>	Karlsruhe Optimised and Precise Radiative transfer Algorithm
<b>LA</b>	Laboratoire d'Aérodynamique
<b>LERMA</b>	Laboratoire d'Etudes du Rayonnement et de la Matière en Astrophysique
<b>LiNO<sub>x</sub></b>	NO <sub>x</sub> produit par les éclairs : lightning NO <sub>x</sub>
<b>LIS</b>	Lightning's Imaging Spectrometer
<b>LISA</b>	Laboratoire Inter-universitaire des Systèmes Atmosphériques
<b>MACC<sub>City</sub></b>	MACC/CityZEN EU projects : emissions dataset
<b>Meso-NH</b>	Non-Hydrostatic mesoscale atmospheric model
<b>Météo-France</b>	Centre National de Recherches Météorologiques
<b>MetOp</b>	Meteorological Operational polar satellite
<b>MLS</b>	Microwave Limb Sounder
<b>MOZAIC</b>	Measurements of Ozone and water vapour by in-service Airbus airCraft
<b>MOZART-4</b>	Model for Ozone And Related chemical Tracers - version 4
<b>NWPSAF</b>	Satellite Application Facility for Numerical Weather Prediction
<b>OLR</b>	Outgoing Longwave Radiation
<b>OMI</b>	Ozone Monitoring Instrument
<b>OTD</b>	Optical Transient Detector
<b>PCT</b>	Polarization Corrected Temperature
<b>PR</b>	Precipitation Radar
<b>ReLACs</b>	Regional Lumped Atmospheric Chemical scheme
<b>RTTOV</b>	Radiative Transfer for TOVS
<b>SAGE</b>	Stratospheric Aerosol and Gas Experiment
<b>SHADOZ</b>	Southern Hemisphere ADditional OZonesondes
<b>SOFRID</b>	Software for a Fast Retrieval of IASI Data
<b>SURFEX</b>	SURFace EXternalisée
<b>TES</b>	Technology Experiment Satellite
<b>TMI</b>	TRMM Microwave Imager
<b>TOMS</b>	Total Ozone Mapping Spectrometer
<b>TRMM</b>	Tropical Rainfall Measuring Mission
<b>TSDIS</b>	TRMM Science Data and Information System
<b>UKMO</b>	United Kingdom Meteorological Office
<b>ULB</b>	Institut Biologie Clinique Brussels
<b>UTLS</b>	Upper Troposphere and Lower Stratosphere
<b>VIRS</b>	Visible and InfraRed Scanner
<b>WOUDC</b>	World Ozone and Ultraviolet Radiation Data Centre

---

---

# Bibliographie

---

---

- Andreae, M. O. (1991). Biomass burning : Its history, use and distribution and its impact on environmental quality and global climate. *Global Biomass Burning : Atmospheric, Climatic and Biospheric Implications*, 3-21. [24](#)
- Andreae, M. O. and Merlet, P. (2001). Emission of trace gases and aerosols from biomass burning. *Global Biogeochemical Cycles*, 15(4) :955–966. [25](#)
- Arellano, A. F., Kasibhatla, P. S., Giglio, L., van der Werf, G. R., and Randerson, J. T. (2004). Top-down estimates of global CO sources using MOPITT measurements. *Geophysical Research Letters*, 31(1) :L01104. [69](#)
- Arnold, F., Bürger, V., Droste-Fanke, B., Grimm, F., Krieger, A., Schneider, J., and Stilp, T. (1997). Acetone in the upper troposphere and lower stratosphere : Impact on trace gases and aerosols. *Geophysical Research Letters*, 24(23) :3017–3020. [17](#)
- Baray, J. L., Baldy, S., Diab, R. D., and Cammas, J. P. (2003). Dynamical study of a tropical cut-off low over south africa, and its impact on tropospheric ozone. *Atmospheric Environment*, 37(11) :1475–1488. [19](#)
- Barnes, R. A., Barnes, W. L., Lyu, C.-H., and Gales, J. M. (2000). An overview of the visible and infrared scanner radiometric calibration algorithm. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 17(4) :395–405. [88](#)
- Barret, B., Le Flochmoën, E., Sauvage, B., Pavelin, E., Matricardi, M., and Cammas, J. P. (2011). The detection of post-monsoon tropospheric ozone variability over south asia using IASI data. *Atmos. Chem. Phys.*, 11(18) :9533–9548. [59](#), [60](#), [61](#), [82](#), [85](#), [88](#)
- Barret, B., Ricaud, P., Mari, C., Attié, J.-L., Bousserez, N., Josse, B., Le Flochmoën, E., Livesey, N. J., Massart, S., Peuch, V.-H., Piacentini, A., Sauvage, B., Thouret, V., and Cammas, J.-P. (2008). Transport pathways of CO in the african upper troposphere during the monsoon season : a study based upon the assimilation of spaceborne observations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(12) :3231–3246. [3](#), [44](#), [49](#), [56](#)
- Barret, B., Williams, J. E., Bouarar, I., Yang, X., Josse, B., Law, K., Pham, M., Le Flochmoën, E., Liousse, C., Peuch, V. H., Carver, G. D., Pyle, J. A., Sauvage, B., van Velthoven, P.,

- Schlager, H., Mari, C., and Cammas, J.-P. (2010). Impact of west african monsoon convective transport and lightning  $\text{NO}_x$  production upon the upper tropospheric composition : a multi-model study. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(12) :5719–5738. [49](#), [78](#)
- Bechtold, P., Bazile, E., Guichard, F., Mascart, P., and Richard, E. (2001). A mass-flux convection scheme for regional and global models. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 127(573) :869–886. [68](#)
- Beekmann, M., Ancellet, G., Blonsky, S., Muer, D. D., Ebel, A., Elbern, H., Hendricks, J., Kowol, J., Mancier, C., Sladkovic, R., Smit, H. G. J., Speth, P., Trickl, T., and Haver, P. V. (1997). Regional and global tropopause fold occurrence and related ozone flux across the tropopause. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 28(1-3) :29–44. [32](#)
- Bergman, J. W., Fierli, F., Jensen, E. J., Honomichl, S., and Pan, L. L. (2013). Boundary layer sources for the asian anticyclone : Regional contributions to a vertical conduit. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118(6) :2560–2575. [vi](#), [ix](#), [54](#), [55](#), [106](#), [108](#), [120](#)
- Beucher, F. (2010). *Météorologie tropicale : des alizés au cyclone*. Météo-France, Ecole Nationale de la Météorologie. [38](#)
- Bond, D. W., Steiger, S., Zhang, R., Tie, X., and Orville, R. E. (2002). The importance of  $\text{NO}_x$  production by lightning in the tropics. *Atmospheric Environment*, 36(9) :1509–1519. [26](#), [78](#)
- Bortz, S. E., Prather, M. J., Cammas, J.-P., Thouret, V., and Smit, H. (2006). Ozone, water vapor, and temperature in the upper tropical troposphere : Variations over a decade of mozaic measurements. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 111(D5) :n/a–n/a. [2](#)
- Bowman, K. W., Shindell, D. T., Worden, H. M., Lamarque, J., Young, P. J., Stevenson, D. S., Qu, Z., de la Torre, M., Bergmann, D., Cameron-Smith, P. J., Collins, W. J., Doherty, R., DalsÅren, S. B., Faluvegi, G., Folberth, G., Horowitz, L. W., Josse, B. M., Lee, Y. H., MacKenzie, I. A., Myhre, G., Nagashima, T., Naik, V., Plummer, D. A., Rumbold, S. T., Skeie, R. B., Strode, S. A., Sudo, K., Szopa, S., Voulgarakis, A., Zeng, G., Kulawik, S. S., Aghedo, A. M., and Worden, J. R. (2013). Evaluation of ACCMIP outgoing longwave radiation from tropospheric ozone using TES satellite observations. *Atmos. Chem. Phys.*, 13(8) :4057–4072. [29](#)
- Bozem, H., Fischer, H., Gurk, C., Schiller, C. L., Parchatka, U., Koenigstedt, R., Stickler, A., Martinez, M., Harder, H., Kubistin, D., Williams, J., Eerdeken, G., and Lelieveld, J. (2014). Influence of corona discharge on the ozone budget in the tropical free troposphere : a case study of deep convection during GABRIEL. *Atmos. Chem. Phys.*, 14(17) :8917–8931. [18](#)

- Brasseur, G., Orlando, J., Tyndall, G., and (U.S.), N. C. f. A. R. (1999). *Atmospheric Chemistry and Global Change*. Topics in environmental chemistry. Oxford University Press. 14, 18, 88
- Brioude, J., Cammas, J.-P., and Cooper, O. R. (2006). Stratosphere-troposphere exchange in a summertime extratropical low : analysis. *Atmos. Chem. Phys.*, 6(8) :2337–2353. 20
- Brune, W. (2000). *OH and HO<sub>2</sub> : Sources, interactions with nitrogen oxides, and ozone production*. IGACTivities Newsletter of the International Global Atmospheric Chemistry Project. 16
- Brunekreef, B. and Holgate, S. T. (2002). Air pollution and health. *The Lancet*, 360 :1233–1242. 6
- Butchart, N., Scaife, A. A., Bourqui, M., Grandpré, J. d., Hare, S. H. E., Kettleborough, J., Langematz, U., Manzini, E., Sassi, F., Shibata, K., Shindell, D., and Sigmond, M. (2006). Simulations of anthropogenic change in the strength of the brewer–dobson circulation. *Climate Dynamics*, 27(7-8) :727–741. 30
- Camredon, M. and Aumont, B. (2007). *L’ozone troposphérique : production/consommation et régimes chimiques*, volume 193. Pollution atmosphérique. 12, 15
- Cecil, D. J., Buechler, D. E., and Blakeslee, R. J. (2014). Gridded lightning climatology from TRMM-LIS and OTD : Dataset description. *Atmospheric Research*, 135 :404–414. 26
- Chaboureau, J.-P., Cammas, J.-P., Duron, J., Mascart, P. J., Sitnikov, N. M., and Voessing, H.-J. (2007). A numerical study of tropical cross-tropopause transport by convective overshoots. *Atmos. Chem. Phys.*, 7(7) :1731–1740. 41
- Chapman, S. (1930). *A Theory of Upper-atmospheric Ozone*. Memoirs of the Royal Meteorological Society. Edward Stanford. 9
- Chatfield, R. B., Guan, H., Thompson, A. M., and Smit, H. G. J. (2007). Mechanisms for the intraseasonal variability of tropospheric ozone over the indian ocean during the winter monsoon. *Journal of Geophysical Research*, 112(D10) :D10303. 46, 47, 74, 77, 86, 92, 102
- Chatfield, R. B., Guan, H., Thompson, A. M., and Witte, J. C. (2004). Convective lofting links indian ocean air pollution to paradoxical south atlantic ozone maxima. *Geophysical Research Letters*, 31(6) :L06103. 77
- Chen, B., Xu, X. D., Yang, S., and Zhao, T. L. (2012). Climatological perspectives of air transport from atmospheric boundary layer to tropopause layer over asian monsoon regions during boreal summer inferred from lagrangian approach. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(13) :5827–5839. 21, 54, 55

- Chin, M., Jacob, D. J., Munger, J. W., Parrish, D. D., and Doddridge, B. G. (1994). Relationship of ozone and carbon monoxide over north america. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 99(D7) :14565–14573. [83](#)
- Christian, H. J., Blakeslee, R. J., Boccippio, D. J., Boeck, W. L., Buechler, D. E., Driscoll, K. T., Goodman, S. J., Hall, J. M., Koshak, W. J., Mach, D. M., and Stewart, M. F. (2003). Global frequency and distribution of lightning as observed from space by the optical transient detector. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D1) :4005. [25](#), [26](#), [85](#)
- Collins, W. J., Derwent, R. G., Garnier, B., Johnson, C. E., Sanderson, M. G., and Stevenson, D. S. (2003). Effect of stratosphere-troposphere exchange on the future tropospheric ozone trend. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D12) :8528. [30](#)
- Cooke, W. F., Koffi, B., and Grégoire, J.-M. (1996). Seasonality of vegetation fires in africa from remote sensing data and application to a global chemistry model. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 101(D15) :21051–21065. [25](#), [77](#), [85](#)
- Cooper, M. J., Martin, R. V., Livesey, N. J., Degenstein, D. A., and Walker, K. A. (2013). Analysis of satellite remote sensing observations of low ozone events in the tropical upper tropospcooper10here and links with convection. *Geophysical Research Letters*, 40(14) :3761–3765. [18](#)
- Cooper, O. R., Moody, J. L., Parrish, D. D., Trainer, M., Ryerson, T. B., Holloway, J. S., Hübler, G., Fehsenfeld, F. C., Oltmans, S. J., and Evans, M. J. (2001). Trace gas signatures of the airstreams within north atlantic cyclones : Case studies from the north atlantic regional experiment (NARE 97) aircraft intensive. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 106(D6) :5437–5456. [20](#)
- Cooper, O. R., Parrish, D. D., Stohl, A., Trainer, M., Nédélec, P., Thouret, V., Cammas, J. P., Oltmans, S. J., Johnson, B. J., Tarasick, D., Leblanc, T., McDermid, I. S., Jaffe, D., Gao, R., Stith, J., Ryerson, T., Aikin, K., Campos, T., Weinheimer, A., and Avery, M. A. (2010). Increasing springtime ozone mixing ratios in the free troposphere over western north america. *Nature*, 463(7279) :344–348. [29](#), [34](#)
- Crawford, J., Davis, D., Olson, J., Chen, G., Liu, S., Gregory, G., Barrick, J., Sachse, G., Sandholm, S., Heikes, B., Singh, H., and Blake, D. (1999). Assessment of upper tropospheric HOx sources over the tropical pacific based on NASA GTE/PEM data : Net effect on HOx and other photochemical parameters. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 104(D13) :16255–16273. [17](#)
- Crevoisier, C., Nobileau, D., Fiore, A. M., Armante, R., Chedin, A., and Scott, N. A. (2009).

- Tropospheric methane in the tropics first year from IASI hyperspectral infrared observations. *Atmos. Chem. Phys.*, 9(17) :6337–6350. 59
- Cristofanelli, P., Bracci, A., Sprenger, M., Marinoni, A., Bonafè, U., Calzolari, F., Duchi, R., Laj, P., Pichon, J., Roccato, F., Venzac, H., Vuillemoz, E., and Bonasoni, P. (2010). Tropospheric ozone variations at the nepal climate observatory-pyramid (himalayas, 5079 m a.s.l.) and influence of deep stratospheric intrusion events. *Atmospheric Chemistry and Physics*. 21
- Crutzen, P. J. and Andreae, M. O. (1990). Biomass burning in the tropics : impact on atmospheric chemistry and biogeochemical cycles. *Science (New York, N.Y.)*, 250(4988) :1669–1678. 24
- Danielsen, E. F. (1968). Stratospheric-tropospheric exchange based on radioactivity, ozone and potential vorticity. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 25(3) :502–518. 7, 20
- Danielsen, E. F. (1993). In situ evidence of rapid, vertical, irreversible transport of lower tropospheric air into the lower tropical stratosphere by convective cloud turrets and by larger-scale upwelling in tropical cyclones. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 98(D5) :8665–8681. 20
- Das, S. S. (2009). A new perspective on MST radar observations of stratospheric intrusions into-troposphere associated with tropical cyclone. *Geophysical Research Letters*, 36(15) :L15821. 20
- de F. Forster, P. M. and Shine, K. P. (1997). Radiative forcing and temperature trends from stratospheric ozone changes. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 102(D9) :10841–10855. 28
- De Laat, A. T. J. (2002). On the origin of tropospheric O<sub>3</sub> over the indian ocean during the winter monsoon : African biomass burning vs. stratosphere-troposphere exchange. *Atmos. Chem. Phys.*, 2(5) :325–341. v, ix, 3, 46, 47, 74, 77, 92, 102
- De Laat, A. T. J., Zachariasse, M., Roelofs, G. J., van Velthoven, P., Dickerson, R. R., Rhoads, K. P., Oltmans, S. J., and Lelieveld, J. (1999). Tropospheric O<sub>3</sub> distribution over the indian ocean during spring 1995 evaluated with a chemistry-climate model. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 104(D11) :13881–13893. 77
- De Wachter, E., Barret, B., Le Flochmoën, E., Pavelin, E., Matricardi, M., Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., George, M., Hurtmans, D., Coheur, P.-F., Nedelec, P., and Cammas, J. P. (2012). Retrieval of MetOp-a/IASI CO profiles and validation with MOZAIC data. *Atmos. Meas. Tech.*, 5(11) :2843–2857. 59
- Dessler, A. E. and Sherwood, S. C. (2004). Effect of convection on the summertime extratropical lower stratosphere. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 109 :D23301. 51

- Dickerson, R. R., Andreae, M. O., Campos, T., Mayol-Bracero, O. L., Neusuess, C., and Streets, D. G. (2002). Analysis of black carbon and carbon monoxide observed over the indian ocean : Implications for emissions and photochemistry. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 107(D19) :8017. [23](#)
- Diehl, T., Heil, A., Chin, M., Pan, X., Streets, D., Schultz, M., and Kinne, S. (2012). Anthropogenic, biomass burning, and volcanic emissions of black carbon, organic carbon, and SO<sub>2</sub> from 1980 to 2010 for hindcast model experiments. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 12(9) :24895–24954. [69](#)
- Dignon, J. (1992). NO<sub>x</sub> and SO<sub>x</sub> emissions from fossil fuels : A global distribution. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 26(6) :1157–1163. [22](#)
- Doherty, R. M., Stevenson, D. S., Collins, W. J., and Sanderson, M. G. (2005). Influence of convective transport on tropospheric ozone and its precursors in a chemistry-climate model. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(12) :3205–3218. [34](#), [116](#)
- Dufour, G., Eremenko, M., Griesfeller, A., Barret, B., Le Flochmoën, E., Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., Coheur, P.-F., and Hurtmans, D. (2012). Validation of three different scientific ozone products retrieved from IASI spectra using ozonesondes. *Atmos. Meas. Tech.*, 5(3) :611–630. [59](#), [60](#), [61](#)
- Edwards, D. P., Lamarque, J.-F., Attié, J.-L., Emmons, L. K., Richter, A., Cammas, J.-P., Gille, J. C., Francis, G. L., Deeter, M. N., Warner, J., Ziskin, D. C., Lyjak, L. V., Drummond, J. R., and Burrows, J. P. (2003). Tropospheric ozone over the tropical atlantic : A satellite perspective. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D8) :4237. [43](#), [77](#), [88](#)
- Emanuel, K. A. and Zivkovic-Rothman, M. (1999). Development and evaluation of a convection scheme for use in climate models. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 56(11) :1766–1782. [67](#)
- Emmons, L. K., Walters, S., Hess, P. G., Lamarque, J.-F., Pfister, G. G., Fillmore, D., Granier, C., Guenther, A., Kinnison, D., Laepple, T., Orlando, J., Tie, X., Tyndall, G., Wiedinmyer, C., Baughcum, S. L., and Kloster, S. (2010). Description and evaluation of the model for ozone and related chemical tracers, version 4 (MOZART-4). *Geosci. Model Dev.*, 3(1) :43–67. [70](#), [71](#), [72](#)
- Fadnavis, S., Chakraborty, T., and Beig, G. (2010). Seasonal stratospheric intrusion of ozone in the upper troposphere over india. *Ann. Geophys.*, 28(11) :2149–2159. [21](#), [83](#)
- Fishman, J., Fakhruzzaman, K., Cros, B., and Nganga, D. (1991). Identification of widespread pollution in the southern hemisphere deduced from satellite analyses. *Science*, 252(5013) :1693–1696. [24](#), [42](#)

- Fishman, J. and Larsen, J. C. (1987). Distribution of total ozone and stratospheric ozone in the tropics : Implications for the distribution of tropospheric ozone. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 92(D6) :6627–6634. 42
- Fishman, J., Watson, C. E., Larsen, J. C., and Logan, J. A. (1990). Distribution of tropospheric ozone determined from satellite data. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 95(D4) :3599–3617. 42, 76, 78
- Folkens, I., Oltmans, S. J., and Thompson, A. M. (2000). Tropical convective outflow and near surface equivalent potential temperatures. *Geophysical Research Letters*, 27(16) :2549–2552. 17, 20, 41, 120
- Forster (2007). *Climate Change 2007 : The Physical Science Basis : Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, Cambridge ; New York. 28
- Fowler, D. and Erisman, J. (2003). Biosphere/atmosphere exchange of pollutants. overview of subproject biatex-2. in : *Towards Cleaner Air for Europe Science, Tools and Applications, Part 2, Overviews from the Final Reports of the EUROTRAC-2 Subprojects, edited by : Midgley, P. M. and Reuther, 5 M., Margraf Verlag, Weikersheim*. 6
- Fowler, D., Flechard, C., Cape, J., Storeton-West, R., and Coyle, M. (2001). Measurements of ozone deposition to vegetation quantifying the flux, the stomatal and non-stomatal components. *Water, Air, and Soil Pollution*, 130(1-4) :63–74. 7
- Fu, R., Hu, Y., Wright, J. S., Jiang, J. H., Dickinson, R. E., Chen, M., Filipiak, M., Read, W. G., Waters, J. W., and Wu, D. L. (2006). Short circuit of water vapor and polluted air to the global stratosphere by convective transport over the tibetan plateau. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 103(15) :5664–5669. 53, 54, 55, 106
- Fueglistaler, S., Dessler, A. E., Dunkerton, T. J., Folkens, I., Fu, Q., and Mote, P. W. (2009). Tropical tropopause layer. *Reviews of Geophysics*, 47(1) :RG1004. 20
- Gao, R. S., Rosenlof, K. H., Fahey, D. W., Wennberg, P. O., Hints, E. J., and Hanisco, T. F. (2014). OH in the tropical upper troposphere and its relationships to solar radiation and reactive nitrogen. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 71(1) :55–64. 17
- Garny, H. and Randel, W. J. (2013). Dynamic variability of the asian monsoon anticyclone observed in potential vorticity and correlations with tracer distributions. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118(24) :421–433. 52, 55
- Gauss, M., Myhre, G., Pitari, G., Prather, M. J., Isaksen, I. S. A., Bernsten, T. K., Brasseur, G. P., Dentener, F. J., Derwent, R. G., Hauglustaine, D. A., Horowitz, L. W., Jacob, D. J., Johnson, M., Law, K. S., Mickley, L. J., Müller, J.-F., Plantevin, P.-H., Pyle, J. A., Rogers,

- H. L., Stevenson, D. S., Sundet, J. K., van Weele, M., and Wild, O. (2003). Radiative forcing in the 21st century due to ozone changes in the troposphere and the lower stratosphere. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D9) :4292. 28
- George, M., Clerbaux, C., Hurtmans, D., Turquety, S., Coheur, P.-F., Pommier, M., Hadji-Lazaro, J., Edwards, D. P., Worden, H., Luo, M., Rinsland, C., and McMillan, W. (2009). Carbon monoxide distributions from the IASI/METOP mission : evaluation with other space-borne remote sensors. *Atmos. Chem. Phys.*, 9(21) :8317–8330. 59
- Gettelman, A., Kinnison, D. E., Dunkerton, T. J., and Brasseur, G. P. (2004). Impact of monsoon circulations on the upper troposphere and lower stratosphere. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 109 :D22101. 51
- Gettelman, A., Salby, M. L., and Sassi, F. (2002). Distribution and influence of convection in the tropical tropopause region. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 107(D10) :ACL 6–1–ACL 6–12. 19, 41
- Giglio, L., Randerson, J. T., van der Werf, G. R., Kasibhatla, P. S., Collatz, G. J., Morton, D. C., and DeFries, R. S. (2010). Assessing variability and long-term trends in burned area by merging multiple satellite fire products. *Biogeosciences*, 7(3) :1171–1186. 69
- Granier, C., Bessagnet, B., Bond, T., D’Angiola, A., Gon, H. D. v. d., Frost, G. J., Heil, A., Kaiser, J. W., Kinne, S., Klimont, Z., Kloster, S., Lamarque, J.-F., Lioussé, C., Masui, T., Meleux, F., Mieville, A., Ohara, T., Raut, J.-C., Riahi, K., Schultz, M. G., Smith, S. J., Thompson, A., Aardenne, J. v., Werf, G. R. v. d., and Vuuren, D. P. v. (2011). Evolution of anthropogenic and biomass burning emissions of air pollutants at global and regional scales during the 1980–2010 period. *Climatic Change*, 109(1-2) :163–190. 22, 69
- Gregory, D., Morcrette, J.-J., Jakob, C., Beljaars, A. C. M., and Stockdale, T. (2000). Revision of convection, radiation and cloud schemes in the ECMWF integrated forecasting system. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 126(566) :1685–1710. 68
- Gressent, A., Sauvage, B., Defer, E., Werner Pätz, H., Thomas, K., Holle, R., Cammas, J.-P., Nédélec, P., Boulanger, D., Thouret, V., and Volz-Thomas, A. (2014). Lightning NOx influence on large-scale NOy and O3 plumes observed over the northern mid-latitudes. *Tellus B*, 66(0). 35
- Grewe, V. (2007). Impact of climate variability on tropospheric ozone. *Science of The Total Environment*, 374(1) :167–181. 30
- H. Huntrieser, H. S. (2011). Mesoscale convective systems observed during AMMA and their impact on the NOx and O3 budget over West Africa. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 11(2010) :22765–22853. 27

- Hansen, J., Sato, M., and Ruedy, R. (1997). Radiative forcing and climate response. *Journal of Geophysical Research*, 102(D6) :6831. 28
- Hao, W. M., Liu, M.-H., and Crutzen, P. J. (1990). *Estimates of Annual and Regional Releases of CO<sub>2</sub> and Other Trace Gases to the Atmosphere from Fires in the Tropics, Based on the FAO Statistics for the Period 1975–1980*, volume 84. Springer Berlin Heidelberg. 24
- Hauglustaine, D. A. and Brasseur, G. P. (2001). Evolution of tropospheric ozone under anthropogenic activities and associated radiative forcing of climate. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 106(D23) :32337–32360. 31
- Haynes, P. H., McIntyre, M. E., Shepherd, T. G., Marks, C. J., and Shine, K. P. (1991). On the downward control of extratropical diabatic circulations by eddy-induced mean zonal forces. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 48(4) :651–678. 19
- Heald, C. L., Jacob, D. J., Palmer, P. I., Evans, M. J., Sachse, G. W., Singh, H. B., and Blake, D. R. (2003). Biomass burning emission inventory with daily resolution : Application to aircraft observations of asian outflow. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D21) :8811. 25
- Heath, N. K. and Fuelberg, H. E. (2013). Using a wrf simulation to examine regions where convection impacts the asian summer monsoon anticyclone. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(4) :2055–2070. 54, 55, 106, 107
- Holton, J. R., Haynes, P. H., McIntyre, M. E., Douglass, A. R., Rood, R. B., and Pfister, L. (1995). Stratosphere-troposphere exchange. *Reviews of Geophysics*, 33(4) :403–439. 19
- Homeyer, C. R. and Bowman, K. P. (2012). Rossby wave breaking and transport between the tropics and extratropics above the subtropical jet. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 70(2) :607–626. 21, 81
- Hoskins, B. J., McIntyre, M. E., and Robertson, A. W. (1985). On the use and significance of isentropic potential vorticity maps. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 111(470) :877–946. 19
- Hoskins, B. J. and Rodwell, M. J. (1995). A model of the asian summer monsoon. part i : The global scale. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 52 :1329–1340. 39
- Houze, R. A., Wilton, D. C., and Smull, B. F. (2007). Monsoon convection in the himalayan region as seen by the trmm precipitation radar. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 133(627) :1389–1411. 53, 106, 107, 108, 109
- Huntrieser, H., Schlager, H., Feigl, C., and Höller, H. (1998). Transport and production of nox in electrified thunderstorms : Survey of previous studies and new observations at midlatitudes. *Journal of Geophysical Research*, 103(D21) :247–264. 25

- Jacob, D. J., Heikes, E. G., Fan, S.-M., Logan, J. A., Mauzerall, D. L., Bradshaw, J. D., Singh, H. B., Gregory, G. L., Talbot, R. W., Blake, D. R., and Sachse, G. W. (1996). Origin of ozone and NO<sub>x</sub> in the tropical troposphere : A photochemical analysis of aircraft observations over the south atlantic basin. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 101(D19) :24235–24250. [24](#)
- Jaegle, L., Jacob, D. J., Brune, W. H., and Wennberg, P. O. (2001). Chemistry of HO radicals in the upper troposphere. *Atmospheric Environment*, 35 :469–489. [17](#)
- Jaeglé, L., Jacob, D. J., Wang, Y., Weinheimer, A. J., Ridley, B. A., Campos, T. L., Sachse, G. W., and Hagen, D. E. (1998). Sources and chemistry of NO<sub>x</sub> in the upper troposphere over the united states. *Geophysical Research Letters*, 25(10) :1705–1708. [18](#)
- Jiang, J. H., Livesey, N. J., Su, H., Neary, L., McConnell, J. C., and Richards, N. A. D. (2007). Connecting surface emissions, convective uplifting, and long-range transport of carbon monoxide in the upper troposphere : New observations from the aura microwave limb sounder. *Geophysical Research Letters*, 34(18) :n/a–n/a. [56](#)
- Jobard, I. (2001). Status of satellite retrieval of rainfall at different scales using multi-source data. [63](#)
- Johnson, R. H., Rickenbach, T. M., Rutledge, S. A., Ciesielski, P. E., and Schubert, W. H. (1999). Trimodal characteristics of tropical convection. *Journal of Climate*, 12(8) :2397–2418. [41](#)
- Jonquière, I., Marenco, A., Maalej, A., and Rohrer, F. (1998). Study of ozone formation and transatlantic transport from biomass burning emissions over west africa during the airborne tropospheric ozone campaigns TROPOZ i and TROPOZ II. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 103(D15) :19059–19073. [24](#)
- Jourdain, L., Worden, H. M., Worden, J. R., Bowman, K., Li, Q., Eldering, A., Kulawik, S. S., Osterman, G., Boersma, K. F., Fisher, B., Rinsland, C. P., Beer, R., and Gunson, M. (2007). Tropospheric vertical distribution of tropical atlantic ozone observed by tes during the northern african biomass burning season. *Geophysical Research Letters*, 34(4) :n/a–n/a. [43](#)
- Kley, D., Crutzen, P., Smit, H. G. J., Vömel, H., Oltmans, S. J., and Grassl, H. Ramanathan, V. (1996). Observations of near-zero ozone concentrations over the convective pacific : Effects on air chemistry. *Science*, 274(5285) :230–233. [17](#)
- Koishi, K. and Shiotani, M. (2012). Water vapor and ozone variations in the tropical tropopause layer during the central equatorial pacific experiment campaign. *Journal of the Meteorological Society of Japan. Ser. II*, 90(3) :403–416. [37](#)
- Koppmann, R., von Czapiewski, K., and Reid, J. S. (2005). A review of biomass burning emis-

- sions, part i : gaseous emissions of carbon monoxide, methane, volatile organic compounds, and nitrogen containing compounds. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 5(5) :10455–10516. [24](#)
- Kumar, R., Naja, M., Pfister, G. G., Barth, M. C., and Brasseur, G. P. (2012). Simulations over south asia using the weather research and forecasting model with chemistry (wrf-chem) : set-up and meteorological evaluation. *Geoscientific Model Development*, 5(2) :321–343. [106](#)
- Kummerow, C., Barnes, W., Kozu, T., Shiue, J., and Simpson, J. (1998). The tropical rainfall measuring mission (TRMM) sensor package. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 15(3) :809–817. [63](#)
- Labrador, L. J., von Kuhlmann, R., and Lawrence, M. G. (2005). The effects of lightning-produced NO<sub>x</sub> and its vertical distribution on atmospheric chemistry : sensitivity simulations with MATCH-MPIC. *Atmos. Chem. Phys.*, 5(7) :1815–1834. [25](#), [78](#)
- Lacis, A. A., Wuebbles, D. J., and Logan, J. A. (1990). Radiative forcing of climate by changes in the vertical distribution of ozone. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 95(D7) :9971–9981. [28](#), [30](#)
- Lafore, J. P., Stein, J., Asencio, N., Bougeault, P., Ducrocq, V., Duron, J., Fischer, C., Hérel, P., Mascart, P., Masson, V., Pinty, J. P., Redelsperger, J. L., Richard, E., and Vilà-Guerau de Arellano, J. (1999). The meso-NH atmospheric simulation system. part i : adiabatic formulation and control simulations. *Ann. Geophys.*, 16(1) :90–109. [67](#)
- Lal, S. (2007). Trace gases over the indian region. *Indian Journal of Radio and Space Physics*, 36 :556–570. [6](#)
- Lal, S., Chand, D., Sahu, L., Venkataramani, S., Brasseur, G., and Schultz, M. (2006). High levels of ozone and related gases over the bay of bengal during winter and early spring of 2001. *Atmospheric Environment*, 40(9) :1633–1644. [46](#)
- Lal, S. and Lawrence, M. G. (2001). Elevated mixing ratios of surface ozone over the arabian sea. *Geophysical Research Letters*, 28(8) :1487–1490. [46](#)
- Lamarque, J.-F., Bond, T. C., Eyring, V., Granier, C., Heil, A., Klimont, Z., Lee, D., Liousse, C., Mieville, A., Owen, B., Schultz, M. G., Shindell, D., Smith, S. J., Stehfest, E., Van Aardenne, J., Cooper, O. R., Kainuma, M., Mahowald, N., McConnell, J. R., Naik, V., Riahi, K., and van Vuuren, D. P. (2010). Historical (1850–2000) gridded anthropogenic and biomass burning emissions of reactive gases and aerosols : methodology and application. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(15) :7017–7039. [69](#)
- Lamarque, J.-F., Hess, P., Emmons, L., Buja, L., Washington, W., and Granier, C. (2005). Tropospheric ozone evolution between 1890 and 1990. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 110(D8) :D08304. [29](#)

- Lamarque, J.-F., Langford, A. O., and Proffitt, M. H. (1996). Cross-tropopause mixing of ozone through gravity wave breaking : Observation and modeling. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 101(D17) :22969–22976. 19
- Lawrence, M. G. and Lelieveld, J. (2010). Atmospheric pollutant outflow from southern asia : a review. *Atmos. Chem. Phys.*, 10(22) :11017–11096. 2, 45, 46, 47, 77
- Lawrence, M. G., von Kuhlmann, R., Salzmann, M., and Rasch, P. J. (2003). The balance of effects of deep convective mixing on tropospheric ozone. *Geophysical Research Letters*, 30(18). 34, 116
- Leclair De Bellevue, J., Baray, J. L., Baldy, S., Ancellet, G., Diab, R., and Ravetta, F. (2007). Simulations of stratospheric to tropospheric transport during the tropical cyclone marlene event. *Atmospheric Environment*, 41(31) :6510–6526. 20
- Lelieveld, J., Crutzen, P. J., Ramanathan, V., Andreae, M. O., Brenninkmeijer, C. a. M., Campos, T., Cass, G. R., Dickerson, R. R., Fischer, H., Gouw, J. A. d., Hansel, A., Jefferson, A., Kley, D., Laats, A. T. J. d., Lal, S., Lawrence, M. G., Lobert, J. M., Mayol-Bracero, O. L., Mitra, A. P., Novakov, T., Oltmans, S. J., Prather, K. A., Reiner, T., Rodhe, H., Scheeren, H. A., Sikka, D., and Williams, J. (2001). The indian ocean experiment : Widespread air pollution from south and southeast asia. *Science*, 291(5506) :1031–1036. 45, 49, 56, 62
- Li, Q., Jacob, D. J., Logan, J. A., Bey, I., Yantosca, R. M., Liu, H., Randall, M. V., Fiore, A. M., Field, B. D., Duncan, B. N., and Thouret, V. (2001). A tropospheric ozone maximum over the middle east. *Geophysical Research Letters*, 28(17) :3235–3238. 56
- Li, Q., Jiang, J. H., Wu, D. L., Read, W. G., Livesey, N. J., Waters, J. W., Zhang, Y., Wang, B., Filipiak, M. J., Davis, C. P., Turquety, S., Wu, S., Park, R. J., Yantosca, R. M., and Jacob, D. J. (2005). Convective outflow of south asian pollution : A global CTM simulation compared with eos mls observations. *Geophysical Research Letters*, 32(14) :L14826. 49, 53, 106
- Lieven, C., Clerbaux, C., Dentener, F., Hurtmans, D., and Coheur, P.-F. (2009). Global ammonia distribution derived from infrared satellite observations. *Nature Geoscience*, 2(7) :479–483. 59
- Liousse, C., Andreae, M., Artaxo, P., Barbosa, P., Cachier, H., Grégoire, J., Hobbs, P., Lavoué, D., Mouillot, F., Penner, J., Scholes, M., and Schultz, M. (2004). Deriving global quantitative estimates for spatial and temporal distributions of biomass burning emissions. *Emissions of atmospheric trace compounds - Advances in global change research, 71-113 (2004)*, 544 :77–120. 24, 25

- Liu, C. and Zipser, E. J. (2005). Global distribution of convection penetrating the tropical tropopause. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 110 :D23104. 41
- Liu, C., Zipser, E. J., Cecil, D. J., Nesbitt, S. W., and S., S. (2008). A cloud and precipitation feature database from 9 years of trmm observations. *J. Appl. Meteor. Climate*, 47 :2712–2728. 109
- Logan, J. A., Staehelin, J., Megretskaia, I. A., Cammas, J.-P., Thouret, V., Claude, H., De Backer, H., Steinbacher, M., Scheel, H.-E., Stübi, R., Frölich, M., and Derwent, R. (2012). Changes in ozone over europe : Analysis of ozone measurements from sondes, regular aircraft (MOZAIC) and alpine surface sites. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 117(D9) :D09301. 29, 30
- Marenco, A., Gouget, H., Nédélec, P., Pagés, J.-P., and Karcher, F. (1994). Evidence of a long-term increase in tropospheric ozone from pic du midi data series : Consequences : Positive radiative forcing. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 99(D8) :16617–16632. 29
- Marenco, A., Thouret, V., Nédélec, P., Smit, H., Helten, M., Kley, D., Karcher, F., Simon, P., Law, K., Pyle, J., Poschmann, G., Von Wrede, R., Hume, C., and Cook, T. (1998). Measurement of ozone and water vapor by airbus in-service aircraft : The MOZAIC airborne program, an overview. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 103(D19) :25631–25642. 61
- Mari, C., Chaboureaud, J. P., Pinty, J. P., Duron, J., Mascart, P., Cammas, J. P., Gheusi, F., Fehr, T., Schlager, H., Roiger, A., Lichtenstein, M., and Stock, P. (2006). Regional lightning NO<sub>x</sub> sources during the TROCCINOX experiment. *Atmos. Chem. Phys.*, 6(12) :5559–5572. 27
- Mari, C., Saüt, C., Jacob, D. J., Ravetta, F., Anderson, B., Avery, M. A., Blake, D. R., Brune, W. H., Faloon, I., Gregory, G. L., Heikes, B. G., Sachse, G. W., Sandholm, S. T., Singh, H. B., Talbot, R. W., Tan, D., and Vay, S. (2003). Sources of upper tropospheric HO<sub>x</sub> over the south pacific convergence zone : A case study. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 107(D2) :8229. 17
- Mari, C. H., Cailley, G., Corre, L., Saunois, M., Attié, J. L., Thouret, V., and Stohl, A. (2008). Tracing biomass burning plumes from the southern hemisphere during the AMMA 2006 wet season experiment. *Atmos. Chem. Phys.*, 8(14) :3951–3961. 70
- Martin, R. V., Sauvage, B., Folkins, I., Sioris, C. E., Boone, C., Bernath, P., and Ziemke, J. (2007). Space-based constraints on the production of nitric oxide by lightning. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D9) :D09309. 18, 25

- Matricardi, M., Chevallier, F., Kelly, G., and Thepaut, J.-N. (2004). An improved general fast radiative transfer model for the assimilation of radiance observations. *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 130 :153–173. [60](#)
- Matsuda, K., Watanabe, I., Wingpud, V., Theramongkol, P., and Ohizumi, T. (2006). Deposition velocity of O<sub>3</sub> and SO<sub>2</sub> in the dry and wet season above a tropical forest in northern thailand. *Atmospheric Environment*, 40(39) :7557–7564. [7](#)
- Medina, S., Houze, R. A., Kumar, A., and Niyogi, D. (2010). Summer monsoon convection in the himalayan region : terrain and land cover effects. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 136(648) :593–616. [107](#), [108](#)
- Michel, C., Lioussé, C., Grégoire, J., Tansey, K., Carmichael, G., and Woo, J.-H. (2005). Biomass burning emission inventory from burnt area data given by the SPOT-VEGETATION system in the frame of TRACE-p and ACE-asia campaigns. *Journal of Geophysical Research D : Atmospheres*, 110 :1–41. [25](#)
- Miyazaki, K., Eskes, H. J., and Sudo, K. (2012). Global NO<sub>x</sub> emission estimates derived from an assimilation of OMI tropospheric NO<sub>2</sub> columns. *Atmos. Chem. Phys.*, 12(5) :2263–2288. [69](#)
- Monks, P. S. (2005). Gas-phase radical chemistry in the troposphere. *Chemical Society Reviews*, 34(5) :376–395. [15](#)
- Müller, J.-F. and Brasseur, G. (1999). Sources of upper tropospheric hox : A three-dimensional study. *Journal of Geophysical Research*, 104(D1) :1705. [17](#)
- Nesbitt, S. W., Zipser, E. J., and Cecil, D. J. (2000). A census of precipitation features in the tropics using trmm : radar, ice scattering, and lightning observations. *J. Climate*, 13 :4087–4106. [109](#)
- Neumaier, M., Ruhnke, R., Kirner, O., Ziereis, H., Stratmann, G., Brenninkmeijer, C. a. M., and Zahn, A. (2014). Impact of acetone (photo)oxidation on HO<sub>x</sub> production in the UT/LMS based on CARIBIC passenger aircraft observations and EMAC simulations. *Geophysical Research Letters*, 41(9) :2014GL059480. [17](#)
- Nédélec, P., Cammas, J.-P., Thouret, V., Athier, G., Cousin, J.-M., Legrand, C., Abonneil, C., Lecoœur, F., Cayez, G., and Marizy, C. (2003). An improved infrared carbon monoxide analyser for routine measurements aboard commercial airbus aircraft : technical validation and first scientific results of the MOZAIC III programme. *Atmos. Chem. Phys.*, 3(5) :1551–1564. [62](#)
- Ogino, S.-Y., Fujiwara, M., Shiotani, M., Hasebe, F., Matsumoto, J., T. Hoang, T. H., and T. Nguyen, T. T. (2013). Ozone variations over the northern subtropical region re-

- led by ozonesonde observations in hanoi. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118(8) :3245–3257. 37
- Ohara, T., Akimoto, H., Kurokawa, J., Horii, N., Yamaji, K., Yan, X., and Hayasaka, T. (2007). An asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980–2020. *Atmos. Chem. Phys.*, 7(16) :4419–4444. 23
- Oltmans, S. J., Lefohn, A. S., Scheel, H. E., Harris, J. M., Levy, H., Galbally, I. E., Brunke, E.-G., Meyer, C. P., Lathrop, J. A., Johnson, B. J., Shadwick, D. S., Cuevas, E., Schmidlin, F. J., Tarasick, D. W., Claude, H., Kerr, J. B., Uchino, O., and Mohnen, V. (1998). Trends of ozone in the troposphere. *Geophysical Research Letters*, 25(2) :139–142. 29
- Oltmans, S. J., Lefohn, A. S., Shadwick, D., Harris, J. M., Scheel, H. E., Galbally, I., Tarasick, D. W., Johnson, B. J., Brunke, E. G., Claude, H., Zeng, G., Nichol, S., Schmidlin, F., Davies, J., Cuevas, E., Redondas, A., Naoe, H., Nakano, T., and Kawasato, T. (2013). Recent tropospheric ozone changes : A pattern dominated by slow or no growth. *Atmospheric Environment*, 67 :331–351. 30
- Park, M., Randel, W. J., Emmons, L. K., and Livesey, N. J. (2009). Transport pathways of carbon monoxide in the asian summer monsoon diagnosed from model of ozone and related tracers (mozart). *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 114 :D08303. 51, 52, 54, 106
- Park, M., Randel, W. J., Gettelman, A., Massie, S. T., and Jiang, J. H. (2007). Transport above the asian summer monsoon anticyclone inferred from aura microwave limb sounder tracers. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D16) :D16309. 3, 51, 52, 82, 106
- Parrish, D. D., Law, K. S., Staehelin, J., Derwent, R., Cooper, O. R., Tanimoto, H., Volz-Thomas, A., Gilge, S., Scheel, H.-E., Steinbacher, M., and Chan, E. (2012). Long-term changes in lower tropospheric baseline ozone concentrations at northern mid-latitudes. *Atmos. Chem. Phys.*, 12(23) :11485–11504. 30
- Parrish, D. D., Law, K. S., Staehelin, J., Derwent, R., Cooper, O. R., Tanimoto, H., Volz-Thomas, A., Gilge, S., Scheel, H.-E., Steinbacher, M., and Chan, E. (2013). Lower tropospheric ozone at northern midlatitudes : Changing seasonal cycle. *Geophysical Research Letters*, 40(8) :1631–1636. 32, 33
- Parrish, D. D., Millet, D. B., and Goldstein, A. H. (2009). Increasing ozone in marine boundary layer inflow at the west coasts of north america and europe. *Atmos. Chem. Phys.*, 9(4) :1303–1323. 29
- Pavelin, E. G., English, S. J., and Eyre, J. R. (2008). The assimilation of cloud-affected in-

- frared satellite radiances for numerical weather prediction. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 134(632) :737–749. 60
- Pergaud, J., Masson, V., Malardel, S., and Couvreur, F. (2009). A parameterization of dry thermals and shallow cumuli for mesoscale numerical weather prediction. *Boundary-Layer Meteorology*, 132(1) :83–106. 68
- Peyrillé, P. (2005). *Etude idéalisée de la mousson ouest-africaine à partir d'un modèle numérique bidimensionnel*. Mémoires de thèses, Université Paul Sabatier, Toulouse. 37
- Pinty, J. P. and Jabouille, P. (1998). A mixed-phase cloud parameterization for use in mesoscale non-hydrostatic model : simulations of a squall line and of orographic precipitations. *Proc. Conf. of Cloud Physics, Everett, WA, USA, Amer. Meteor. soc.*, 132 :217–220. 68
- Popovic, J. M. and Plumb, R. A. (2001). Eddy shedding from the upper-tropospheric asian monsoon anticyclone. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 58 :93–104. 40, 55
- Prather, M. J. and Jacob, D. J. (1997). A persistent imbalance in HO<sub>x</sub> and NO<sub>x</sub> photochemistry of the upper troposphere driven by deep tropical convection. *Geophysical Research Letters*, 24(24) :3189–3192. 17
- Price, C., Penner, J., and Prather, M. (1997). NO<sub>x</sub> from lightning : 1. global distribution based on lightning physics. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 102(D5) :5929–5941. 27, 70
- Price, C. and Rind, D. (1992). A simple lightning parameterization for calculating global lightning distributions. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 97(D9) :9919–9933. 70
- Price, C. and Rind, D. (1994). Modeling global lightning distributions in a general circulation model. *Monthly Weather Review*, 122(8) :1930–1939. 70
- Price, J. D. and Vaughan, G. (1993). The potential for stratosphere-troposphere exchange in cut-off-low systems. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 119(510) :343–365. 19
- Ramanathan, V., Crutzen, P. J., Lelieveld, J., Mitra, A. P., Althausen, D., Anderson, J., Andreae, M. O., Cantrell, W., Cass, G. R., Chung, C. E., Clarke, A. D., Coakley, J. A., Collins, W. D., Conant, W. C., Dulac, F., Heintzenberg, J., Heymsfield, A. J., Holben, B., Howell, S., Hudson, J., Jayaraman, A., Kiehl, J. T., Krishnamurti, T. N., Lubin, D., McFarquhar, G., Novakov, T., Ogren, J. A., Podgorny, I. A., Prather, K., Priestley, K., Prospero, J. M., Quinn, P. K., Rajeev, K., Rasch, P., Rupert, S., Sadourny, R., Satheesh, S. K., Shaw, G. E., Sheridan, P., and Valero, F. P. J. (2001). Indian ocean experiment : An integrated analysis of the climate forcing and effects of the great indo-asian haze. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 106(D22) :28371–28398. 45

- Ramaswamy, V., Houghton, J., and al. (2001). *Radiative forcing of climate change*. Climate Change 2001 : The Scientific Basis. Contribution of Working Group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. 2
- Randall, V., Jacob, D. J., Logan, J. A., Bey, I., Yantosca, R. M., Staudt, A. C., Li, Q., Fiore, A. M., Duncan, B. N., Liu, H., Ginoux, P., and Thouret, V. (2002). Interpretation of TOMS observations of tropical tropospheric ozone with a global model and in situ observations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 107(D18) :ACH 4–1–ACH 4–27. 43
- Randel, W. J., Emmons, L., Kinnison, D., Bernath, P., Walker, K. A., Boone, C., and Pumphrey, H. (2010). Asian monsoon transport of pollution to the stratosphere. *Science*, 337 :78–81. 51, 106
- Randel, W. J. and Park, M. (2006). Deep convective influence on the asian summer monsoon anticyclone and associated tracer variability observed with atmospheric infrared sounder (airs). *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 111(D12) :n/a–n/a. 51
- Rayner, N. A., Parker, D. E., Horton, E. B., Folland, C. K., Alexander, L. V., Rowell, D. P., Kent, E. C., and Kaplan, A. (2003). Global analyses of sea surface temperature, sea ice, and night marine air temperature since the late nineteenth century. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D14) :4407. 40
- Reddy, M. S. and Venkataraman, C. (2002). Inventory of aerosol and sulphur dioxide emissions from india : Fossil fuel combustion. *Atmospheric Environment*, 36(4) :677–697. 23
- Reed, R. J. (1955). A study of a characteristic type of upper-level frontogenesis. *Journal of Meteorology*, 12(3) :226–237. 19, 20
- Ricaud, P., Barret, B., Attié, J.-L., Motte, E., Le Flochmoën, E., Teyssède, H., Peuch, V.-H., Livesey, N., Lambert, A., and Pommereau, J.-P. (2007). Impact of land convection on troposphere-stratosphere exchange in the tropics. *Atmos. Chem. Phys.*, 7(21) :5639–5657. 20
- Richards, N. A. D., Arnold, S. R., Chipperfield, M. P., Miles, G., Rap, A., Siddans, R., Monks, S. A., and Hollaway, M. J. (2013). The mediterranean summertime ozone maximum : global emission sensitivities and radiative impacts. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(5) :2331–2345. 56
- Richter, A., Burrows, J. P., Nüß, H., Granier, C., and Niemeier, U. (2005). Increase in tropospheric nitrogen dioxide over china observed from space. *Nature*, 437(7055) :129–132. 22
- Riehl, H. and Malkus, J. (1958). On the heat balance in the equatorial trough zone. *Geophysica*, 6(3–4) :503–538. 41

- Rodgers, C. D. (2000). *Inverse methods for atmospheric sounding : theory and practice*, volume 2 of *Series on atmospheric, oceanic and planetary physics*. World Scientific. 60
- Saunders, R., Brunel, P., English, S., Bauer, P., O’Keeffe, U., Francis, P., and Rayer, P. (2005). Rttov-8 science and validation report. *Tech. rep. – NWP SAF*, 41. 112
- Saunders, R., Matricardi, M., and Brunel, P. (1999). An improved fast radiative transfer model for assimilation of satellite radiance observations. *Q. J. Roy. Meteor. Soc.*, 125 :1407–1425. 60
- Sauvage, B., Martin, R. V., van Donkelaar, A., and Ziemke, J. R. (2007a). Quantification of the factors controlling tropical tropospheric ozone and the south atlantic maximum. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D11) :n/a–n/a. 96
- Sauvage, B., Thouret, V., Cammas, J.-P., Brioude, J., Nédélec, P., and Mari, C. (2007b). Meridional ozone gradients in the african upper troposphere. *Geophysical Research Letters*, 34,(L03) :L03817. 18, 25, 44, 77, 79, 96
- Sauvage, B., Thouret, V., Thompson, A. M., Witte, J. C., Cammas, J.-P., Nédélec, P., and Athier, G. (2006). Enhanced view of the tropical atlantic ozone paradox and zonal wave one from the in situ MOZAIC and SHADOZ data. *Journal of Geophysical Research*, 111(D1). 43, 79, 96
- Schumann, U. and Huntrieser, H. (2007). The global lightning induced nitrogen oxides source. *Atmos. Chem. Phys.*, 7(14) :3823–3907. 17, 18, 27, 70, 118, 120
- Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N. (1998). *Atmospheric Chemistry and Physics*. John Wiley, Hoboken, NJ. 6
- Shindell, D. and Faluvegi, G. (2009). Climate response to regional radiative forcing during the twentieth century. *Nature Geoscience*, 2(4) :294–300. 28
- Shindell, D., Faluvegi, G., Lacis, A., Hansen, J., Ruedy, R., and Aguilar, E. (2006). Role of tropospheric ozone increases in 20th-century climate change. *Journal of Geophysical Research*, 111(D8). 29, 30
- Shindell, D. T., Lamarque, J.-F., Schulz, M., Flanner, M., Jiao, C., Chin, M., Young, P. J., Lee, Y. H., Rotstayn, L., Mahowald, N., Milly, G., Faluvegi, G., Balkanski, Y., Collins, W. J., Conley, A. J., Dalsoren, S., Easter, R., Ghan, S., Horowitz, L., Liu, X., Myhre, G., Nagashima, T., Naik, V., Rumbold, S. T., Skeie, R., Sudo, K., Szopa, S., Takemura, T., Voulgarakis, A., Yoon, J.-H., and Lo, F. (2013). Radiative forcing in the ACCMIP historical and future climate simulations. *Atmos. Chem. Phys.*, 13(6) :2939–2974. 76
- Simpson, D. J., Kummerow, C., Tao, W.-K., and Adler, R. F. (1996). On the tropical rainfall measuring mission (TRMM). *Meteorology and Atmospheric Physics*, 60(1-3) :19–36. 65

- Simpson, M. and Raman, S. (2004). Role of the land plume in the transport of ozone over the ocean during indoex (1999). *Boundary-Layer Meteorology*, 111(1) :133–152. 45
- Simpson, M. and Raman, S. (2005). Development and propagation of a pollution gradient in the marine boundary layer during indoex (1999). *Journal of Earth System Science*, 114(1) :3–16. 46
- Sindelarova, K., Granier, C., Bouarar, I., Guenther, A., Tilmes, S., Stavrakou, T., Müller, J.-F., Kuhn, U., Stefani, P., and Knorr, W. (2014). Global data set of biogenic VOC emissions calculated by the MEGAN model over the last 30 years. *Atmos. Chem. Phys.*, 14(17) :9317–9341. 69
- Singh, H. B., Brune, W. H., Crawford, J. H., Jacob, D. J., and Russell, P. B. (2006). Overview of the summer 2004 intercontinental chemical transport experiment north america (INTEX-a). *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 111(D24) :D24S01. 27
- Smith, S. J., van Aardenne, J., Klimont, Z., Andres, R., Volke, A., and Delgado Arias, S. (2011). Anthropogenic sulfur dioxide emissions : 1850–2005. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 10(6) :16111–16151. 29
- Solomon, S., Thompson, D. W. J., Portmann, R. W., Oltmans, S. J., and Thompson, A. M. (2005). On the distribution and variability of ozone in the tropical upper troposphere : Implications for tropical deep convection and chemical-dynamical coupling. *Geophysical Research Letters*, 32(23) :L23813. 15, 34
- Spencer, R. W., Goodman, H. M., and Hood, R. E. (1989). Precipitation retrieval over land and ocean with the ssm/i : Identification and characteristics of the scattering signal. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 6(2) :254–273. 109
- Srivastava, S., Lal, S., Venkataramani, S., Gupta, S., and Acharya, Y. B. (2011). Vertical distribution of ozone in the lower troposphere over the bay of bengal and the arabian sea during ICARB-2006 : Effects of continental outflow. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 116(D13) :n/a–n/a. 45
- Staehelin, J., Thudium, J., Buehler, R., Volz-Thomas, A., and Graber, W. (1994). Trends in surface ozone concentrations at arosa (switzerland). *Atmospheric Environment*, 28(1) :75–87. 29
- Stavrakou, T. and Müller, J.-F. (2006). Grid-based versus big region approach for inverting CO emissions using measurement of pollution in the troposphere (mopitt) data. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 111(D15) :n/a–n/a. 59, 69
- Stavrakou, T., Müller, J.-F., Boersma, K. F., De Smedt, I., and van der A, R. J. (2008). Assessing

- the distribution and growth rates of NO<sub>x</sub> emission sources by inverting a 10-year record of no<sub>2</sub> satellite columns. *Geophysical Research Letters*, 35(10) :n/a–n/a. 22
- Stevenson, D. S., Dentener, F. J., Schultz, M. G., Ellingsen, K., van Noije, T. P. C., Wild, O., Zeng, G., Amann, M., Atherton, C. S., Bell, N., Bergmann, D. J., Bey, I., Butler, T., Cofala, 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., Sanderson, M. G., Savage, N. H., Shindell, D. T., Strahan, S. E., Sudo, K., and Szopa, S. (2006). Multimodel ensemble simulations of present-day and near-future tropospheric ozone. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 111(D8) :D08301. 29, 31, 88
- Stevenson, D. S., Young, P. J., Naik, V., Lamarque, J.-F., Shindell, D. T., Voulgarakis, A., Skeie, R. B., Dalsoren, S. B., Myhre, G., Berntsen, T. K., Folberth, G. A., Rumbold, S. T., Collins, W. J., MacKenzie, I. A., Doherty, R. M., Zeng, G., van Noije, T. P. C., Strunk, A., Bergmann, D., Cameron-Smith, P., Plummer, D. A., Strode, S. A., Horowitz, L., Lee, Y. H., Szopa, S., Sudo, K., Nagashima, T., Josse, B., Cionni, I., Righi, M., Eyring, V., Conley, A., Bowman, K. W., Wild, O., and Archibald, A. (2013). Tropospheric ozone changes, radiative forcing and attribution to emissions in the atmospheric chemistry and climate model intercomparison project (ACCMIP). *Atmos. Chem. Phys.*, 13(6) :3063–3085. 28, 29, 35
- Stocker, T. F., Qin, D., Plattner, G.-K., Tignor, M., Allen, S. K., Boschung, J., Nauels, A., Xia, Y., Bex, V., and Midgley, P. M. (2013). *Climate Change 2013 : The Physical Science Basis*. Intergovernmental Panel on Climate Change, Working Group I Contribution to the IPCC Fifth Assessment Report (AR5)(Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.). 2, 6, 8, 22
- Stohl, A., Forster, C., Frank, A., Seibert, P., and Wotawa, G. (2005). Technical note : The lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2. *Atmos. Chem. Phys.*, 5(9) :2461–2474. 66
- Stohl, A., Hittenberger, M., and Wotawa, G. (1998). Validation of the lagrangian particle dispersion model FLEXPART against large-scale tracer experiment data. *Atmospheric Environment*, 32(24) :4245–4264. 66
- Stohl, A., Huntrieser, H., Richter, A., Beirle, S., Cooper, O., Eckhardt, S., Forster, C., James, P., James, N., Wenig, M., Wagner, T., Burrows, J., and Platt, U. (2003). Rapid intercontinental

- air pollution transport associated with a meteorological bomb. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 3(2) :2101–2141. 20
- Stohl, A. and Thomson, D. J. (1999). A density correction for lagrangian particle dispersion models. *Boundary-Layer Meteorology*, 90(1) :155–167. 66
- Streets, D. G., Bond, T. C., Carmichael, G. R., Fernandes, S. D., Fu, Q., He, D., Klimont, Z., Nelson, S. M., Tsai, N. Y., Wang, M. Q., Woo, J.-H., and Yarber, K. F. (2003). An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in asia in the year 2000. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D21) :8809. 23
- Streets, D. G. and Waldhoff, S. T. (2000). Present and future emissions of air pollutants in china : SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, and CO. *Atmospheric Environment*, 34(3) :363–374. 23
- Sudo, K., Takahashi, M., and Akimoto, H. (2003). Future changes in stratosphere-troposphere exchange and their impacts on future tropospheric ozone simulations. *Geophysical Research Letters*, 30(24) :2256. 30
- Thompson, A. M., Allen, A. L., Lee, S., Miller, S. K., and Witte, J. C. (2010). Gravity and rossby wave signatures in the tropical troposphere and lower stratosphere based on southern hemisphere additional ozonesondes (SHADOZ), 1998–2007. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 116(D5) :D05302. 37
- Thompson, A. M., Doddridge, B. G., Witte, J. C., Hudson, R. D., Luke, W. T., Johnson, J. E., Johnson, B. J., Oltmans, S. J., and Weller, R. (2000). A tropical atlantic paradox : Shipboard and satellite views of a tropospheric ozone maximum and wave-one in january–february 1999. *Geophysical Research Letters*, 27(20) :3317–3320. 42, 43
- Thompson, A. M. and Hudson, R. D. (1999). Tropical tropospheric ozone (TTO) maps from nimbus 7 and earth probe TOMS by the modified-residual method : Evaluation with sondes, enso signals, and trends from atlantic regional time series. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 104(D21) :26961–26975. 43
- 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., and Kelder, H. M. (2003). Southern hemisphere additional ozonesondes (SHADOZ) 1998–2000 tropical ozone climatology 2. tropospheric variability and the zonal wave-one. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D2) :8241. 43, 76, 79
- Thouret, V., Marenco, A., Logan, J. A., Nédélec, P., and Grouhel, C. (1998). Comparisons of ozone measurements from the MOZAIC airborne program and the ozone sounding network at eight locations. *Journal of Geophysical Research*, 103(D19) :25695. 62

- Tost, H., Jöckel, P., and Lelieveld, J. (2007). Lightning and convection parameterisations uncertainties in global modelling. *Atmos. Chem. Phys.*, 7(17) :4553–4568. 27
- Turner, A. G. and Annamalai, H. (2012). Climate change and the south asian summer monsoon. *Nature Climate Change*, 2(8) :587–595. 40
- Uppala, S. M., Kallberg, P. W., Simmons, A. J., Andrae, U., Bechtold, V. D. C., Fiorino, M., Gibson, J. K., Haseler, J., Hernandez, A., Kelly, G. A., Li, X., Onogi, K., Saarinen, S., Sokka, N., Allan, R. P., Andersson, E., Arpe, K., Balmaseda, M. A., Beljaars, A. C. M., Berg, L. V. D., Bidlot, J., Bormann, N., Caires, S., Chevallier, F., Dethof, A., Dragosavac, M., Fisher, M., Fuentes, M., Hagemann, S., Holm, E., Hoskins, B. J., Isaksen, I. S. A., Janssen, P. a. E. M., Jenne, R., McNally, A. P., Mahfouf, J.-F., Morcrette, J.-J., Rayner, N. A., Saunders, R. W., Simon, P., Sterl, A., Trenberth, K. E., Untch, A., Vasiljevic, D., Viterbo, P., and Woollen, J. (2005). The ERA-40 re-analysis. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 131(612) :2961–3012. 40
- van Aardenne, J. A., Carmichael, G. R., Levy II, H., Streets, D., and Hordijk, L. (1998). Anthropogenic NO<sub>x</sub> emissions in asia in the period 1990–2020. *Atmospheric Environment*, 33(4) :633–646. 23
- van Aardenne, J. A., Dentener, F. J., Olivier, J. G. J., Goldewijk, C. G. M. K., and Lelieveld, J. (2001). A 1°\*1° resolution data set of historical anthropogenic trace gas emissions for the period 1890–1990. *Global Biogeochemical Cycles*, 15(4) :909–928. 22
- van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., Collatz, G. J., Mu, M., Kasibhatla, P. S., Morton, D. C., DeFries, R. S., Jin, Y., and van Leeuwen, T. T. (2010). Global fire emissions and the contribution of deforestation, savanna, forest, agricultural, and peat fires (1997–2009). *Atmos. Chem. Phys.*, 10(23) :11707–11735. 69
- van Noije, T. P. C., Eskes, H. J., Dentener, F. J., Stevenson, D. S., Ellingsen, K., Schultz, M. G., Wild, O., Amann, M., Atherton, C. S., Bergmann, D. J., Bey, I., Boersma, K. F., Butler, T., Cofala, J., Drevet, 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., Martin, R. V., Montanaro, V., Müller, J.-F., Pitari, G., Prather, M. J., Pyle, J. A., Richter, A., Rodriguez, J. M., Savage, N. H., Strahan, S. E., Sudo, K., Szopa, S., and van Roozendaal, M. (2006). Multi model ensemble simulations of tropospheric NO<sub>2</sub> compared with GOME retrievals for the year 2000. *Atmos. Chem. Phys.*, 6(10) :2943–2979. 69
- Vernier, J.-P., Thomason, L. W., and Kar, J. (2011). Calipso detection of an asian tropopause aerosol layer. *Geophysical Research Letters*, 38(7) :n/a–n/a. 51, 106

- Volz, A. and Kley, D. (1988). Evaluation of the montsouris series of ozone measurements made in the nineteenth century. *Nature*, 332(6161) :240–242. 29
- Von Liebig, J. (1827). Extrait d'une note sur la nitrification. *Ann. Chem. Phys.*, 35 :329–333. 25
- Waugh, D. W. and Polvani, L. M. (2000). Climatology of intrusions into the tropical upper troposphere. *Geophysical Research Letters*, 27(23) :3857–3860. 21, 82
- Webster, P. J. and Holton, J. R. (1982). Cross-equatorial response to middle-latitude forcing in a zonally varying basic state. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 39(4) :722–733. 81
- Wennberg, P. O., Hanisco, T. F., Jaeglé, L., Jacob, D. J., Hints, E. J., Lanzendorf, E. J., Anderson, J. G., Gao, R.-S., Keim, E. R., Donnelly, S. G., Negro, L. A. D., Fahey, D. W., McKeen, S. A., Salawitch, R. J., Webster, C. R., May, R. D., Herman, R. L., Proffitt, M. H., Margitan, J. J., Atlas, E. L., Schauffler, S. M., Flocke, F., McElroy, C. T., and Bui, T. P. (1998). Hydrogen radicals, nitrogen radicals, and the production of O<sub>3</sub> in the upper troposphere. *Science*, 279(5347) :49–53. 17
- Wesely, M. and Hicks, B. (2000). A review of the current status of knowledge on dry deposition. *Atmospheric Environment*, 34(12–14) :2261–2282. 7
- WHO (2003). Health aspects of air pollution with particulate matter, ozone and nitrogen dioxide : Report on who working group, bonn. *World Health Organization, Regional Office for Europe*. 6
- Wilson, R. C., Fleming, Z. L., Monks, P. S., Clain, G., Henne, S., Konovalov, I. B., Szopa, S., and Menut, L. (2012). Have primary emission reduction measures reduced ozone across europe? an analysis of european rural background ozone trends 1996–2005. *Atmos. Chem. Phys.*, 12(1) :437–454. 30
- Wright, J. S., Fu, R., Fueglistaler, S., Liu, Y. S., and Zhang, Y. (2011). The influence of summertime convection over southeast asia on water vapor in the tropical stratosphere. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 116(D12) :n/a–n/a. 54
- Yanai, M. and Wu, G.-X. (2006). *Effects of the Tibetan Plateau*. Springer Berlin Heidelberg. 38
- Yang, G.-Y. and Hoskins, B. J. (1996). Propagation of rossby waves of nonzero frequency. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 53(16) :2365–2378. 81
- Yatagai, A., Kamiguchi, K., Arakawa, O., Hamada, A., Yasutomi, N., and Kitoh, A. (2012). APHRODITE : Constructing a long-term daily gridded precipitation dataset for asia based on a dense network of rain gauges. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 93(9) :1401–1415. 40
- Young, P. J., Archibald, A. T., Bowman, K. W., Lamarque, J.-F., Naik, V., Stevenson, D. S., Tilmes, S., Voulgarakis, A., Wild, O., Bergmann, D., Cameron-Smith, P., Cionni, I., Collins,

- W. J., Dalsoren, S. B., Doherty, R. M., Eyring, V., Faluvegi, G., Horowitz, L. W., Josse, B., Lee, Y. H., MacKenzie, I. A., Nagashima, T., Plummer, D. A., Righi, M., Rumbold, S. T., Skeie, R. B., Shindell, D. T., Strode, S. A., Sudo, K., Szopa, S., and Zeng, G. (2013). Pre-industrial to end 21st century projections of tropospheric ozone from the atmospheric chemistry and climate model intercomparison project (ACCMIP). *Atmos. Chem. Phys.*, 13(4) :2063–2090. [7](#), [19](#), [29](#), [31](#)
- Zachariasse, M., Smit, H. G. J., van Velthoven, P. F. J., and Kelder, H. (2001). Cross-tropopause and interhemispheric transports into the tropical free troposphere over the indian ocean. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 106(D22) :28441–28452. [3](#), [46](#), [47](#), [74](#), [77](#), [92](#), [93](#), [96](#), [102](#)
- Zachariasse, M., van Velthoven, P. F. J., Smit, H. G. J., Lelieveld, J., Mandal, T. K., and Kelder, H. (2000). Influence of stratosphere-troposphere exchange on tropospheric ozone over the tropical indian ocean during the winter monsoon. *Journal of Geophysical Research*, 105(D12) :15403. [3](#), [46](#), [47](#), [74](#), [77](#), [86](#), [92](#), [96](#), [102](#)
- Zahn, A., Brenninkmeijer, C. a. M., Asman, W. a. H., Crutzen, P. J., Heinrich, G., Fischer, H., Cuijpers, J. W. M., and van Velthoven, P. F. J. (2002). Budgets of O<sub>3</sub> and CO in the upper troposphere : CARIBIC passenger aircraft results 1997–2001. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 107(D17) :4337. [83](#)
- Zeng, G., Morgenstern, O., Braesicke, P., and Pyle, J. A. (2010). Impact of stratospheric ozone recovery on tropospheric ozone and its budget. *Geophysical Research Letters*, 37(9) :L09805. [30](#)
- Zhang, H., Wu, S., Huang, Y., and Wang, Y. (2014). Effects of stratospheric ozone recovery on photochemistry and ozone air quality in the troposphere. *Atmos. Chem. Phys.*, 14(8) :4079–4086. [30](#)
- Zhang, L., Li, Q. B., Jin, J., Liu, H., Livesey, N., Jiang, J. H., Mao, Y., Chen, D., Luo, M., and Chen, Y. (2011). Impacts of 2006 indonesian fires and dynamics on tropical upper tropospheric carbon monoxide and ozone. *Atmos. Chem. Phys.*, 11(21) :10929–10946. [78](#)
- Zhang, L., Li, Q. B., Murray, L. T., Luo, M., Liu, H., Jiang, J. H., Mao, Y., Chen, D., Gao, M., and Livesey, N. (2012). A tropospheric ozone maximum over the equatorial southern indian ocean. *Atmos. Chem. Phys.*, 12(9) :4279–4296. [48](#), [74](#), [78](#), [102](#)
- Zhang, Q., Streets, D. G., Carmichael, G. R., He, K. B., Huo, H., Kannari, A., Klimont, Z., Park, I. S., Reddy, S., Fu, J. S., Chen, D., Duan, L., Lei, Y., Wang, L. T., and Yao, Z. L. (2009). Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-b mission. *Atmos. Chem. Phys.*, 9(14) :5131–5153. [22](#)

- Zhang, Q., Streets, D. G., He, K., Wang, Y., Richter, A., Burrows, J. P., Uno, I., Jang, C. J., Chen, D., Yao, Z., and Lei, Y. (2007). NO<sub>x</sub> emission trends for china, 1995–2004 : The view from the ground and the view from space. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D22) :D22306. 22
- Ziemke, J. R., Chandra, S., Schoeberl, M. R., Froidevaux, L., Read, W. G., Levelt, P. F., and Bhartia, P. K. (2007). Intra-seasonal variability in tropospheric ozone and water vapor in the tropics. *Geophysical Research Letters*, 34(17) :n/a–n/a. 42
- Zipser, E. J. (2003). Some views on hot towers after 50 years of tropical field programs and two years of TRMM data. *Meteorological Monographs*, 29(51) :49–49. 41
- Zipser, E. J., Liu, C., Cecil, D. J., Nesbitt, S. W., and Yorty, D. P. (2006). Where are the most intense thunderstorms on earth? *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 87(8) :1057–1071. 41