

ÉCOLE DOCTORALE
ENERGIE, MATERIAUX, SCIENCES DE LA TERRE ET DE L'UNIVERS

LABORATOIRE DE PHYSIQUE ET CHIMIE DE
L'ENVIRONNEMENT ET DE L'ESPACE (LPC2E)

THÈSE présentée par :
Vanessa BROCCHI

soutenue le : **18 décembre 2017**

pour obtenir le grade de : **Docteur de l'université d'Orléans**
Discipline/S spécialité : Sciences de la Terre et de l'Atmosphère

**Caractérisation de sources de pollution
troposphérique en régions méditerranéenne
et ouest-africaine par mesures in situ en
avion et modélisation**

THÈSE dirigée par :
Valéry CATOIRE

Professeur, LPC2E, CNRS-Université, Orléans

RAPPORTEURS :
Matthias BEEKMANN
Cyrille FLAMANT

Directeur de Recherche au CNRS, LISA, Paris
Directeur de Recherche au CNRS, LATMOS, Paris

JURY :

Matthias BEEKMANN
Valéry CATOIRE
Aurélien COLOMB
Guillaume DAYMA
Cyrille FLAMANT
Gisèle KRYSZTOFIK
Céline MARI

Directeur de Recherche au CNRS, LISA, Paris
Professeur, LPC2E, CNRS-Université, Orléans
Maître de Conférences, LaMP, UCA, Clermont-Ferrand
Professeur, ICARE, CNRS, Orléans, Président du jury
Directeur de Recherche au CNRS, LATMOS, Paris
Maître de Conférences, LPC2E, CNRS-Université, Orléans
Directrice de Recherche au CNRS, LA, Toulouse

Remerciements

Ces quelques lignes sont l'occasion pour moi de remercier toutes les personnes qui m'ont soutenue (et supportée) et qui ont fait de la thèse une expérience agréable. J'oublierai certainement des personnes à remercier tant la thèse est faite de rencontres. Je m'en excuse d'avance.

Mes remerciements vont en premier lieu à mon directeur de thèse, Valéry Catoire. Merci de m'avoir fait confiance tout au long de cette thèse. Je te remercie pour tes conseils et pour m'avoir accompagnée dans mon travail malgré un emploi du temps considérablement chargé. Merci aussi pour m'avoir permis de participer à différents projets européens et notamment à ma première campagne de terrain.

Je tiens à remercier très sincèrement Gisèle Krysztofiak pour toute l'aide apportée pendant ces années de thèse. Tu as toujours pris le temps de répondre à toutes mes questions. Merci pour toutes tes idées et ton optimisme rassurant dans mes moments de doute. Et merci pour le Strudel aux pommes et le bo bun (entre autres) !

Je tiens également à remercier Matthias Beekmann et Cyrille Flamant pour leurs analyses et commentaires constructifs dans leur rapport. Mes remerciements vont aussi à l'ensemble des membres du jury, Aurélie Colomb, Céline Mari et Guillaume Dayma, président du jury, pour leur investissement et pour la discussion qui a suivi.

Je souhaite remercier Michel Tagger, directeur du LPC2E, pour m'avoir accueillie au sein de laboratoire et pour m'avoir fait visiter une partie de la côte californienne.

Je remercie l'ensemble des personnes du labo, et plus spécialement les collègues de l'équipe atmosphère, avec qui j'ai pu passer d'agréables moments et échanger sur des sujets scientifiques (mais pas que). En particulier, je remercie Claude et Patrick pour leurs explications sur SPIRIT et la spectroscopie en général, et sans qui je ne serai pas venue à bout du traitement des données de l'instrument. Mention spéciale à Patrick pour m'avoir boostée quand nécessaire, que ce soit par la parole ou par du chocolat ! Merci aussi à Thibaut pour avoir accepté de me prêter sa source LaTeX. Et merci à Nathalie pour ses conseils qui m'ont permis d'améliorer considérablement ma soutenance.

Merci aussi à toutes les personnes qui sont venues à mon secours pour la programmation (ils sont nombreux...). Je remercie plus particulièrement Matthieu dont l'aide en informatique

va bien au-delà de ces années de thèse. Je crois t'avoir parfois donné du fil à retordre mais tu as toujours pris le temps de venir à bout de mes problèmes. Merci à Gillou et Stéphane (tu reprendras bien un peu de fufu?) de la méca pour leur humour et bonne humeur. Merci aussi à Catherine, Isabelle et Tiphaine pour leur aide dans les méandres de la paperasse administrative. Je remercie également Lucas et Jean-Matthias de mon comité de thèse de s'être souciés de l'avancée de mes travaux.

Un grand merci aussi aux collègues et amis sportifs qui m'ont accompagnée pendant ces trois ans dans mes différentes activités. Ces pauses sportives ont été l'occasion de rencontrer de nouvelles personnes. Merci à tous pour ces moments de détente, ou de souffrance parfois ;).

Je souhaite aussi remercier Abdou, Patrick et Jérôme pour leur encadrement durant mon stage de master et pour m'avoir soutenue dans mon choix de faire une thèse. En particulier, merci à toi, Abdou, pour toujours prendre le temps de m'écouter lorsque je doute et pour me conseiller.

Enfin, je souhaite remercier Ravi avec qui j'ai eu la grande chance de pouvoir interagir. Cette rencontre a eu un effet plus que motivant dans les derniers mois difficiles de la thèse. Merci pour ta gentillesse, pour avoir pris le temps de m'écouter et pour avoir trouvé les mots justes pour me redonner confiance en moi pendant cette période.

Cette thèse n'aurait pas été la même sans les amis du bureau 007 ! Merci aux anciens du bureau, Fabrice et Luca. Et un grand merci à Charlotte et Chen pour tout ce que leur présence quotidienne a pu apporter : de la bonne humeur, de la détente, du soutien, des sorties sans oublier des potins et des gourmandises :) ! Je n'oublie pas non plus les réguliers du bureau. Laura, ce qui est dit pour Charlotte et Chen s'applique pour toi aussi. Merci pour tes visites régulières et toujours agréables et merci de m'avoir fait confiance pour garder Plouf ;). Enfin, merci à mon copain de promo, Francky ! Tu avais toujours le mot pour rire en passant dans le bureau et j'ai été contente de traverser les épreuves de la thèse en même temps que toi. Tu as géré ta thèse et je te fais confiance pour gérer l'après-thèse.

Enfin, je remercie ma famille pour leur soutien, en particulier ma sœur pour avoir « subi » certaines de mes présentations, et Juju qui a dû me supporter plus que tous les autres. Merci à toi de m'avoir toujours soutenue et encouragée pendant les moments difficiles.

À mon père.

Table des matières

Liste des figures	xi
Liste des tableaux	xvii
Introduction	1
1 Généralités sur la chimie et la dynamique troposphérique	5
1.1 Structure verticale de l'atmosphère terrestre	5
1.2 Chimie troposphérique	7
1.2.1 Les processus d'oxydation par le radical OH	7
1.2.2 Le dioxyde de soufre	13
1.2.3 Les aérosols	13
1.2.4 La vapeur d'eau	14
1.3 Transport des espèces dans la troposphère	14
1.3.1 Circulation générale	14
1.3.2 La couche limite atmosphérique	16
1.3.3 Troposphère libre et UTLS	20
1.4 Corrélation entre traceurs chimiques	21
2 Instrumentation et modélisation	25
2.1 Généralités sur la spectrométrie d'absorption infrarouge à ultra-haute résolution	25
2.1.1 Intensité de raie	26
2.1.2 Profils des raies	27
2.1.2.1 Profil naturel	27
2.1.2.2 Élargissement collisionnel	28
2.1.2.3 Profil Doppler	28

2.1.2.4	Profil de Voigt	29
2.1.2.5	Fonction d'appareil	30
2.2	Mesures aéroportées	30
2.2.1	Principe de fonctionnement de l'instrument SPIRIT	30
2.2.2	Méthode de traitement des données : du spectre d'absorption aux concentrations	34
2.2.3	Caractéristiques et performances de SPIRIT	38
2.2.4	Autres instruments aéroportés	39
2.3	Mesures spatiales	41
2.3.1	MODIS	41
2.3.2	IASI	42
2.3.3	CALIOP	42
2.3.4	AIRS	43
2.4	Modèles numériques de modélisation de l'atmosphère	43
2.4.1	Les inventaires d'émission	43
2.4.2	Les champs de vent	45
2.4.3	Le modèle FLEXPART	45
2.4.4	Le modèle MOCAGE	52
3	Pollution aux moyennes latitudes : cas du bassin Méditerranéen	53
3.1	Description de la campagne GLAM	54
3.1.1	Objectifs du projet ChArMEx	54
3.1.2	La campagne de terrain GLAM	55
3.1.3	Comparaison entre les mesures de SPIRIT et la station de surface calibrée WMO/GAW	57
3.1.4	Contexte de l'étude	59
3.2	Cas d'étude du 10 août 2014 : panache de feux de forêt nord-américains . . .	61
3.2.1	Description du vol et des mesures	61
3.2.2	Mise en évidence de la source d'émission	63
3.2.3	Simulation de la contribution au CO des feux de biomasse	65
3.2.3.1	Ajustement de la hauteur d'injection du panache	65
3.2.3.2	Utilisation d'un facteur d'amplification appliqué aux émissions	67
3.2.4	Simulation de la contribution au carbone-suie (BC) des feux de biomasse	68

3.2.5	Mise en évidence du transport par le jet stream	68
3.2.6	Précédents cas de transport transatlantique de feux de forêt reportés .	71
3.3	Cas d'étude du 6 août 2014 : panache de feux de forêt sibériens	72
3.3.1	Description du vol et des mesures	72
3.3.2	Mise en évidence de la source d'émission	75
3.3.3	Simulation de la contribution des feux de biomasse au CO : ajustement de la hauteur d'injection du panache	77
3.3.4	Simulation de la contribution des feux de biomasse au BC	80
3.3.5	Analyse du transport de la masse d'air vers le bassin Méditerranéen .	81
3.3.5.1	Simulations MOCAGE	81
3.3.5.2	Données IASI	86
3.3.6	Précédents cas de transport transpacifique-transatlantique de feux de forêt reportés	89
3.4	Conclusions	90
4	Pollution aux latitudes équatoriales	93
4.1	Étude au niveau de l'Afrique de l'Ouest : le projet DACCIWA/APSOWA . .	94
4.1.1	Contexte de l'étude	94
4.1.2	Le projet DACCIWA	96
4.1.3	Le projet APSOWA	97
4.1.4	Campagne de mesures dans la région	98
4.1.4.1	Description de la campagne	98
4.1.4.2	Caractéristiques régionales et conditions météorologiques . .	98
4.1.4.3	Validation des mesures de SPIRIT	106
4.1.5	Pollution de la couche limite due au trafic maritime et à l'exploitation d'une plateforme pétrolière	111
4.1.5.1	Couloir maritime du golfe de Guinée	111
4.1.5.2	Simulations des émissions par une plateforme pétrolière : de la mesure au modèle	113
4.1.6	Étude du transport longue distance d'une masse d'air polluée par les feux de biomasse d'Afrique centrale	122
4.2	Étude au niveau du Pacifique : le projet SHIVA	125
4.2.1	Contexte scientifique	125
4.2.2	La campagne aéroportée de mesures SHIVA	126

4.2.2.1	Description de la campagne	126
4.2.2.2	Caractéristiques régionales et conditions météorologiques . .	127
4.2.3	Caractérisation d'un pic de concentrations de polluants	130
4.2.4	Observation au cœur d'un panache de pollution de feux de biomasse .	137
4.3	Conclusions	140
Conclusion et perspectives		143
Bibliographie		149
A Mesures autour du couloir maritime		169
B Mesures des vols impactés par des feux de biomasse durant DACCIWA		175
C Simulations FLEXPART des feux de biomasse durant DACCIWA		183

Liste des figures

1.1	Structure verticale de l'atmosphère représentée en fonction de l'évolution de la température selon une échelle en altitude et en pression	6
1.2	Synthèse du mécanisme d'oxydation photochimique du CH_4 en troposphère non polluée	10
1.3	Synthèse du mécanisme d'oxydation photochimique de CH_4 en troposphère polluée	11
1.4	Diagramme isoplèthe des niveaux d' O_3 (ppm) en fonction des quantités de NO_x (ppm) et de COV (ppmC) généré par le modèle EKMA	12
1.5	Bilan radiatif global du système Terre-atmosphère en fonction de la latitude .	15
1.6	Circulation générale sur une coupe de l'hémisphère nord montrant les cellules convectives, les courants jets et la hauteur de la tropopause	16
1.7	Critère de stabilité pour une atmosphère stable, neutre et instable avec le gradient adiabatique sec	17
1.8	Influence de la stabilité atmosphérique sur la dispersion d'un panache	18
1.9	Représentation schématisée de l'élévation d'un panache dans la couche limite atmosphérique	19
1.10	Échelle de temps caractéristique du transport horizontal dans la troposphère	21
1.11	Concept du temps de vie et du mélange d'une espèce X gouverné par les processus physico-chimiques au sein d'un réservoir atmosphérique	22
1.12	Variabilité des constituants atmosphériques sur une échelle spatiale et temporelle	23
2.1	Profils de Voigt pour des raies de même intensité intégrée pour des pressions et températures correspondant à 3 altitudes différentes	30
2.2	Représentation du principe de fonctionnement de l'instrument SPIRIT	32
2.3	Photo de SPIRIT dans son rack avion et représentation 3D du banc optique .	33

2.4	Exemple d'un spectre de transmission expérimental et simulé pour CO, des dérivées secondes du signal transmis expérimental et simulé et des résidus minimum de la transmission et de la dérivée seconde	36
2.5	Exemple d'un spectre de transmission expérimental et simulé pour CH ₄ , des dérivées secondes du signal transmis expérimental et simulé et des résidus minimum de la transmission et de la dérivée seconde	37
2.6	Exemple d'un spectre de transmission expérimental et simulé pour NO ₂ , des dérivées secondes du signal transmis expérimental et simulé et des résidus minimum de la transmission et de la dérivée seconde	37
2.7	Schéma simplifié de la structure de FLEXPART dans le cadre de nos études. Les encadrés pointillés représentent les données ou procédés externes au modèle	49
2.8	Représentation du couplage entre la PES et les émissions de CO de l'inventaire EDGAR donnant la contribution totale du CO	50
3.1	Représentation schématique en 5 étapes des processus impactant les concentrations en polluants dans la moyenne et haute troposphère au-dessus du versant est du BM	55
3.2	Schéma des vols et profils verticaux tels qu'effectués durant la campagne GLAM	56
3.3	Dates, lieux et altitudes des vols lors de la campagne aéroportée GLAM . . .	57
3.4	Profil vertical de la température potentielle pour le 6 août 2014 et le 10 août 2014	58
3.5	Représentation des mesures pour le vol F8	62
3.6	Représentation de la PES et de la contribution du CO calculées par FLEXPART pour le 10 août 2014	63
3.7	Photo prise depuis un avion d'un pyrocumulus en développement au-dessus d'une partie du « Beaver Complex fire » le 31 juillet 2014	64
3.8	Représentation de la contribution anthropique globale du CO dans la couche 0-200 m pour le 10 août 2014	64
3.9	Zoom d'une partie de F8 de 13,0 à 13,75h UTC au-dessus de la Sardaigne à 9,7 km asl avec une hauteur d'injection fixée jusqu'à 10 km dans FLEXPART. Représentation des simulations du CO par FLEXPART et de l'âge des masses d'air	66
3.10	Distribution verticale des types d'aérosols et distribution verticale du CO de AIRS le 6 août 2014 à 9 :51 UTC	67
3.11	Estimation de la hauteur d'injection par GFAS au-dessus de l'Amérique du Nord les 5 et 6 août 2014	68

3.12 Évolution temporelle de la densité de particules le long de la trajectoire du vol F8	69
3.13 Contribution au BC des feux de biomasse calculée dans une couche 0-10 km le 10 août 2014	69
3.14 Mise en évidence du transport par l'évolution de la colonne totale de CO en molécules.cm ⁻² mesurée par l'instrument IASI, sur le satellite MetOp, du 5 au 10 août 2014	70
3.15 Colonne totale de NH ₃ en molécules.cm ⁻² mesurée par IASI-MetOp au-dessus de l'Amérique du Nord le 5 août 2014	71
3.16 Représentation des mesures pour le vol F2	74
3.17 Représentation de la PES et de la contribution au CO calculées par FLEX-PART pour le 6 août 2014	75
3.18 Représentation de la contribution anthropique globale du CO dans la couche 0-200 m pour le 6 août 2014	76
3.19 Contribution du CO calculée par FLEXPART, avec un code couleur selon l'âge de la masse d'air, de 1 à 20 jours, sur une partie de F2, de 11,5 à 14,0h UTC, au-dessus de la Sardaigne à 5,4 km asl, avec une hauteur d'injection fixée jusqu'à 10 km dans FLEXPART.	76
3.20 Distribution verticale des types d'aérosols et distribution verticale du CO de AIRS le 24 juillet 2014 à 18 :37 UTC et le 2 août 2014 à 6 :58 UTC	78
3.21 Estimation de la hauteur d'injection par GFAS au-dessus de la Sibérie les 24 et 25 juillet 2014 et au-dessus de l'Amérique du Nord les 1 ^{er} et 2 août 2014	79
3.22 Représentation des simulations du CO par FLEXPART sur une partie de F2, de 11,5 à 14,0h UTC, au-dessus de la Sardaigne à 5,4 km asl, avec une hauteur d'injection fixée jusqu'à 10 km dans FLEXPART	80
3.23 Contribution au BC des feux de biomasse calculée dans une couche 0-10 km le 6 août 2014	80
3.24 Évolution temporelle de la densité de particules le long de la trajectoire du vol F2	81
3.25 Simulation de la nébulosité au-dessus et en-dessous des particules relarguées par FLEXPART le 6 août 2014 et des précipitations convectives et stratiformes et de l'humidité relative par le modèle ARPEGE	82
3.26 Concentrations de CO à 12 UTC entre le 23 juillet et le 6 août à 5,5 km d'altitude simulées par MOCAGE	83
3.27 Coupe longitude-altitude des concentrations moyennes de CO calculées par MOCAGE et vent vertical le 1 ^{er} août à 12 :00 UTC	85

3.28	Champ de vent moyen à 5,5 km asl entre le 3 et le 6 août selon le modèle ARPEGE	86
3.29	Mise en évidence du transport par l'évolution de la colonne totale de CO mesurée par l'instrument IASI sur le satellite MetOp du 24 juillet au 6 août 2014	88
3.30	Colonne totale de NH ₃ en molécules.cm ⁻² mesurée par IASI-MetOp au-dessus de la Sibérie le 24 juillet 2014 et de l'Amérique du Nord le 2 août 2014	90
4.1	Vue d'ensemble géographique de la zone d'étude de DACCIWA avec les principales villes d'intérêt	97
4.2	Trajectoire des 12 vols effectués par le Falcon-20 durant la campagne en représentation longitude-latitude et longitude-altitude	99
4.3	Représentation des principales routes maritimes et des ports le long du golfe de Guinée pour le 1, 7, 10, 11 et 14 juillet 2016 (données Marine Traffic) . . .	101
4.4	Localisation des plateformes pétrolières au large du golfe de Guinée par détection des torchères à l'aide du satellite VIIRS	102
4.5	Représentation de l'augmentation du nombre de système FPSO utilisé et des changements dans la profondeur des eaux où ces plateformes sont déployées .	103
4.6	Localisation et densité des feux détectés par MODIS montrant la saisonnalité des feux de biomasse sur le continent africain A) de novembre à mars 2016 et B) de juillet à octobre 2016	104
4.7	Sources principales d'émission de gaz traces et d'aérosols en Afrique de l'Ouest	106
4.8	Résultats des mesures de CO avec SPIRIT comparées à la bouteille étalon ICOS	108
4.9	Résultats des mesures de CH ₄ avec SPIRIT comparées aux bouteilles étalons ICOS et BAS	110
4.10	Résultats des mesures de NO ₂ avec SPIRIT comparées à la bouteille étalon du BAS	110
4.11	Émissions de SO ₂ par les bateaux de l'inventaire MACCity moyennées sur mai, juin et juillet 2016	112
4.12	Photo prise depuis la plage, au Togo, montrant des bateaux en stationnement	113
4.13	Mesures de CO (en noir), aérosols (en violet), NO ₂ (en orange), SO ₂ (en rose) et altitude (en rouge) en fonction du temps le 07/07/2016. L'encadré bleu correspond aux altitudes les plus basses de la trajectoire de l'avion en figure 4.14, là où l'avion a traversé le couloir maritime	114
4.14	Représentation de la trajectoire de l'avion le 7 juillet en fonction de l'altitude	115

4.15	Trajectoires de l'avion et mesures du panache de la plateforme FPSO les 10 et 14 juillet 2016	116
4.16	(A) Représentation du panache de la plateforme FPSO selon la concentration en NO_2 simulée avec FLEXPART en fonction de la distance à la source et de l'altitude, pour le 10 juillet. Les ronds colorés correspondent aux pics de mesure de SPIRIT. (C) Concentration de NO_2 en fonction du temps, avec une hauteur d'injection de 80 m, pour les mesures SPIRIT (en noir) et pour FLEXPART avec un flux réajusté (en rouge). (B) et (D) Idem à (A) et (B) pour le 14 juillet	121
4.17	Profils verticaux des mesures de CO et O_3 pour 6 vols de la campagne DAC-CIWA et photo d'une couche sombre de particules prise depuis le Falcon-20 le 10 juillet 2016	122
4.18	Représentation 3D de la trajectoire du Falcon en fonction des vmr de CO . .	123
4.19	Présentation des 16 vols de la campagne SHIVA	126
4.20	Carte de l'île de Bornéo	127
4.21	Distribution des plantations d'huile de palme sur les tourbières en Asie du sud-est en 1990 et 2010	128
4.22	Nombre de pixels de feux actifs détectés par MODIS dans chaque cellule de grille de $0,75^\circ \times 0,75^\circ$ entre le 16 novembre et le 11 décembre 2011	129
4.23	Densité du trafic maritime autour de l'île de Bornéo pour l'année 2012	130
4.24	Mesures de CO , NO_2 , SO_2 et altitude en fonction du temps le 23 novembre 2011	131
4.25	Rétro-trajectoire simulée avec FLEXPART sur 7 jours à partir du jour du pic, le 23 novembre 2011, et carte des émissions anthropiques de CO	132
4.26	Localisation des plateformes pétrolières, par le logiciel Polar Navy, en mer de Chine du sud en novembre 2011	133
4.27	Données AIS fournies par Marine Traffic donnant la position des bateaux le 23 novembre 2011. Une estimation de la trajectoire de chaque bateau 2h avant et 2h après la position donnée est représentée par les lignes continues. La trajectoire bordeaux représente la trajectoire de l'avion et le point bordeaux l'emplacement où le pic a été mesuré	134
4.28	Schéma représentant les distances, en degrés et km, entre l'avion et les différents points de relargage des particules (RP) numérotés de 1 à 7	135
4.29	Comparaison des mesures de CO avec SPIRIT, NO_2 avec le mini-DOAS et SO_2 avec le CI-ITMS avec les simulations FLEXPART pour un flux de CO de 42 kT/an, 0,7 kT/an pour NO_2 et 1,53 kT/an pour SO_2 et pour les 7 points de relargage des particules (RP)	136

4.30	Photo du feu du 21 novembre 2011 et du 7 décembre à travers le hublot du Falcon et point chaud du satellite de la NOAA détecté le 21 novembre	139
4.31	Mesures d'O ₃ par l'instrument UV-O ₃ et mesures de N ₂ O, CO et CH ₄ par l'instrument SPIRIT le 21 novembre 2011, deuxième partie du vol	140
A.1	Émissions de SO ₂ , CO, NO _x et BC par les bateaux de l'inventaire MACCity en juillet 2016. Les trajectoires des vols du 7 juillet, du 10 juillet et du 14 juillet 2016 sont superposées aux émissions	170
A.2	Représentation de la trajectoire de l'avion le 10 juillet 2016 en fonction de l'altitude	170
A.3	Représentation de la trajectoire de l'avion le 14 juillet 2016 en fonction de l'altitude	171
A.4	Mesures de CO, aérosols, NO ₂ , SO ₂ et altitude en fonction du temps le 10/07/2016	172
A.5	Mesures de CO, aérosols, NO ₂ , SO ₂ et altitude en fonction du temps le 14/07/2016	173
B.1	Mesures de CO, O ₃ , aérosols, CH ₄ , humidité relative et altitude en fonction du temps le 29/06/2016	176
B.2	Idem à la figure B.1 pour le 06/07/2016	177
B.3	Idem à la figure B.1 pour le 07/07/2016	178
B.4	Idem à la figure B.1 pour le 10/07/2016	179
B.5	Idem à la figure B.1 pour le 11/07/2016	180
B.6	Idem à la figure B.1 pour le 13/07/2016	181
C.1	(A) Représentation de la sensibilité aux émissions, (B) représentation de la contribution au CO par les feux de biomasse par l'inventaire GFAS, (C) représentation de la contribution du CO anthropique par l'inventaire EDGAR et (D) représentation de la contribution du CO anthropique par l'inventaire DACCIWA pour le vol du 29/06/2016	184
C.2	Idem à la figure C.1 pour le 06/07/2016	185
C.3	Idem à la figure C.2 pour le 07/07/2016	186
C.4	Idem à la figure C.2 pour le 10/07/2016	187
C.5	Idem à la figure C.2 pour le 11/07/2016	188
C.6	Idem à la figure C.2 pour le 13/07/2016	189

Liste des tableaux

1.1	Formules de prévision de l'élévation d'un panache, basées sur l'analyse dimensionnelle, en fonction des conditions de stabilité et de vent	19
2.1	Récapitulatif des fenêtres spectrales choisies en fonction des espèces chimiques pour les campagnes GLAM et APSOWA	38
2.2	Précisions et incertitudes des mesures en vol de SPIRIT pour les rapports de mélange de CO, CH ₄ et NO ₂	38
2.3	Récapitulatif des données 2D et 3D nécessaires au fonctionnement de FLEXPART	46
2.4	Récapitulatif des paramètres utilisés dans FLEXPART pendant notre étude .	48
2.5	Récapitulatif des différentes options choisies pour le lancement des simulations FLEXPART des campagnes GLAM, APSOWA et SHIVA	51
3.1	Comparaison des mesures des rapports de mélange volumique (vmr) en air sec de CO entre la station de surface WMO/GAW (instrument Picarro) sur l'île de Lampedusa (35,52°N,12,63°E, 45 m asl) et l'avion (instrument SPIRIT) .	59
3.2	Liste des panaches de feux de biomasse venant du continent nord-américain ayant impacté le BM	72
4.1	Liste des vols effectués par le Falcon-20 et de leurs objectifs durant DACCWA. Les temps sont ceux du décollage et de l'atterrissage. Idem pour les départs et arrivées. La localisation désigne les zones survolées	99
4.2	Liste de la charge utile à bord du Falcon-20 et des paramètres et espèces atmosphériques mesurés lors de la campagne DACCWA	100
4.3	Mesures par SPIRIT des concentrations en CO d'une bouteille target avant et après chaque vol	107
4.4	Idem au tableau 4.3 mais pour CH ₄	109

4.5	Récapitulatif des simulations FLEXPART en fonction de la hauteur d'injection (avec la méthode de calcul associée) et du flux	119
4.6	Écarts en ppbv et % entre mesures SPIRIT et simulations FLEXPART pour la concentration de NO ₂ les 10 et 14 juillet, en fonction de la hauteur d'injection et du flux choisis	120
4.7	Tableau récapitulatif des contributions anthropiques hors feux de biomasse (EDGAR et DACCIWA) et des feux de biomasse (GFAS) aux pics de CO mesurés par l'instrument SPIRIT pour chaque vol	125
4.8	Liste des vols avec la contribution des émissions de feux et leur origine, déduites par FLEXPART, à comparer aux pics de mesures de CO par SPIRIT	138

Introduction

L'atmosphère est le réceptacle des émissions de notre société. Elle agit comme un réacteur chimique au sein duquel des molécules sont introduites puis réagissent et altèrent ses propriétés et sa composition. À l'origine de ces réactions chimiques se trouve le rayonnement solaire. Les débuts de la chimie atmosphérique remontent au 18^e siècle pour tenter de déterminer les composants de l'atmosphère. Il faut ensuite attendre le 19^e siècle pour que l'identité des constituants principaux de l'atmosphère et des gaz traces soit établie. Enfin, à la fin du 19^e siècle, l'attention s'est portée sur les gaz traces. Bien que leur teneur atmosphérique soit faible (de la partie par million, ppmv, à la partie par trillion, pptv, en rapport de mélange molaire ou volumique), leur impact sur la qualité de l'air et le climat n'est pas négligeable. Ces composés sont en effet émis et/ou (ré)générés en permanence, ce qui conduit à un état stationnaire (sur des échelles de temps variables selon les composés), hors épisode spécifique de pollution. Aujourd'hui, l'Homme, de par ses déplacements, ses activités industrielles et agricoles et son exigence de confort (chauffage...), contribue à l'augmentation de leurs concentrations et donc à la modification de la composition atmosphérique, ce qui place la qualité de l'air et le changement climatique au cœur de l'actualité. Le mécanisme naturel d'effet de serre permet à l'atmosphère de maintenir un bilan énergétique en équilibre et la température au sol à 15°C en moyenne. Mais la présence de certains gaz traces atmosphériques (les gaz à effet de serre) en augmentation piège le rayonnement infrarouge et ainsi contribue au réchauffement global de la Terre. Le cinquième rapport du Groupe Intergouvernemental d'Experts sur l'évolution du Climat (GIEC, en anglais : IPCC pour Intergovernmental Panel on Climate Change) prévoit un changement global de la température de surface pour la fin du 21^e siècle susceptible de dépasser les 2°C par rapport à 1870 pour la majorité de leurs scénarios ([Hartmann et al., 2013](#)). Les effets du réchauffement climatique vont au-delà, avec des répercussions possibles sur la circulation océanique et la circulation atmosphérique ([Hartmann et al., 2013](#)). Au niveau régional, ces changements dans la circulation atmosphérique peuvent impacter des régions particulières plus que d'autres ([Hartmann et al., 2013](#)). Face à ces enjeux, il apparaît nécessaire de mesurer les émissions et modéliser leur distribution spatiale et leur évolution temporelle afin d'évaluer leur impact présent et futur.

Parmi ces émissions, celles provenant des feux de biomasse sont une source majeure de pollution (tels que le dioxyde de carbone (CO₂), le monoxyde de carbone (CO), les oxydes

d'azote (NO_x), le méthane (CH_4), les particules en suspension (aérosols)) dans l'atmosphère (Seinfeld and Pandis, 2016). Pendant les périodes de feux, ces émissions induisent un forçage radiatif à l'échelle régionale et ont aussi un effet sur la qualité de l'air avec une augmentation des concentrations en ozone (O_3). À titre d'exemple, des concentrations en O_3 et CO dépassant les 100 et 220 ppbv respectivement ont été mesurées au niveau de la côte de l'État de Washington en 2003 (Bertschi and Jaffe, 2005), à comparer au niveau de fond en atmosphère propre : 40 ppbv actuellement pour O_3 , 40-150 ppbv pour CO (Seinfeld and Pandis, 2016). À l'exception des déserts et des pôles, les feux affectent la majorité du globe (Bowman et al., 2009). Les feux suivent un cycle saisonnier associé aux conditions météorologiques. Au niveau mondial, c'est en juillet, août et septembre que l'occurrence des feux est la plus importante alors qu'elle est moindre en février (Giglio et al., 2006). Dans les régions intertropicales de l'hémisphère nord, la période des feux s'étend de décembre à avril tandis que dans l'hémisphère sud, elle s'étend d'août à novembre (Duncan et al., 2003, Langmann et al., 2009). Les feux, de par l'énergie qu'ils libèrent, peuvent initier de la convection, appelée pyroconvection, dépendante de l'intensité du feu mais aussi des conditions de stabilité atmosphérique. En effet, la chaleur dégagée par les feux génère de la flottabilité. Cette flottabilité entraîne un rapide transport vertical des émissions qui provoque la condensation de la vapeur d'eau en panache. On parle alors de pyro-cumulus. Ce transport vertical provoque l'injection d'émission à plus haute altitude et a donc un impact direct sur la composition atmosphérique. Ainsi, il n'est pas rare de voir des polluants issus de la combustion de feux de biomasse injectés dans la troposphère libre, voire jusque dans la stratosphère (par exemple Damoah et al., 2006, Cammas et al., 2009, Dahlkötter et al., 2014). Si les conditions météorologiques y sont favorables, les émissions de feux sont aussi susceptibles d'être transportées sur de longues distances (par exemple Damoah et al., 2004, Petzold et al., 2007, Ancellet et al., 2016). Finalement, des incertitudes demeurent sur les émissions liées aux feux et sur le transport vertical (Rea, 2015). Ainsi, le transport, horizontal et vertical, des émissions dues à la combustion de biomasse nécessite d'être étudié afin d'évaluer son impact sur la composition atmosphérique.

Un processus de combustion différentiable de celui des feux de biomasse de par sa température et sa faible étendue spatiale est le torchage (flaring en anglais) des gaz. Il s'agit du processus permettant d'éliminer le gaz naturel par combustion dans une flamme à l'air libre utilisé dans le cadre de la production de pétrole et de gaz (Fawole et al., 2016a). Le torchage est principalement utilisé dans les installations pétrolières et gazières dont l'infrastructure n'est pas suffisante pour utiliser le gaz naturel, afin d'éviter un phénomène de surpression (Elvidge et al., 2009, Fawole et al., 2016a). Ce processus est à l'origine d'émissions de composés organiques volatils (COV), CO, CO_2 , dioxyde de soufre (SO_2), hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), NO_x et de carbone suie (BC pour black carbon en anglais) (Jaffe et al., 1995, Peters et al., 2011, Stohl et al., 2013, Nara et al., 2014, Fawole et al., 2016b, Deetz and Vogel, 2017) dans l'atmosphère. En considérant que plus de 130 milliards de m^3 de gaz sont brûlés chaque année au niveau mondial (Fawole et al., 2016b), le torchage

a donc un réel impact sur la pollution de l'air aux échelles locale et régionale (par exemple [Stohl et al., 2013](#), [Anejionu et al., 2014](#), [Nara et al., 2014](#), [Roiger et al., 2014](#), [Fawole et al., 2016b](#)). Du fait de la chaleur dégagée par le processus de combustion et de la hauteur de la cheminée, les polluants émis peuvent aussi se retrouver dans la troposphère libre, facilitant leur transport à longue distance ([Fawole et al., 2016b](#)). Cependant, des études ont démontré qu'il existe des lacunes dans les inventaires d'émissions pour le secteur d'activité relatif au torchage ([Stohl et al., 2013](#)) et que des incertitudes demeurent sur ces émissions et leur quantité ([Roiger et al., 2014](#), [Fawole et al., 2016b](#)). De façon générale, il est donc nécessaire de prendre en compte les émissions liées au torchage et de les quantifier.

Les combustibles fossiles sont aussi utilisés pour le transport maritime. Les émissions provenant du trafic maritime sont des sources importantes de polluants atmosphériques gazeux mais aussi particuliers reconnus pour impacter la qualité de l'air dans les régions côtières. Du fait de leurs effets néfastes, l'organisation internationale maritime (IMO) a défini des zones soumises à des réglementations environnementales, zones ECAs (Emission Controlled Areas), où les émissions sont régulées par l'utilisation de fuel à teneur réduite en soufre (0,1% en masse). Pour les côtes non incluses dans ces zones ECAs, des restrictions au niveau mondial sont appliquées afin de réduire aussi la charge en soufre des carburants de 3,5% en masse vers une réduction à 0,5% d'ici 2025. Bien que des mesures soient prises afin de limiter les émissions soufrées des bateaux, les zones avec un trafic maritime dense nécessitent d'être toujours étudiées pour estimer leurs conséquences sur la santé et le forçage radiatif au niveau régional ([Alföldy et al., 2013](#)).

Pour lutter contre ces formes de pollution, il faut d'abord être capable de les détecter et de mesurer avec précision les concentrations en substances polluantes. C'est là un des enjeux des campagnes de terrain, et notamment des campagnes aéroportées. Ce que l'on se propose de faire dans ce travail de thèse est de contribuer à la caractérisation des sources de pollution troposphérique par ces types de combustion dans trois régions du globe, en partie grâce à l'apport des mesures rapides et précises in situ de l'instrument SPIRIT couplées à des modèles, lors de trois campagnes aéroportées. Cette thèse s'articule selon le plan suivant. Le chapitre 1 présente de façon non exhaustive la dynamique et la chimie de la troposphère. Il permet de présenter les différentes espèces étudiées tout au long de la thèse avec leurs sources et puits principaux ainsi que la dynamique troposphérique influençant les concentrations de ces espèces.

Le chapitre 2 décrit les outils nécessaires pour chaque étude. L'instrument SPIRIT étant basé sur la spectroscopie d'absorption à ultra-haute résolution spectrale, ce chapitre débute par un rappel de la théorie sur le sujet. La description de l'instrument SPIRIT utilisé dans chaque campagne aéroportée avec ses performances et ses avantages est ensuite donnée. S'ensuit une description des mesures spatiales utilisées puis des modèles numériques. Cette dernière partie fait référence aux inventaires d'émission, au modèle de prévision fournissant les champs de vent mais aussi au modèle de transport lagrangien FLEXPART (FLEXible PARTicle disper-

sion model) et au modèle de chimie-transport MOCAGE (MOdèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle).

Les résultats principaux de la thèse sont présentés dans les chapitres 3 et 4. Tout d'abord, le bassin méditerranéen, au travers du projet ChArMEx (Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment) dans le cadre du chantier Méditerranée (programme de recherche MISTRALS : Mediterranean Integrated Studies at Regional And Local Scales), fait l'objet de nombreuses études quant à l'état de l'environnement atmosphérique présent et futur pouvant impacter la région méditerranéenne. L'étude menée dans le chapitre 3 contribue à ce projet en présentant deux cas de transport intercontinental d'émissions de feux de biomasse ayant impacté la Sardaigne (Brocchi et al., 2017). Le travail est mené en combinant les mesures des instruments embarqués (incluant SPIRIT) lors de la campagne aéroportée GLAM et les modèles numériques FLEXPART et MOCAGE. En second lieu, la pollution des régions émergentes nécessite une attention particulière dans le sens où les mesures effectuées dans ces régions permettront d'améliorer les modèles de qualité de l'air et de climat et ainsi d'aider à la mise en place de politiques de développement durable pour ces régions. Le projet DACCIWA (Dynamics-Aerosol-Chemistry-Cloud Interactions in West Africa) répond à cette attente en Afrique de l'Ouest. En effet, cette partie de l'Afrique connaît une croissance démographique et une urbanisation rapide, entraînant une augmentation des émissions anthropiques et une dégradation de la qualité de l'air. Dans le chapitre 4, des études sont menées plus spécifiquement sur des émissions de feux de biomasse mais aussi sur des émissions par les plateformes pétrolières (Brocchi et al., en préparation), moins étudiées qu'au Nigéria mais néanmoins présentes et proches des côtes guinéennes. Le projet SHIVA (Stratospheric ozone : Halogen Impacts in a Varying Atmosphere) concernait le transport des espèces à très courte durée de vie de la couche limite marine jusqu'à la stratosphère au niveau de la mer de Chine du sud. Dans le chapitre 4, nous tirons profit des mesures effectuées lors de cette campagne européenne. Ainsi, dans cette région émergente, une étude a pu être menée sur une thématique commune à l'Afrique de l'Ouest, les émissions par les feux de biomasse. Des simulations ont aussi été effectuées afin d'étudier les émissions par le trafic maritime, dense dans cette partie du monde.

Enfin, la dernière partie de cette thèse constitue un résumé des résultats obtenus et permet de discuter des perspectives que ces résultats suggèrent.

*
*
*

Généralités sur la chimie et la dynamique troposphérique

La composition de l'atmosphère n'est pas homogène et varie en fonction de la position géographique et du temps. Elle résulte des interactions et échanges de matière entre les différents compartiments environnementaux. Différents processus tels que les émissions, le transport dynamique et la chimie modifient aussi sa composition. Au cours des 150 dernières années, l'apport des émissions anthropiques a contribué à l'augmentation considérable de la concentration de divers gaz traces atmosphériques. Cette augmentation affecte également des variables physiques telles que les propriétés radiatives, l'albédo ou encore les vents. La perturbation par l'Homme de cette dynamique complexe naturelle est à l'origine de la dégradation de la qualité de l'air et du réchauffement climatique au niveau mondial.

Ce chapitre présente les éléments essentiels nécessaires à la compréhension de notre étude, allant de la présentation de la structure verticale de l'atmosphère à l'étude des corrélations entre traceurs, en passant par la chimie et le transport des espèces dans la troposphère.

1.1 Structure verticale de l'atmosphère terrestre

L'atmosphère est une fine couche de gaz servant à filtrer le rayonnement UV du Soleil. Son composant principal est l'azote, présent à environ 78%, viennent ensuite 21% d'oxygène puis 1% d'argon. Enfin, on y retrouve différents gaz à l'état de trace dont les gaz à effet de serre. Dans sa coupe verticale, l'atmosphère est constituée de différentes couches que l'on peut décrire selon plusieurs paramètres physico-chimiques (pression, température, composition chimique). Nous choisissons ici de regarder l'évolution de la température en fonction de l'altitude pour délimiter les régions atmosphériques (figure 1.1). En partant de l'altitude la plus élevée pour aller au niveau le plus bas, on distingue quatre couches : la thermosphère, la mésosphère, la stratosphère et la troposphère. C'est dans la troposphère que se trouve la quasi-totalité de la masse atmosphérique, soit environ 80 à 90%. Elle est marquée par une diminution en température à un taux moyen de $6,5^{\circ}\text{C}/\text{km}$.

Chaque transition étroite entre deux couches, respectivement la mésopause, la stratopause et la tropopause est marquée par une inversion du gradient de température. La tropopause thermique a été définie par le [WMO \(1957\)](#) comme le niveau le plus bas pour lequel le gradient de température par rapport à l'altitude est supérieur à -2K.km^{-1} . Du fait de l'inversion de ce gradient thermique, la tropopause agit comme une barrière et freine les échanges entre la troposphère et la stratosphère. Selon le phénomène étudié, il est possible de définir une tropopause dynamique, chimique ou du point froid. L'altitude de la tropopause varie selon les saisons (plus faible en hiver qu'en été) et la latitude (8 km en moyenne aux pôles et 17 km à l'équateur). Seule la troposphère sera étudiée dans cette thèse. C'est pour cette raison que les sections suivantes veillent à décrire la chimie et la dynamique propres à cette couche.

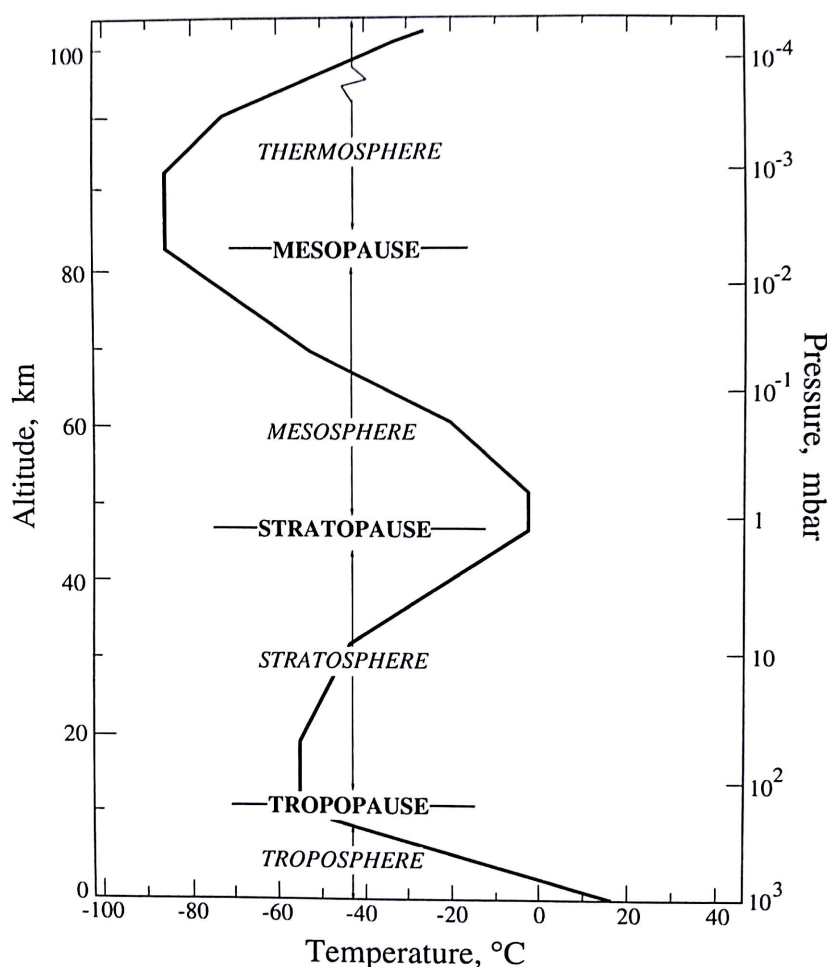


Figure 1.1 — Structure verticale de l'atmosphère représentée en fonction de l'évolution de la température selon une échelle en altitude et en pression (d'après [Seinfeld and Pandis, 2006](#)).

1.2 Chimie troposphérique

La dynamique atmosphérique joue un rôle dans la dispersion des polluants. L'étude des rapports de mélange des différents gaz présents dans l'atmosphère nécessite donc de comprendre les phénomènes mis en jeu. Ils seront expliqués dans la partie 1.3. Que les polluants soient d'origine naturelle ou anthropique, la distribution spatiale et temporelle des gaz est aussi contrôlée par d'autres processus comme les interactions chimiques (photochimie, réactions etc.), physiques (dépôt sec ou humide, transport, dispersion, ...) mais aussi biologiques (fermentation, photosynthèse, ...) et géologiques (volcanisme, tectonique, ...). Cette partie consiste à présenter les différents gaz à effet de serre et polluants sur lesquels on se focalisera par la suite, en commençant par expliquer les interactions chimiques.

1.2.1 Les processus d'oxydation par le radical OH

La chimie troposphérique est gouvernée par la capacité oxydante de l'atmosphère. La troposphère est un milieu oxydant, essentiellement du fait de la présence du radical hydroxyle (OH), principal oxydant de jour. D'autres oxydants sont présents dans la troposphère, tels l'ozone qui est un oxydant de jour comme de nuit ou le radical nitrate (NO_3) qui est un oxydant présent la nuit uniquement. Ce pouvoir oxydant contrôle la composition chimique atmosphérique de par sa capacité à éliminer, suite à des réactions chimiques, des espèces gazeuses. La présence du radical libre OH est responsable de l'oxydation d'un grand nombre de gaz traces et notamment du monoxyde de carbone (CO), des composés organiques volatils (COV) ou encore des oxydes d'azote (NO_x).

L'ozone (O_3) est le précurseur photochimique du radical OH. OH fait partie de la famille des radicaux HO_x avec le radical hydroperoxy (HO_2), et les radicaux peroxy organiques (RO_2) au sens large. Ces radicaux très réactifs ont une durée de vie de l'ordre de la seconde. Ils participent aux réactions de transformation de NO en NO_2 et donc à la production d' O_3 (voir réactions 1.3, 1.4 et 1.5). La photolyse de l' O_3 produisant OH est possible pour des longueurs d'onde $\lambda < 310$ nm suivant les réactions 1.1 et 1.2 suivantes (où * représente l'état électronique excité de la molécule) :



Le dioxyde d'azote (NO_2) appartient à la famille des oxydes d'azote (NO_x). Du fait de sa structure radicalaire, cette molécule est très réactive et joue un rôle prépondérant dans la chimie de l'ozone troposphérique ainsi que dans les processus d'oxydation de CO et CH_4 . Ses sources principales sont de nature anthropique : activités industrielles et trafic routier. Il

est aussi produit lors de la combustion de biomasse, par l'activité biologique des sols et par les éclairs. Sa durée de vie très courte (de l'ordre de quelques heures à 1 journée) rend sa distribution spatiale hétérogène et sa concentration maximale près des sources d'émission, soit dans la couche limite jusqu'à 1-2 km (Boersma et al., 2009). On retrouve donc des sources de NO_2 principalement dans les régions de forte densité urbaine, avec d'importantes industries mais aussi au niveau des centres urbains où le trafic routier est dense. De plus, il possède un cycle saisonnier (Boersma et al., 2009). L'utilisation plus intense des centrales électriques en hiver est en partie à l'origine des concentrations plus élevées de NO_2 , comparé à l'été. Aussi, le temps de vie de NO_2 dépend de réactions photochimiques. Le rayonnement solaire étant moins intense en hiver, NO_2 est éliminé plus lentement de l'atmosphère. NO_2 n'a pas d'effet direct sur le forçage radiatif. Son effet sur le climat est indirect, lié au fait qu'il soit un précurseur de l'ozone troposphérique.

O_3 , essentiel à la vie dans la stratosphère de par son rôle de filtre des UV (couche d'ozone), est nocif pour la santé et les cultures végétales dans la troposphère. Il s'agit d'un polluant secondaire, formé par photochimie dans l'atmosphère. Sa concentration en atmosphère non polluée (faibles concentrations en NO_x et COV) est déterminée par la photolyse de NO_2 ($\lambda < 400$ nm) suivant les réactions 1.3, 1.4 et 1.5 :



où M représente une tierce molécule photochimiquement stable, typiquement N_2 ou O_2 . La concentration d' O_3 dépend uniquement du rapport entre NO_2 et NO :

$$[\text{O}_3] = \frac{J_3[\text{NO}_2]}{k_5[\text{NO}]} \quad (1.6)$$

où J_3 (en s^{-1}) est la constante de vitesse de photolyse de NO_2 et k_5 (en $\text{cm}^3 \text{ molécule}^{-1} \text{ s}^{-1}$) est la constante de vitesse de la réaction 1.5.

Ce cycle de production d' O_3 en atmosphère propre est appelé cycle de Leighton. L'équilibre photo-stationnaire n'est plus maintenu lorsque la réaction 1.5 domine la réaction 1.3. La photolyse de NO_2 peut ainsi participer à la destruction d' O_3 puisque celui-ci est alors détruit par titration par NO (réaction 1.5). O_3 est aussi éliminé lorsqu'il réagit avec des surfaces telles que les plantes ou les sols. En outre, O_3 est un gaz à effet de serre donc ayant un impact sur le forçage radiatif (Carpenter et al., 2014). Il possède un temps de vie de quelques semaines, rendant sa distribution globale variable et dépendante des saisons, de l'altitude et de la localisation géographique (Hartmann et al., 2013). Enfin, c'est un traceur adapté pour étudier les

échanges troposphère-stratosphère. En atmosphère dite polluée, l’ozone troposphérique est produit à partir de l’oxydation de CO et des COV par le radical OH en présence d’oxydes d’azote (voir ci-après). Par exemple, la combustion de combustibles fossiles est une source de polluants gazeux qui mène à la production de l’O₃ troposphérique.

CO est émis naturellement par les feux de biomasse. De façon anthropique, il est émis par la combustion incomplète de la matière organique et des combustibles fossiles et par des procédés industriels. La plupart des sources de CO se situent dans l’hémisphère nord rendant sa distribution spatiale inhomogène par rapport à l’hémisphère sud. Son temps de vie de quelques mois est suffisant pour qu’il soit un bon traceur de transport et de pollution, notamment de combustion, et pour qu’il soit détruit préférentiellement dans la troposphère libre plutôt que dans la couche limite (Jiang et al., 2015). Il est principalement détruit lors de sa réaction avec le principal oxydant de la troposphère, le radical hydroxyle OH, selon les réactions 1.7 et 1.8 suivantes qui génèrent le radical hydroperoxy (HO₂) :



Après la vapeur d’eau et le dioxyde de carbone, le méthane (CH₄) est le troisième plus important gaz à effet de serre. Il est essentiellement émis dans la troposphère. Il peut être produit en grande quantité de façon naturelle par les océans et les milieux humides, mais aussi suite à la décomposition bactérienne de la matière organique et à la combustion de biomasse. Ses sources anthropiques sont principalement l’élevage, l’agriculture, ainsi que les combustibles fossiles. Sa destruction se fait essentiellement par oxydation dans l’air par le radical OH mais il peut aussi être déposé au sol. De par sa longue durée de vie, d’environ 10 ans, le méthane possède un rapport de mélange (vmr, pour « volume mixing ratio » en anglais) qui varie peu avec l’altitude. En présence d’oxydes d’azote, il est un précurseur pour la formation d’ozone troposphérique.

Nous allons maintenant détailler le processus d’oxydation de CO et CH₄ par le radical OH dans deux cas : celui de la troposphère non polluée et celui de la troposphère polluée où nous verrons que l’apport des émissions anthropiques influe sur la chimie troposphérique et plus particulièrement sur la concentration d’O₃. Dans le cas d’une atmosphère non polluée ([NO_x] < 40 pptv), l’oxydation de CO mène à la destruction d’O₃ en chaîne suivant les réactions 1.7, 1.8 ci-dessus et 1.9 puisque OH est régénéré :



De même, l'oxydation de CH_4 par le radical OH mène à la destruction d' O_3 en chaîne, schématisée dans la figure 1.2. On distingue alors deux cycles pour ce cas-là. L'initialisation du cycle principal, représenté en bleu, débute par la réaction de CH_4 avec OH . Cette réaction produit le radical méthylperoxy (CH_3O_2) qui réagit avec le radical HO_2 pour former CH_3OOH . Celui-ci se décompose en radicaux OH et méthoxy (CH_3O), qui lui-même régénère HO_2 et par suite OH , suite à la réaction 1.9 ci-dessus (cycle rouge). Dans le cas d'une atmosphère non polluée, on estime qu'environ 70% de OH réagit avec CO tandis que les 30% restants de OH réagissent avec CH_4 (Wayne, 2000).

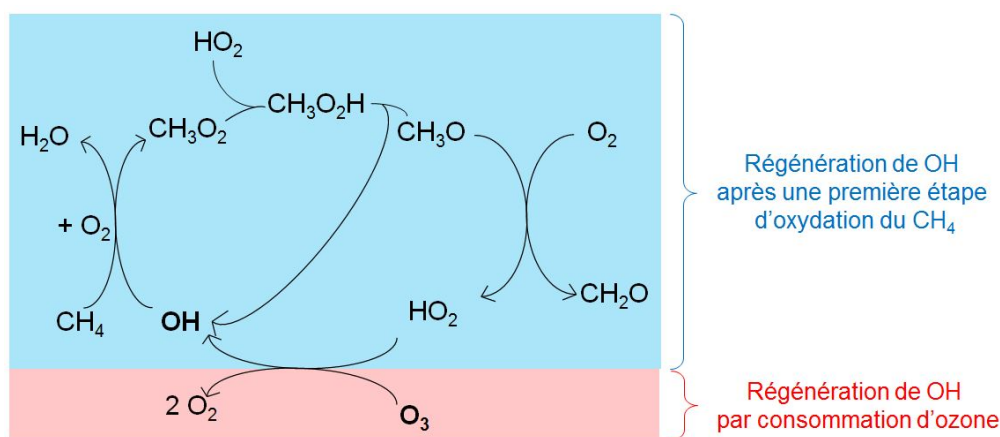
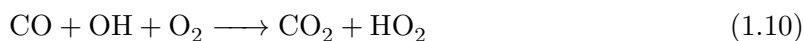


Figure 1.2 — Synthèse du mécanisme d'oxydation photochimique du CH_4 en troposphère non polluée.

Lorsque l'on considère le cas de la troposphère polluée par les émissions anthropiques ($[\text{NO}_x] > 40$ pptv), il est nécessaire de prendre en compte la présence de forts rapports de mélange en NO_x provenant essentiellement de la combustion. Nous avons vu précédemment que l'oxydation du CO conduisait à la réaction 1.10 :



En présence de concentrations significatives de NO , le radical HO_2 réagit préférentiellement avec NO pour former NO_2 (réaction 1.11), plutôt qu'avec l'ozone (réaction 1.9) :



La terminaison de chaîne pour le radical hydroperoxyde est une réaction avec lui-même formant du peroxyde d'hydrogène H_2O_2 tandis que le NO_2 formé va réagir photochimiquement pour former de l' O_3 (voir réactions 1.3 et 1.4).

Pour CH_4 , en présence de NO_x , on distingue trois cycles (figure 1.3). Pour le premier cycle bleu, le CH_4 va réagir avec OH pour former le radical CH_3O_2 . Ce dernier va réagir préférentiellement et rapidement avec NO conduisant à la production de NO_2 et du radical CH_3O . La boucle se referme de nouveau par la régénération de OH après une étape d'oxydation du CH_4 . En parallèle (cycles rouges), le NO présent dans la troposphère va réagir avec les radicaux HO_2 et CH_3O_2 pour former dans les deux cas du NO_2 . NO_2 est ensuite photolysé générant de nouveau NO et formant O_3 .

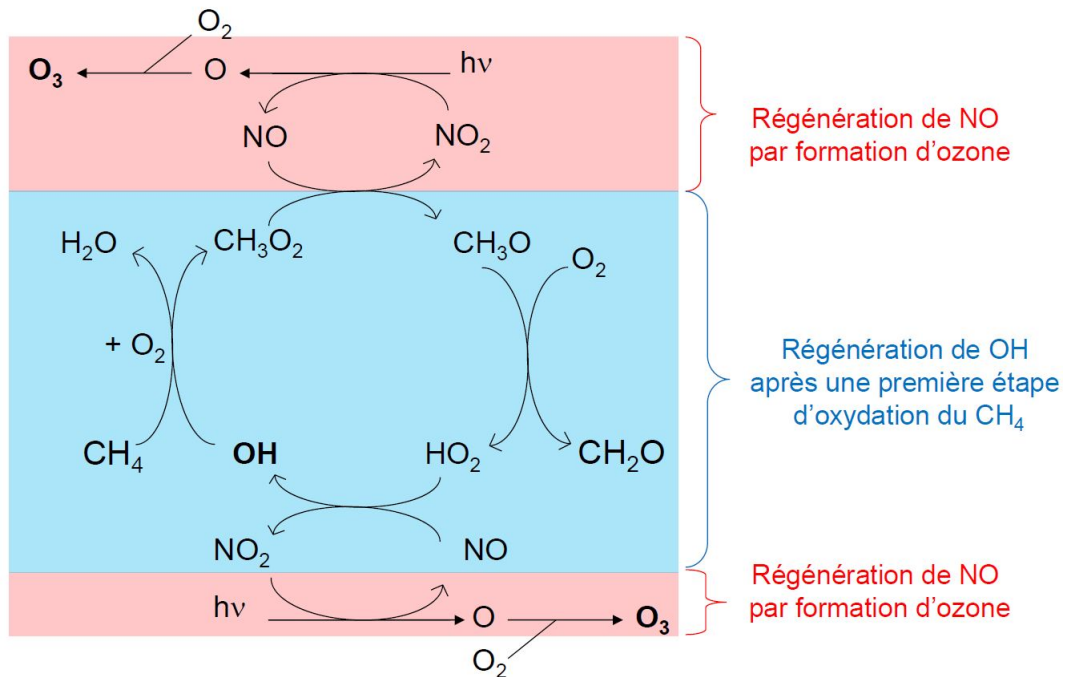


Figure 1.3 — Synthèse du mécanisme d'oxydation photochimique du CH_4 en troposphère polluée.

En résumé, la chimie troposphérique est dominée par la chimie de CO, de CH_4 et des COV (composés organiques volatils). En atmosphère « propre », l'oxydation de CO et CH_4 entraîne la destruction d' O_3 en chaîne du fait de la présence du radical hydroxyle. Lorsque les concentrations de NO_x sont suffisamment importantes, les radicaux créés lors des réactions d'oxydation de CO et CH_4 vont réagir préférentiellement avec NO. Au lieu de détruire O_3 , HO_2 et NO conduisent à sa production nette. Les émissions anthropiques influencent la composition des COV de l'atmosphère et rendent la chimie plus complexe. Les COV sont composés de carbone et d'hydrogène principalement, et d'autres atomes, notamment l'oxygène. Ils possèdent à la fois des sources primaires naturelles et anthropiques. Ils participent à la formation des radicaux RO_2 . De ce fait, on retrouve les mêmes éléments de base que lors des réactions avec CO et CH_4 seules, à savoir, réactions initiées par le radical OH et formation d' O_3 via les réactions avec NO.

La formation d'ozone est un phénomène non linéaire. Il existe un équilibre entre O_3 , les

NO_x et les COV lors des réactions de pollution photochimique. Il est possible de mettre en évidence des régimes chimiques pour savoir qui des NO_x ou des COV « contrôlent » les concentrations d' O_3 . La visualisation de ces régimes se fait par les diagrammes isoplèthes. Ces diagrammes sont construits par le biais de la modélisation. Pour des teneurs en COV et NO_x propres à chaque milieu, le modèle calcule les valeurs journalières maximales d' O_3 . Un exemple en est donné en figure 1.4 où les concentrations d' O_3 sont représentées en fonction des concentrations de NO_x et COV par niveau d'iso-concentration.

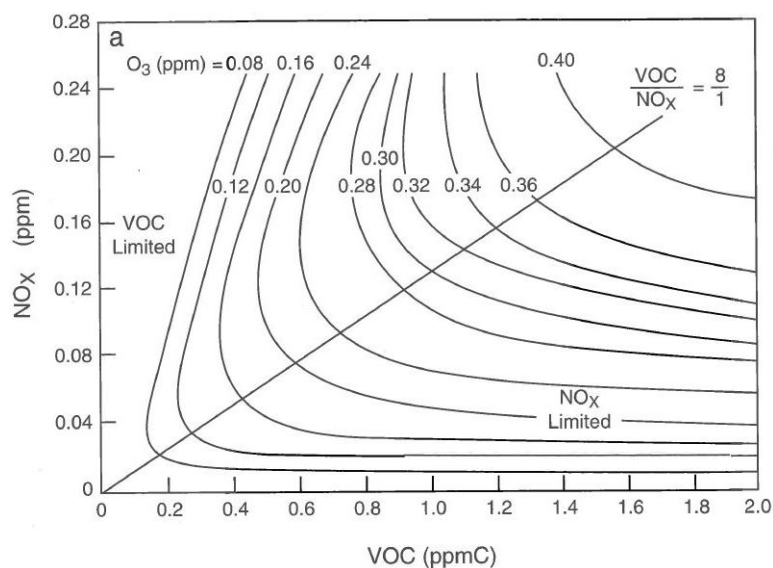


Figure 1.4 — Diagramme isoplèthe des niveaux d' O_3 (ppm) en fonction des quantités de NO_x (ppm) et de COV (ppmC) généré par le modèle EKMA. Le régime limité en NO_x est typique des régions rurales tandis que le régime limité en COV est représentatif des milieux urbains fortement pollués (Finlayson-Pitts and Pitts Jr., 2000).

Dans ce diagramme, trois régimes chimiques sont représentés :

- Régime limité en NO_x : dans ce cas, le rapport $\text{COV}/\text{NO}_x > 8$. Sur le diagramme, les concentrations d' O_3 augmentent quasi linéairement avec celles des NO_x . Pour ce régime (en bas à droite du diagramme), les concentrations de NO_x sont donc faibles (plutôt caractéristiques d'un milieu rural par exemple) mais le milieu est riche en COV. À COV constant et d'après les réactions 1.3 et 1.4, si la concentration de NO_2 augmente alors la quantité d' O_3 produite augmente aussi (plus de photolyse du NO_2).
- Régime limité en COV (ou saturé en NO_x) : rapport $\text{COV}/\text{NO}_x < 8$. Régime pour lequel le milieu est riche en NO_x et pauvre en COV (milieu urbain; en haut à gauche du diagramme). Dans ce cas, pour une augmentation des concentrations de COV, on observe une augmentation des concentrations d' O_3 pour des concentrations de NO_x constantes.

- Régime standard : dans ce dernier cas, la production d'O₃ est dépendante des concentrations des NO_x et des COV (zone centrale du diagramme). Lorsque les concentrations de NO_x et/ou de COV diminuent, les concentrations d'O₃ diminuent aussi.

La production d'O₃ est donc dépendante des teneurs en COV et NO_x. L'utilisation des diagrammes isoplèthes est un bon outil théorique pour définir des stratégies dans le but de réduire les quantités d'O₃. Il convient alors de réduire les émissions soit de NO_x soit de COV ou des deux selon le régime dans lequel on se trouve.

1.2.2 Le dioxyde de soufre

Le dioxyde de soufre SO₂ réagit dans la troposphère par des processus en phase aqueuse et gazeuse. Il possède une forte capacité à réagir avec l'oxygène de l'air et a donc un faible temps de vie de l'ordre de 7 jours ([Seinfeld and Pandis, 2006](#)). Dans sa phase gazeuse, il est éliminé de la troposphère suite à son oxydation produisant de l'acide sulfurique qui forme des noyaux de condensation pour les aérosols et les nuages, créant ainsi les pluies acides. Il peut aussi être éliminé sous forme de retombées sèches ou humides. On peut citer comme sources d'émission anthropiques la combustion des combustibles fossiles, les raffineries, les véhicules à moteur diesel ou encore le transport maritime et fluvial. La combustion des combustibles fossiles représente la plus grosse part des émissions de SO₂, ces émissions venant majoritairement de l'hémisphère nord ([SPARC, 2006](#)). Il est aussi émis de façon naturelle par le volcanisme ainsi que par les feux de biomasse. Des modifications de la concentration en SO₂ impactent à la fois la chimie atmosphérique et le bilan radiatif et ont donc un impact sur le climat.

1.2.3 Les aérosols

Les aérosols proviennent aussi bien d'émissions naturelles (poussières désertiques, volcaniques, embruns marins, feux de biomasse) que d'émissions anthropiques (industries, combustibles fossiles). On distingue les aérosols primaires, c'est-à-dire que les particules sont émises directement dans l'atmosphère, des aérosols secondaires qui sont formés dans l'atmosphère par des processus de conversion du gaz en particule. Différents processus peuvent induire des modifications en taille et en composition des aérosols comme la coagulation avec d'autres aérosols, des réactions chimiques ou des processus de condensation et évaporation. Il existe deux façons aux aérosols pour être éliminés de l'atmosphère : le dépôt sec et le dépôt humide. Le temps de résidence des aérosols dans la troposphère varie de quelques jours à quelques semaines ([Seinfeld and Pandis, 2006](#)). Au niveau climatique, ils jouent un rôle important dans le forçage radiatif et donc dans l'équilibre radiatif de la Terre. En effet, ils peuvent absorber et disperser les radiations solaires et terrestres en fonction de leurs propriétés chimiques et physiques mais aussi modifier les propriétés optiques des nuages en devenant des noyaux de

condensation. Les feux génèrent de grandes quantités d'aérosols dont le carbone-suie (souvent abrégé en BC pour black carbon en anglais) qui contribue au réchauffement climatique en absorbant la lumière du Soleil. Cependant, l'incertitude sur le forçage radiatif direct dû au BC reste large (Wang et al., 2016) alors que ce sont les aérosols carbonés absorbant la lumière les plus abondants dans l'atmosphère (Seinfeld and Pandis, 2006).

1.2.4 La vapeur d'eau

La troposphère renferme la quasi-totalité de la vapeur d'eau de l'atmosphère. Plus l'altitude augmente, plus sa concentration diminue du fait que la quantité de vapeur d'eau contenue dans l'atmosphère est contrôlée principalement par la température de l'air. Son temps de résidence moyen dans la troposphère est de 10 jours (Hartmann et al., 2013). La vapeur d'eau, en absorbant le rayonnement infrarouge, est le premier gaz à effet de serre de l'atmosphère terrestre. Elle est présente de façon naturelle via le cycle de l'eau et peut aussi être rejetée par des activités anthropiques. Cependant, ces émissions liées à l'activité humaine sont négligeables devant l'évaporation naturelle. C'est en cela que la vapeur d'eau n'est pas considérée comme un gaz anthropique contribuant au forçage radiatif. La réponse de la vapeur d'eau quant au réchauffement climatique est correctement comprise et quantifiée et présente dans les modèles de prévision du changement climatique (Hartmann et al., 2013). La quantité maximale de vapeur d'eau dans l'air est contrôlée par la température. Ainsi, l'augmentation de vapeur d'eau atmosphérique observée de nos jours est essentiellement due à l'augmentation de la température de l'atmosphère et pas ou peu au forçage radiatif des émissions anthropiques, notamment de CH_4 .

1.3 Transport des espèces dans la troposphère

1.3.1 Circulation générale

De par son gradient de température négatif, la troposphère est une couche instable, lieu des phénomènes météorologiques. Le transport vertical s'effectue principalement par convection thermique. Du fait de la sphéricité de la Terre et donc de l'inclinaison des rayons solaires par rapport au sol, la circulation méridienne de la troposphère est due à un excès d'énergie reçue à l'équateur et un déficit au niveau des pôles, représenté sur la figure 1.5.

Pour rétablir un équilibre, l'importante quantité d'énergie reçue près de l'équateur doit être transportée vers les pôles. La circulation générale atmosphérique assure donc les transferts (verticaux et méridiens) d'énergie entre les basses latitudes au bilan radiatif excédentaire et les hautes latitudes au bilan radiatif déficitaire. De ce fait, l'ascendance des masses d'air déclenchée par la convection induit des zones de basses pressions tandis que leur subsidence crée des zones de hautes pressions. Se mettent alors en place des cellules convectives au niveau de la troposphère, symétriques par rapport à l'équateur : les cellules de Hadley allant

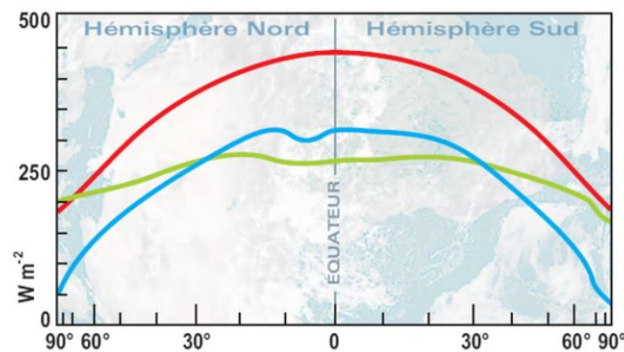


Figure 1.5 — Bilan radiatif global du système Terre-atmosphère en fonction de la latitude. En rouge est représenté le rayonnement solaire moyen au sommet de l'atmosphère, en vert, le rayonnement moyen émis vers l'espace et en bleu, le rayonnement absorbé par le système Terre-atmosphère (source : <http://education.meteofrance.fr/dossiers-thematiques/>, d'après Gill, 1982).

de l'équateur jusqu'à environ $\pm 30^\circ\text{N}$, auxquelles succèdent les cellules de Ferrel s'étendant jusqu'à $\pm 60^\circ\text{N}$ puis les cellules polaires allant jusqu'aux pôles (figure 1.6).

En 1735, George Hadley a imaginé un mode simple de circulation fermée. Mais il faudra attendre Gaspard-Gustave de Coriolis en 1835 pour mieux comprendre cette circulation, prenant en compte la vitesse de rotation de la Terre et donc la déviation des masses d'air vers l'ouest. Ainsi, aux latitudes intertropicales, l'air chaud se dilate et s'élève jusqu'à la tropopause. Puis, il migre vers les pôles où, devenu plus froid et plus dense, il redescend vers les latitudes 30° . De plus, la présence de forts vents d'altitude venant d'ouest, le courant jet (jet stream) subtropical (ou jet d'ouest subtropical, JOST), force la cellule de Hadley à s'interrompre vers 30° . Enfin, pour compléter le cycle et fermer la cellule de Hadley, l'air retourne vers l'équateur créant les alizés, vents du nord-est dans l'hémisphère nord et du sud-est dans l'hémisphère sud. Ces vents convergent vers une zone de convergence intertropicale (ZCIT).

La cellule polaire, tout comme la cellule de Hadley, est dite directe, c'est-à-dire que l'air chaud doit monter et se déplacer et l'air froid descendre afin de minimiser les écarts de température. Ainsi, l'air froid des pôles est transporté vers les régions plus au sud par l'intermédiaire de vent du nord-est. Enfin, aux moyennes latitudes, se trouve la cellule indirecte de Ferrel. Dans cette région, l'air froid apporté par la cellule polaire va rencontrer l'air chaud apporté par la cellule de Hadley et va s'élever par forçage, aidé aussi du courant-jet. Ainsi, cette cellule permet le transfert de l'air d'origine polaire vers l'équateur et de l'air d'origine tropicale vers les pôles. La jonction entre la cellule de Ferrel et la cellule polaire est assurée par le jet stream polaire. Les courants jets sont caractérisés par des vitesses de vent dépassant généralement les 30 m.s^{-1} et localisés au-dessus de zones pour lesquelles il existe un fort gradient de température. Les courants jet sont situés au plus haut de la troposphère, typiquement entre 9 et 18 km d'altitude. Des deux jets mentionnés, le jet polaire est le plus intense.

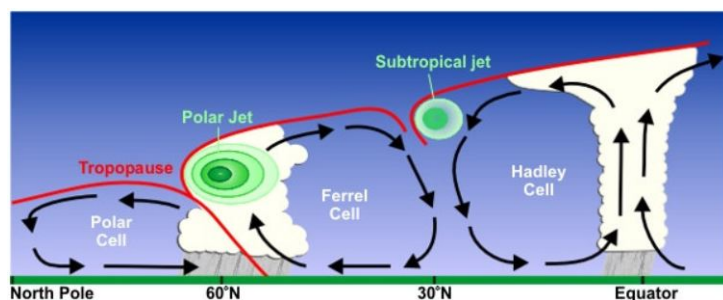


Figure 1.6 — Circulation générale sur une coupe de l'hémisphère nord montrant les cellules convectives, les courants jets et la hauteur de la tropopause (source : <http://www.srh.noaa.gov/jetstream/>).

La ZCIT, située le long de l'équateur, est considérée comme l'équateur météorologique puisqu'elle présente une oscillation saisonnière. Elle est constituée d'amas de nuages à forte extension verticale (cumulus et cumulonimbus) due à d'importants mouvements ascendants des masses d'air et est caractérisée par de fortes précipitations. Au niveau de la ZCIT, la circulation zonale suit les cellules de Walker, perpendiculairement à la circulation de la cellule de Hadley. On distingue trois zones majeures de convection sur des continents : l'Afrique, l'Indonésie et l'Amérique Centrale.

Parler de la circulation générale atmosphérique nécessite donc de tenir compte de la convection par les cellules de Hadley mais aussi des cellules de Walker au niveau des continents. Ainsi, les mouvements des masses d'air assurent une distribution zonale et méridienne des polluants permettant leur transport à longue distance et leur dispersion vers les plus hautes couches de l'atmosphère. Il est possible d'étudier plus finement la troposphère en regardant les caractéristiques de ses trois sous-couches : la couche limite, la troposphère libre et l'UTLS (Upper Troposphere Lower Stratosphere).

1.3.2 La couche limite atmosphérique

La CLA (ou PBL pour Planetary Boundary Layer en anglais) est représentative de l'influence de la surface sur les masses d'air. Elle s'étend de 0 à 0,5-2 km d'altitude environ, est en contact direct avec le sol et réagit rapidement au contact de ce dernier (constante de temps de l'ordre de la journée). C'est un milieu complexe dans lequel se mêlent les effets de relief, la turbulence ou encore les propriétés radiatives du sol. En effet, les échanges de chaleur entre la surface et l'atmosphère engendrent des turbulences thermiques. On observe donc un cycle diurne de la CLA. En journée, le rayonnement solaire chauffe le sol, activant les mouvements convectifs verticaux. La CLA et la troposphère libre se mélangent alors, entraînant un brassage des polluants. Cette convection assure les échanges verticaux des espèces chimiques à des altitudes plus élevées. Pendant la nuit, une inversion de température se produit du fait que le sol se refroidisse plus vite que l'air. Le transport vertical des espèces est bloqué. Les polluants ont donc tendance à s'accumuler dans cette couche stable. De plus, la présence

de bâtiments, l'orographie et la rugosité des sols entraînent des turbulences mécaniques. La couche limite est donc fortement affectée par les phénomènes de surface. Il s'agit de la couche dans laquelle sont émis directement les gaz liés à l'activité humaine.

La dispersion des polluants est fonction de l'état de stabilité de l'atmosphère. Cette stabilité dépend d'un équilibre dynamique entre la température de l'air et la température de l'atmosphère environnante. On sait que la température de l'air diminue avec l'altitude selon un gradient thermique adiabatique (Γ_d) d'environ $-9,8^\circ\text{C}/\text{km}$ pour l'air sec et de $-6^\circ\text{C}/\text{km}$ pour l'air humide (Γ_w). Ainsi, lorsque le gradient thermique d'une parcelle d'air est supérieur au gradient adiabatique, on parle d'atmosphère stable. À l'inverse, si le gradient thermique de la parcelle est inférieur au gradient adiabatique, alors l'atmosphère est instable (figure 1.7). Dans des conditions de stabilité, une particule d'air se trouve freinée dans son ascension alors qu'elle est accélérée si les conditions atmosphériques sont instables. Il existe aussi une condition où l'air est considéré comme neutre (particule à la même température que l'air ambiant).

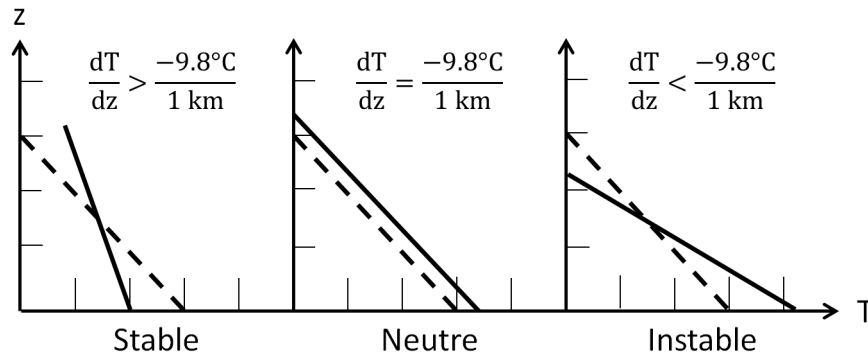


Figure 1.7 — Critère de stabilité pour une atmosphère stable, neutre et instable avec le gradient adiabatique sec. Le trait plein représente le gradient thermique d'une parcelle d'air. Les traitillés symbolisent le gradient adiabatique sec.

La stabilité de l'air est donc l'un des paramètres à prendre en compte dans l'étude de l'élévation et de la dispersion des panaches de pollution dans la couche limite. La figure 1.8 donne une idée de l'influence de la stabilité atmosphérique sur la dispersion d'un panache.

Le paramètre de stabilité s de l'air est défini d'après l'équation 1.12 (Briggs, 1965) :

$$s = \frac{g}{T} \frac{\partial \theta}{\partial z} = \frac{g}{T} \left(\frac{\partial T}{\partial z} + \Gamma \right) \quad (1.12)$$

avec g l'accélération due à la pesanteur, T la température de l'air ambiant, θ la température potentielle définie comme la température qu'une particule atmosphérique prendrait si on lui faisait subir une transformation adiabatique en la ramenant à une pression de référence de 1000 hPa et z l'altitude. Deux autres effets sont aussi à prendre en compte dans l'élévation de ces panaches (plume rise, PR) : la flottabilité (buoyancy effect, F_b) et l'impulsion du flux d'air (momentum effect, F_m). Dans le premier cas, l'élévation est due à la différence de température entre le panache et l'air ambiant. Dans le deuxième cas, l'élévation est due à la

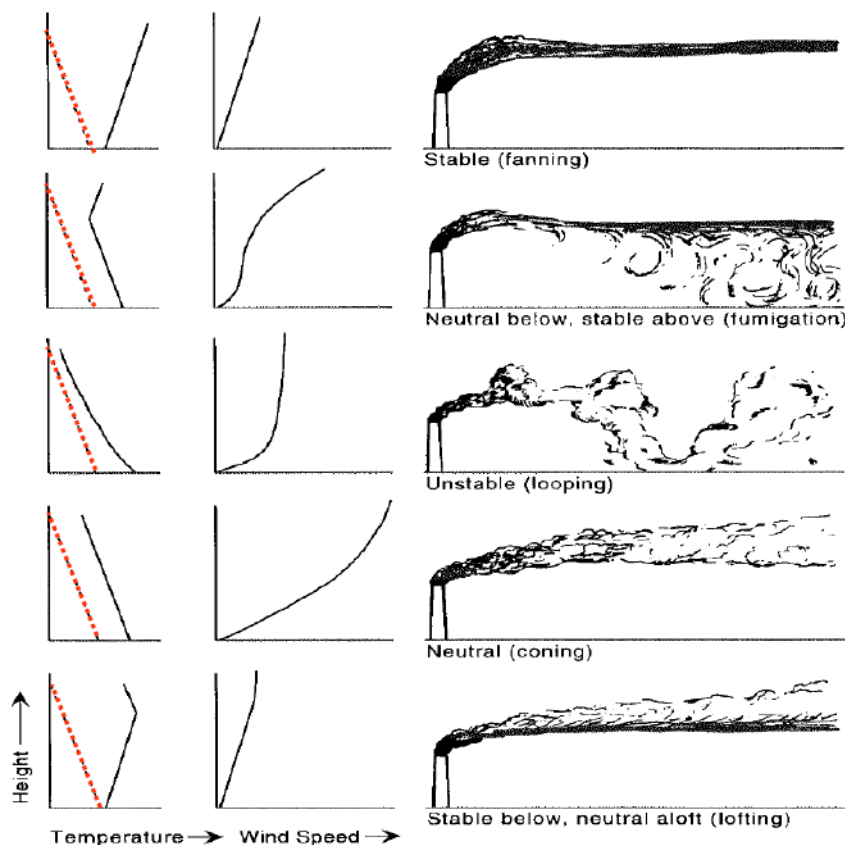


Figure 1.8 — Influence de la stabilité atmosphérique sur la dispersion d'un panache. Les traitillés rouges représentent le gradient adiabatique (adapté de Arya, 1988).

vitesse de sortie des émissions. Ces deux effets se calculent suivant les équations 1.13 et 1.14 (Briggs, 1965) :

$$F_b = g \frac{\Delta T}{T_s} w r^2 \quad (1.13)$$

$$F_m = \frac{M_s}{M} \frac{T}{T_s} r^2 w^2 \quad (1.14)$$

avec M , T , w et r la masse molaire, la température absolue, la vitesse verticale des émissions à la sortie de la cheminée et le rayon de la cheminée, respectivement, et avec F_b en m^4s^{-3} et F_m en m^4s^{-2} . L'indice « s » désigne les émissions issues de la cheminée par opposition à l'air ambiant. Généralement, les polluants injectés ont une température supérieure à celle de l'air ambiant et lorsqu'ils sont émis en sortie de cheminée cela leur confère une vitesse de sortie élevée (Arya, 1999). Ces deux effets combinés font s'élever les panaches bien au-dessus de leur hauteur de sortie initiale. Cependant, cette élévation subit aussi les effets du vent horizontal ($\bar{u}$) qui peut forcer le panache à se courber. Ainsi, le calcul de l'élévation d'un panache est nécessaire pour pouvoir prévoir la dispersion d'émissions

à partir d'une cheminée. Parmi différentes approches, l'analyse dimensionnelle, développée dans Briggs (1965), est utilisée pour des applications de calculs d'élévation de panache. Pour résumer, en ne considérant que les variables les plus pertinentes, l'élévation d'un panache est fonction de : $PR=f(F_b, F_m, \bar{u}, s, t)$ avec t le temps de propagation des émissions le long de la trajectoire du panache. Toutefois, dans l'analyse dimensionnelle, différentes hypothèses (décrites dans Arya, 1999) sont faites pour réduire le nombre de variables en fonction des conditions de stabilité et de vent. Finalement, la figure 1.1 résume les calculs de prévision de l'élévation d'un panache en se basant sur la méthode de l'analyse dimensionnelle.

Stability/Wind conditions	Type of rise/plume	Buoyancy-dominated plume (Briggs, 1965)	Momentum-dominated plume (Arya, 1999)
Unstable and neutral/windy	Transitional/bent over	$z'_c = 2,0 F^{1/3} \bar{u}^{-1} x^{2/3}$	$z'_c = 2,0 (F_m / \bar{u})^{1/3} t^{1/3}$
Stable/windy	Final/bent over	$\Delta H = 4,7 F^{1/4} s^{-3/8}$	$\Delta H = 1,5 (F_m / \bar{u})^{1/3} s^{-1/6}$
Stable/calm	Final/vertical	$\Delta H = 2,6 F^{1/3} / (\bar{u}^{1/3} s^{1/3})$	$\Delta H = 2,4 F_m^{1/4} s^{-1/4}$
Neutral/windy	Final/bent over	$\Delta H > 400 (F / \bar{u}^3)$	$\Delta H = 3,0 F_m^{-1/2} (\bar{u})^{-1}$

Tableau 1.1 — Formules de prévision de l'élévation d'un panache, basées sur l'analyse dimensionnelle, en fonction des conditions de stabilité et de vent (d'après Arya, 1999).

Dans le tableau 1.1, deux types d'élévation sont spécifiés : finale et transitionnelle. La distinction entre ces deux élévations est représentée en figure 1.9.

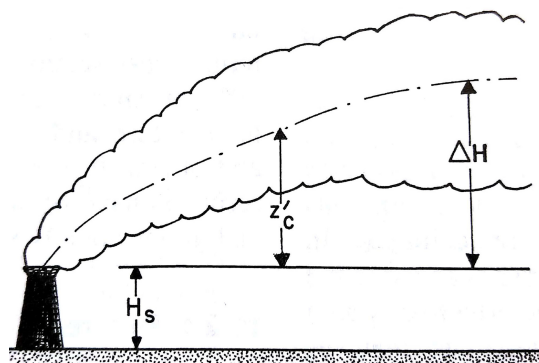


Figure 1.9 — Représentation schématique de l'élévation d'un panache dans la couche limite atmosphérique. H_s représente la hauteur de la cheminée, z'_c la hauteur transitionnelle et ΔH la hauteur finale du panache (adapté de Arya, 1999).

Comme expliqué précédemment, dans des conditions stables, les panaches vont s'élever et

se stabiliser en restant proches de la cheminée rendant possible la détermination de l'élévation finale. Pour des conditions instables, un panache vertical peut s'élever à des altitudes élevées, au point d'initier des cumulus (Briggs, 1965) rendant difficile l'estimation de la hauteur finale. Une hauteur transitionnelle est donc utilisée dans ce cas.

1.3.3 Troposphère libre et UTLS

La couche au-dessus de la CLA, la troposphère libre, se caractérise par des processus dynamiques à l'échelle synoptique permettant un mélange des masses d'air. L'échelle synoptique est l'échelle des phénomènes atmosphériques ayant un ordre de grandeur de quelques milliers de kilomètres sur l'horizontal, quelques kilomètres sur la verticale et une durée de quelques jours. À cette échelle, les mouvements sont commandés par le vent géostrophique entraînant une dispersion des polluants principalement par transport horizontal. L'échelle de temps caractéristique du déplacement horizontal des polluants est représentée en figure 1.10. C'est ce transport qui explique que des gaz à longue durée de vie puissent être déplacés à grande distance des zones d'émission, entre deux continents ou entre deux hémisphères. Dans la direction longitudinale, le transport est plus rapide du fait du flux géostrophique avec des vitesses de vent de l'ordre de 10 m.s^{-1} . Pour une bande de latitude donnée, il ne faut que quelques semaines aux masses d'air pour faire le tour du globe. Les déplacements méridiens sont plus longs avec des vitesses de vent de l'ordre de 1 m.s^{-1} . Il faut donc environ 1 à 2 mois pour que les échanges de masses d'air se fassent entre les latitudes moyennes et les tropiques et les latitudes moyennes et les régions polaires. Le transport est encore plus long entre deux hémisphères, de l'ordre de l'année, du fait des faibles différences de température.

Pour résumer, dans la troposphère, la situation météorologique conditionne fortement le niveau de pollution. La dispersion des polluants émis se fait par :

- le transport horizontal grâce aux champs de vent expliquant le transport à longue distance
- le mélange vertical par des mouvements convectifs expliquant le déplacement des polluants vers la haute troposphère.

Enfin, la HTBS (Haute Troposphère – Basse Stratosphère) ou UTLS (acronyme anglais pour Upper Troposphere – Lower Stratosphere) est la région s'étalant de la haute troposphère à la basse stratosphère (approximativement entre 8 et 20 km pour les latitudes moyennes et entre 13 et 20 km pour les tropiques). Elle joue un rôle important dans le forçage radiatif. Le couplage entre la dynamique et la chimie est contrôlé par des processus qui dépendent, notamment, de la distribution des gaz à effet de serre (surtout l'ozone et la vapeur d'eau). Les échanges stratosphère-troposphère ainsi que le transport par convection des polluants de la couche limite sont à l'origine de la distribution des gaz traces dans l'UTLS.

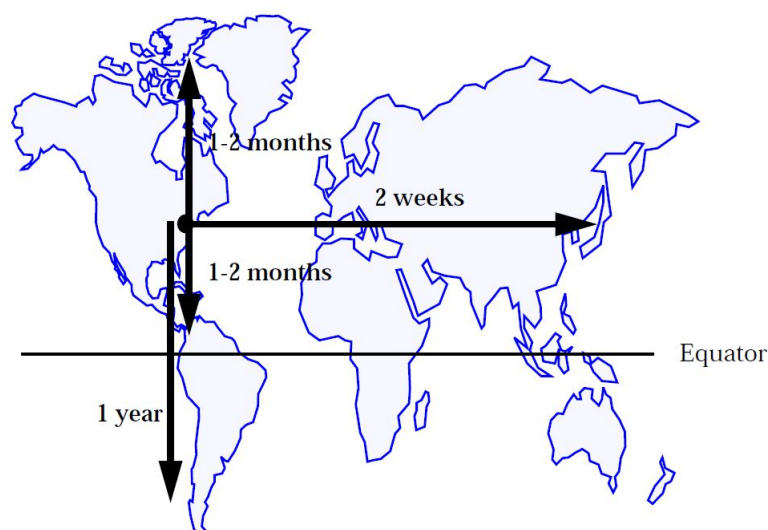


Figure 1.10 — Échelle de temps caractéristique du transport horizontal dans la troposphère (d'après Jacob, 1999).

1.4 Corrélation entre traceurs chimiques

L'étude de la circulation atmosphérique est possible à travers l'observation de traceurs de masse d'air. Un traceur se déplace avec l'air depuis une source connue, d'où le traceur est créé ou émis dans l'atmosphère, jusqu'à un puits où il est complètement éliminé de l'atmosphère (Sheppard, 1963). En suivant le chemin parcouru par le traceur, on peut identifier le chemin suivi par la masse d'air depuis la source jusqu'au puits. Les traceurs peuvent aussi bien se trouver sous forme gazeuse que sous forme particulaire. Nous allons ici considérer des gaz traces atmosphériques comme traceurs chimiques des masses d'air. Le choix d'un traceur dépend de son temps de résidence. Ce temps de résidence nous renseigne sur la durée pendant laquelle cette espèce va rester dans l'atmosphère avant d'être éliminée. Au sein d'un réservoir atmosphérique, la distribution d'une espèce X et son temps de résidence dépendent du bilan entre ses sources, ses puits et le transport (figure 1.11). La production d'une espèce peut se faire via des réactions chimiques (P) ou par des émissions naturelles et/ou anthropiques (E). Les puits peuvent aussi être de nature chimique (L) ou sous forme de dépôts secs ou humides (D). Le dépôt sec désigne le dépôt d'une espèce au niveau de la surface terrestre, sans l'aide de précipitation. Au contraire, le dépôt humide désigne le dépôt d'une espèce au niveau de la surface terrestre sous forme aqueuse (pluie, brouillard, etc). Dans des conditions dites stationnaires, la quantité de l'espèce X est constante dans le temps dans le réservoir. Pour satisfaire cette condition, il faut qu'il y ait un équilibre entre le taux de production de X par les sources et le taux d'élimination de X par les puits.

De plus, nous avons vu précédemment que le transport horizontal et vertical joue un grand rôle dans la distribution des espèces au sein de l'atmosphère. Dans la figure 1.11 et pour un réservoir correspondant à l'atmosphère, le flux entrant (F_e) est égal au flux sortant (F_s). La

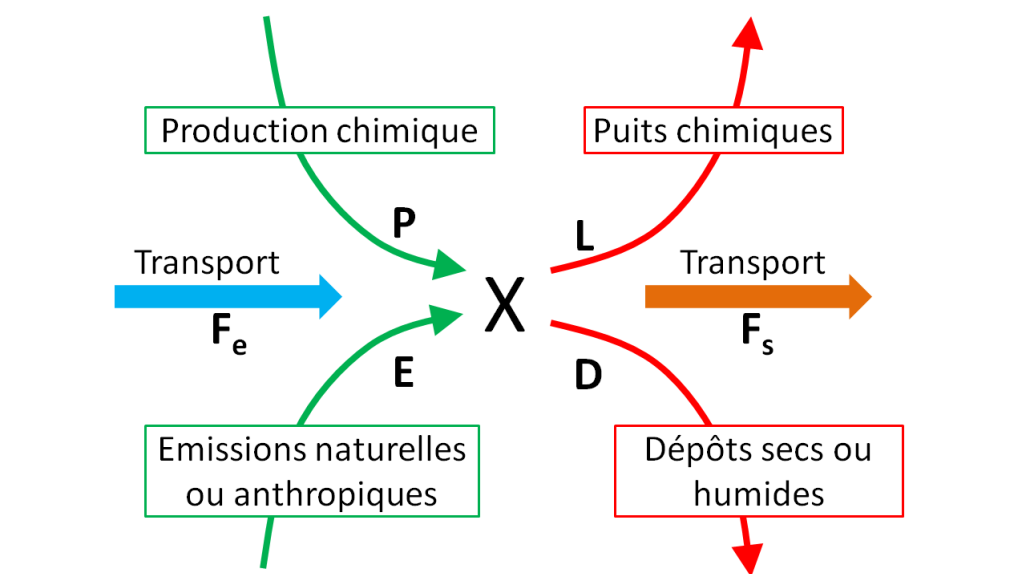


Figure 1.11 — Concept du temps de vie et du mélange d'une espèce X gouverné par les processus physico-chimiques au sein d'un réservoir atmosphérique (d'après [Krysztofiak, 2013](#)).

figure 1.12 synthétise la variabilité du temps de vie de certains constituants atmosphériques en rapport à une échelle spatiale. Les espèces telles que CH_4 possèdent un temps de vie suffisamment long (environ 9 ans) pour que leur concentration soit quasiment uniforme au sein de la troposphère. D'autres espèces, à court temps de vie, sont trop réactives chimiquement pour être transportées sur de longues distances. Le cas le plus extrême étant celui du radical OH (bien moins que la seconde). Enfin, pour des échelles temporelles allant de la journée au mois, on retrouve des espèces comme CO dont la distribution est inhomogène. Sa répartition spatiale est donc proche de ses sources en surface mais son temps de vie de l'ordre de 2 à 3 mois est suffisamment long pour l'étude du transport à longue distance. Il est donc un bon traceur atmosphérique du transport convectif depuis la couche limite vers la troposphère libre. Il est aussi bien un traceur anthropique ([Gamnitzer et al., 2006](#)) qu'un traceur pour des sources de combustion comme les feux de biomasse ([Bergamaschi et al., 2000](#), [Roiger et al., 2014](#)).

L'étude de la corrélation entre traceurs de pollution est un bon outil pour déterminer les sources d'émissions de ces espèces. [Andreae and Merlet \(2001\)](#) ont recensé dans leur étude de nombreuses espèces présentes dans les panaches de fumée de feux de biomasse. La combustion incomplète mène à la production de CO et de composés organiques. Parmi toutes les espèces dans un panache, on retrouve donc des polluants gazeux comme CO mais aussi des NO_x , SO_2 , des COV, des gaz à effet de serre (CH_4 , CO_2) et des particules (BC). Les feux sont aussi générateurs d'une pollution secondaire par production d' O_3 selon la disponibilité en NO_x dans le panache. La production de gaz et de particules par les feux est dépendante du type de biomasse brûlée, de son contenu en humidité, de la température ambiante ou

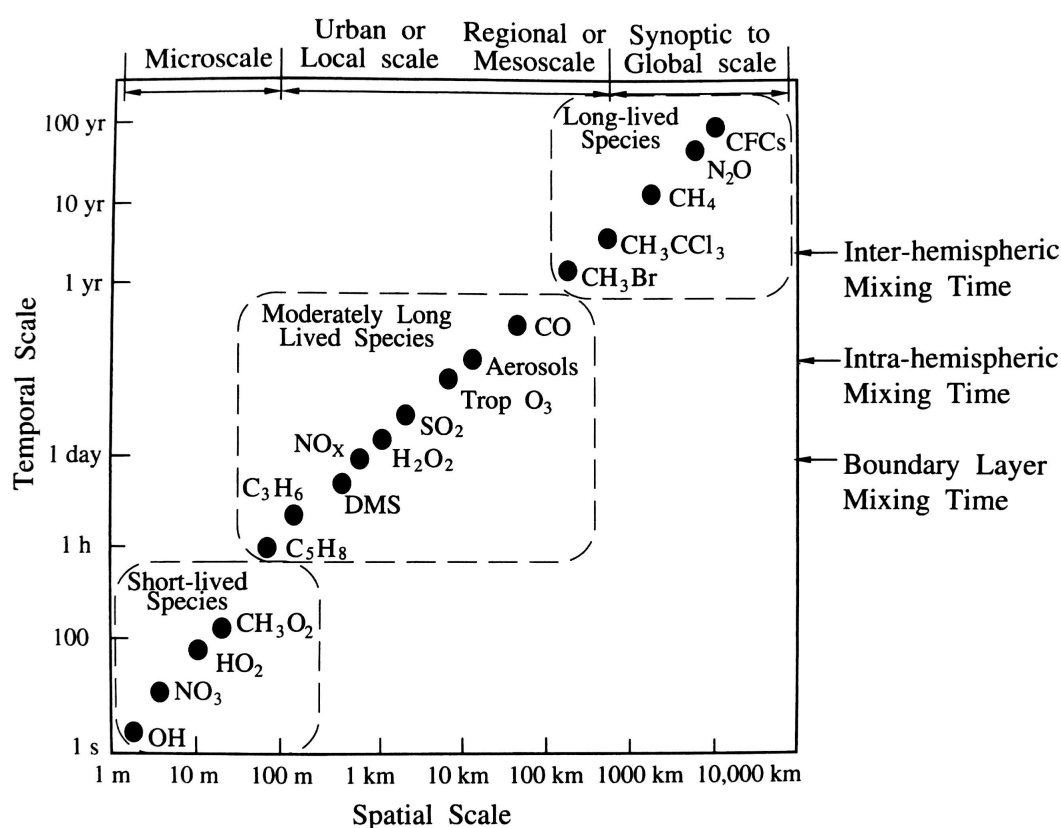


Figure 1.12 — Variabilité des constituants atmosphériques sur une échelle spatiale et temporelle (d'après Seinfeld and Pandis, 2006).

encore des champs de vent locaux (Seinfeld and Pandis, 2006). On recense ainsi plusieurs études rapportant des corrélations entre certaines de ces espèces. Dans Andreae et al. (1994), des mesures montrent des pics corrélés entre CO, O₃ et des aérosols originaires de feux de biomasse. Dans Stohl et al. (2007), une analyse des corrélations O₃/CO est menée et des mesures fortement corrélées entre CO et équivalent BC sont présentées. Dernier exemple, il existe des corrélations entre CO et CH₄ dans Goode et al. (2000) pour des émissions de feux de forêts.

Pour d'autres secteurs comme le transport maritime, plusieurs études relatent des émissions de NO₂, de SO₂ et d'aérosols (par exemple : Corbett and Fischbeck, 1997; Corbett and Koehler, 2003; Williams et al., 2009; Eyring et al., 2010; Cappa et al., 2014; Beecken et al., 2014; Jalkanen et al., 2016). Il faut cependant noter que les émissions sont dépendantes du type de bateaux du fait de l'utilisation de différents carburants plus ou moins chargés en soufre (Roiger et al., 2014). De plus, il y a peu de sources de NO_x au niveau des océans autre que les émissions des bateaux (Eyring et al., 2010).

Pour les plateformes pétrolières et gazières, Nara et al. (2014) présentent des mesures de CH₄ aussi bien pour des processus de torchage (flaring) du gaz que d'évent (venting) concomitantes à des mesures de CO₂, surtout pour le torchage (Elvidge et al., 2009). Roiger

et al. (2014) rapportent des émissions de NO et SO₂ dans la couche limite dans des panaches d'installations pétrolières et gazières. Des aérosols incluant le BC peuvent aussi être émis (Stohl et al., 2013). SO₂ est aussi émis par les raffineries de pétrole (Fioletov et al., 2016). Globalement, les polluants atmosphériques émis par le torchage de gaz sont CO, SO₂, HAP, COV et le BC (Fawole et al., 2016a).

Ainsi, lorsque l'on mesure des pics de CO corrélés avec des émissions d'O₃ et de BC, on peut penser à des émissions venant de feux de biomasse. Des mesures concomitantes de NO₂, SO₂ et d'aérosols peuvent signifier des émissions, soit par des bateaux, soit par des plateformes d'extraction de pétrole. Pour différencier les deux sources d'émission, une étude plus approfondie à l'aide de modèles numériques est nécessaire (chapitre 4).

*
*
*

Instrumentation et modélisation

La principale méthode instrumentale utilisée pour ces travaux est la spectroscopie optique. Elle est basée sur l'existence de niveaux d'énergie quantifiés dans les molécules. En effet, les molécules absorbent ou émettent un rayonnement électromagnétique. Dans le cas de la spectroscopie infrarouge d'absorption principalement utilisée ici, les transitions optiques correspondent au fait pour la molécule à détecter de gagner un niveau d'énergie de vibration (excitation), accompagné d'une variation du niveau de rotation (diminution (désexcitation) ou augmentation (excitation)) : on parle de transitions ro-vibrationnelles. Pour ce faire, l'énergie de la radiation absorbée doit être égale à la différence d'énergie entre l'état final et l'état initial de la molécule. Comme les niveaux d'énergie sont déterminés par la constitution de la molécule, chaque molécule possède un spectre d'absorption (ou d'émission) qui lui est propre.

Cette partie permettra, en premier lieu, de faire un résumé du principe de spectroscopie d'absorption infrarouge utilisé par l'instrument embarqué sur avion, SPIRIT (Spectromètre Infra-Rouge In situ Toute altitude). L'instrument lui-même sera ensuite décrit, ainsi que les méthodes d'inversion permettant de remonter aux concentrations des gaz. Le principe de fonctionnement d'autres instruments aéroportés dont les mesures serviront dans cette thèse sera brièvement expliqué. En plus d'instruments embarqués, des mesures satellitaires ont été utilisées et sont donc évoquées. Enfin, la dernière partie sera consacrée à la description des modèles numériques qui nous serviront tout au long des chapitres suivants.

2.1 Généralités sur la spectrométrie d'absorption infrarouge à ultra-haute résolution

La plupart des gaz traces présents dans l'atmosphère absorbent le rayonnement infrarouge. À partir du spectre d'absorption caractéristique de chaque molécule, il est possible de déterminer leur concentration par des techniques d'inversion expliquées par la suite. Les mesures simultanées de CO, CO₂, CH₄, N₂O et NO₂ par SPIRIT sont basées sur une technique de spectrométrie d'absorption infrarouge à haute résolution spectrale ($< 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$), grâce

à l'emploi de lasers comme sources de rayonnement. Les paragraphes suivants donnent les bases théoriques de la méthode de mesures mise en œuvre dans SPIRIT.

Selon la loi de Beer-Lambert (équation 2.1), l'intensité, $I(\tilde{\nu})$ d'un rayonnement électromagnétique, de nombre d'ondes $\tilde{\nu}$ transmis au travers d'un gaz dépend de sa concentration c (molécules.cm⁻³), de sa section efficace d'absorption, $\sigma(\tilde{\nu})$ (cm².molécule⁻¹) et de la longueur, l , du parcours optique à l'intérieur de ce milieu :

$$I(\tilde{\nu}) = I_0(\tilde{\nu}) \exp[-\sigma(\tilde{\nu}).c.l] \quad (2.1)$$

où $I_0(\tilde{\nu})$ représente l'intensité lumineuse incidente. On peut en déduire la transmittance $T(\tilde{\nu})$, par l'équation 2.2, comme étant :

$$T(\tilde{\nu}) = \frac{I(\tilde{\nu})}{I_0(\tilde{\nu})} = \exp[-\sigma(\tilde{\nu}).c.l] \quad (2.2)$$

Ainsi,

$$c = \frac{-\ln(T(\tilde{\nu}))}{\sigma(\tilde{\nu}).l} \quad (2.3)$$

Mesurer des molécules en faibles concentrations nécessite de sélectionner les domaines spectraux où les molécules ont de grandes sections efficaces d'absorption $\sigma(\tilde{\nu})$, d'allonger le plus possible le parcours optique l , et de mesurer la transmittance avec le meilleur rapport signal sur bruit possible. C'est dans le domaine de l'infrarouge moyen (entre 2,5 et 25 μm ou 400-4000 cm⁻¹) que l'on trouve les plus fortes sections efficaces d'absorption, correspondant aux transitions fondamentales. L'utilisation de cellules à parcours multiples permet d'augmenter l . De son côté, la mise en œuvre de sources lasers possédant une brillance spectrale bien supérieure aux sources à plus large bande permet de conserver une intensité lumineuse I mesurable en sortie de cellule optique.

2.1.1 Intensité de raie

La section efficace pour une raie donnée centrée en $\tilde{\nu}_0$ dépend de l'intensité de la raie $S(\tilde{\nu}_0, T)$ (encore appelée intensité intégrée ou force de raie) en cm⁻¹/molécule.cm⁻² et du profil d'absorption normalisé $g(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0)$ en cm :

$$S(\tilde{\nu}_0, T) = \int \sigma(\tilde{\nu}) d\tilde{\nu} = \int S.g(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0) d\tilde{\nu} \quad (2.4)$$

$g(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0)$ définit le profil de raie normalisé tel que $\int_{-\infty}^{+\infty} g(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0) d\tilde{\nu} = 1$.

La force de raie dépend fortement de la température T . Cette dépendance s'exprime au

moyen des fonctions de partition $Q(T)$ et $Q(T_0)$ et de la constante de Boltzmann k_B :

$$S(\tilde{\nu}_0, T) = S(\tilde{\nu}_0, T_0) \cdot \frac{Q(T_0)}{Q(T)} \cdot \left\{ \exp - \left[\frac{E''}{k_B} \cdot \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right) \right] \right\} \quad (2.5)$$

avec $S(T_0)$ l'intensité de la raie à la température de référence T_0 et E'' l'énergie du niveau bas de la transition ro-vibrationnelle. La dépendance en température de l'intensité d'une raie est un paramètre important à prendre en compte. À basse température, la plupart des molécules se trouvent dans l'état fondamental $v=0$, quelques-unes (ou aucune) dans le niveau supérieur $v=1$ et de moins en moins pour les niveaux $v=2,3...$ On peut définir le rapport des populations entre les niveaux 0 et 1 d'après la distribution de Boltzmann :

$$\frac{N_1}{N_0} = \exp\left(\frac{-E}{k_B T}\right) = \exp\left(\frac{-h\nu}{k_B T}\right) \quad (2.6)$$

avec h la constante de Planck, ν le nombre d'ondes, k_B la constante de Boltzmann et T la température.

Ainsi, lorsque la température augmente, le rapport (et donc la population du niveau 1) augmente et l'intensité de la transition entre les niveaux 1 et 2 augmente. On parle de bande chaude lorsque les transitions ont lieu à partir d'un plus haut niveau d'énergie. Par opposition, les transitions partant de l'état fondamental $v=0$ sont appelées bandes froides. Étant plus peuplées dans les conditions proches des conditions normales de température et de pression, elles sont en général de plus forte intensité.

2.1.2 Profils des raies

Les raies d'absorption ne sont pas infiniment étroites. Différents effets concourent au fait qu'elles possèdent une largeur. En effet, les transitions énergétiques entre deux états quantiques ne sont jamais parfaitement définies et les nombres d'ondes associés ont donc une certaine incertitude $\delta\tilde{\nu} = \tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0$ qui représente l'écart au centre de la raie $\tilde{\nu}_0$.

2.1.2.1 Profil naturel

Un premier phénomène d'élargissement est dû au principe d'incertitude d'Heisenberg indiquant que plus la durée de vie du niveau excité est grande, plus l'énergie est précisément connue :

$$\delta E \cdot \delta t \geq \hbar \quad (2.7)$$

avec δE l'incertitude sur l'énergie de la transition, δt la durée de vie de la transition et $\hbar$ la constante de Planck réduite. Comme la durée de vie d'un état excité de vibration est « longue », de l'ordre de 10^{-2} s, l'incertitude sur l'énergie donc sur le nombre d'ondes de tran-

sition $\delta\tilde{\nu} = \delta E/hc$ est faible, de l'ordre de $5 \times 10^{-10} \text{ cm}^{-1}$. Ce $\delta\tilde{\nu}$, représentant l'élargissement naturel, est négligeable devant les suivants.

2.1.2.2 Élargissement collisionnel

L'élargissement de la raie d'absorption est également provoqué par les interactions entre la molécule dont on étudie la transition et les autres molécules qui l'entourent, engendrant des variations d'énergie. En effet, plus les collisions dans le milieu sont importantes, plus la durée de vie de la transition va diminuer, entraînant une incertitude sur le nombre d'ondes de cette transition. Les phénomènes de collision peuvent être représentés mathématiquement par une distribution de Lorentz :

$$g_L(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0) = \frac{\gamma_L}{\pi [(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0)^2 + \gamma_L^2]} \quad (2.8)$$

où la forme de la raie est caractérisée par la mi-largeur à mi-hauteur γ_L , aussi appelée coefficient d'élargissement collisionnel qui est une fonction à la fois de la pression et de la température :

$$\gamma_L(P, T) = \gamma_L^0 \left(\frac{P}{P_0} \right) \left(\frac{T_0}{T} \right)^n \quad (2.9)$$

Avec n la dépendance en température dépendant principalement de la géométrie de la molécule. Dans les conditions de référence de pression et de température (soit $P_0=1000 \text{ hPa}$ et $T_0=296\text{K}$ dans la base de données HITRAN) et connaissant la valeur du coefficient d'élargissement collisionnel γ_L^0 , il est possible de calculer γ_L pour n'importe quelles autres pressions et températures. Finalement, l'élargissement collisionnel pour les molécules étudiées est dominant pour des pressions généralement supérieures à 100 hPa .

2.1.2.3 Profil Doppler

Un troisième processus d'élargissement est dû à l'effet Doppler. Les nombres d'ondes où les molécules absorbent sont décalés lorsque la molécule s'approche ou s'éloigne du détecteur considéré immobile. Comme les molécules sont en mouvement à grande vitesse et dans toutes les directions dans un gaz, le nombre d'ondes détecté est différent de celui absorbé. À chaque molécule correspond une vitesse donnée et donc un décalage Doppler induisant un élargissement de la raie d'absorption. La somme de la contribution de chaque molécule donne un profil de raie gaussien :

$$g_G(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0) = \sqrt{\frac{\ln 2}{\pi}} \frac{1}{\gamma_D} \exp \left[\frac{-\ln 2 \cdot (\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0)^2}{\gamma_D^2} \right] \quad (2.10)$$

avec γ_D la mi-largeur à mi-hauteur (en cm^{-1}) dépendant de la température T du milieu,

de la position du centre de la raie $\tilde{\nu}_0$ et de la masse molaire M de la molécule :

$$\gamma_D = 3,581.10^{-7} \tilde{\nu}_0 \sqrt{\frac{T}{M}} \quad (2.11)$$

L'effet Doppler est dominant pour des régimes de pressions généralement inférieurs à 10 hPa. Au fur et à mesure que la pression augmente, c'est l'élargissement collisionnel évoqué précédemment qui reprend le dessus.

2.1.2.4 Profil de Voigt

Dans le cadre de pressions intermédiaires, typiquement de l'ordre de 10 à 100 hPa, l'élargissement collisionnel ainsi que l'élargissement Doppler doivent être tous deux pris en compte. Le modèle de la forme de raie résultant est un profil de Voigt, produit de convolution du profil lorentzien $g_L(\tilde{\nu})$ et du profil gaussien $g_G(\tilde{\nu})$:

$$g_V(\tilde{\nu}) = g_G(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0) \otimes g_L(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0) = \int_{-\infty}^{+\infty} g_L(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}') g_G(\tilde{\nu}'). d\tilde{\nu}' \quad (2.12)$$

Comme ce profil résulte de la convolution d'une distribution de Gauss et d'une distribution de Lorentz, on retrouve, pour des basses pressions, l'agitation thermique du milieu entraînant un élargissement Doppler et donc un profil gaussien. Lorsque la pression augmente, la hauteur du pic de la raie diminue et cette dernière s'élargit. La fréquence des collisions moléculaires augmente et l'on tend alors vers un profil de type collisionnel pur (figure 2.1).

D'autres profils plus sophistiqués existent. On peut citer, par exemple, les profils de raie de Galatry, de Rautian ou de Tran-Hartmann. Cependant, leur mise en œuvre est plus complexe car ils augmentent le nombre de paramètres physiques devant être pris en compte. À l'heure actuelle, ces paramètres sont encore peu disponibles sur les bases de données. En outre, leur modélisation nécessite des temps de calcul plus importants. Par ailleurs, les spectres mesurés par SPIRIT ne sont pas mesurés avec la précision suffisante pour que l'influence du type de profil de raies intervienne de façon déterminante dans la précision de l'instrument. Pour les molécules étudiées, le programme de traitement de données de SPIRIT considère donc des profils de Voigt paramétrés à partir de la base de données HITRAN (Rothman et al., 2013).

Comme nous avons pu le voir jusque-là, la connaissance des paramètres spectroscopiques est essentielle pour déterminer de façon précise la concentration des molécules atmosphériques et notamment pour calculer les spectres synthétiques. Une des bases de données publiques la plus utilisée est la base HITRAN (HIGH-resolution TRANsmission molecular absorption database) (Rothman et al., 2013). D'après les équations établies tout au long de cette partie, il faut donc connaître le nombre d'ondes de la transition, l'intensité de la raie à $T_0 = 296K$, le coefficient d'élargissement collisionnel par les molécules d'air ainsi que son coefficient de dépendance en température et, enfin, l'énergie du niveau inférieur de la transition ro-vibrationnelle.

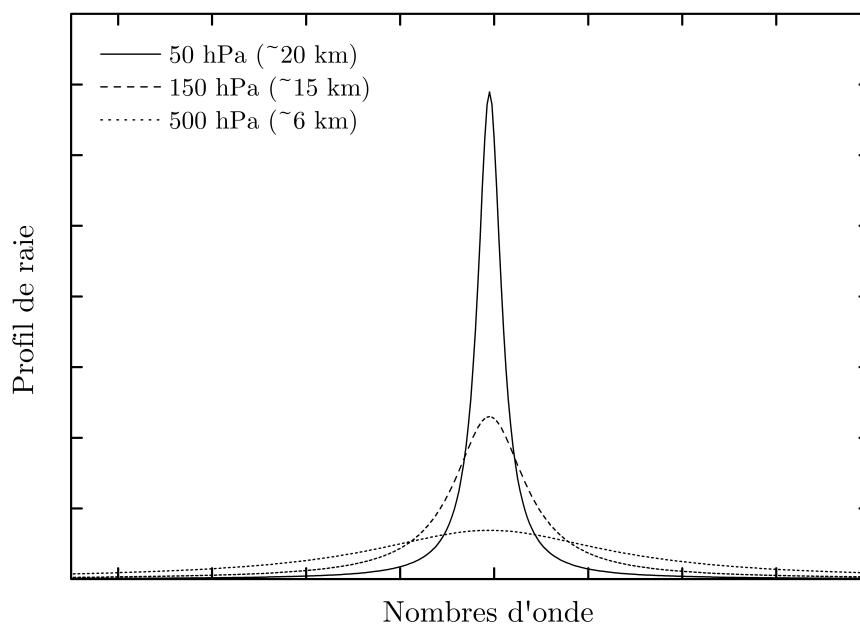


Figure 2.1 — Profils de Voigt pour des raies de même intensité intégrée pour des pressions et températures correspondant à 3 altitudes différentes : 50 hPa et 200 K (ligne pleine), 150 hPa et 215 K (ligne en tirets) et 500 hPa et 260 K (ligne en pointillées), d'après [Krysztofiak \(2013\)](#).

2.1.2.5 Fonction d'appareil

Un quatrième effet d'élargissement lié à la largeur spectrale de l'émission laser est à considérer. Cet effet est à rapprocher d'une fonction d'appareil car intrinsèque à la technique de mesure. Cependant, grâce à l'utilisation de lasers quasi monochromatiques de type DFB-QCL (voir section 2.2.1), cet effet demeure négligeable ($< 2 \times 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$) devant l'élargissement moléculaire des raies. De même que l'élargissement naturel, il n'est pas pris en compte dans les calculs d'inversion des spectres.

2.2 Mesures aéroportées

2.2.1 Principe de fonctionnement de l'instrument SPIRIT

Le paragraphe suivant reprend les principaux éléments de la description de SPIRIT détaillés dans l'article [Catoire et al. \(2017\)](#), en se focalisant sur sa configuration pour les campagnes exploitées dans mes travaux de thèse. Cet instrument a été développé il y a 6 ans, en parallèle à l'apparition d'autres spectromètres à lasers infrarouges aéroportés sur le marché. Cette technique comprend plusieurs variantes. Concernant les sources optiques, des diodes lasers à rétroaction répartie (DFB : Distributed FeedBack) sont généralement utilisées dans le domaine du proche infrarouge ($\sim 1\text{-}3 \mu\text{m}$), et des Lasers à Cascades Quantiques (DFB-QCL) ou Interbandes (DFB-ICL) sont de plus en plus utilisés dans le domaine du moyen infrarouge

entre 3 et 12 μm . Ces lasers sont, soit couplés à des cavités optiques non-résonantes, tels SPIRIT ou les instruments de la compagnie Aerodyne Research Inc. (<http://www.aerodyne.com/products/laser-trace-gas-monitors>), soit couplés à des cavités résonantes de type CRDS (Cavity Ring-Down Spectroscopy) ou OA-ICOS (Off-Axis Integrated Cavity Output Spectroscopy), tels ceux commercialisés respectivement par Picarro Inc. (https://www.picarro.com/products_solutions/gas_analyzers/flight_co_co2_ch4_h2o) ou Los Gatos Research Inc (<http://www.lgrinc.com/applications/airborne-measurements/>). Une revue des instruments aéroportés de ce genre a été réalisée récemment (McQuaid et al., 2013) et complétée dans l'article (Catoire et al., 2017). Les avantages communs à tous ces spectromètres infrarouges lasers sont :

- leur sensibilité et précision : grâce à l'utilisation de lasers combinée à des basses pressions de mesure (< 100 hPa) dans les cavités, on atteint des limites de détection adaptées aux concentrations de gaz traces que l'on cherche à mesurer.
- l'obtention de résultats univoques (spécificité) : la longueur d'onde est caractéristique de l'espèce et la profondeur d'absorption peut être reliée à la concentration de manière absolue au moyen de lois physiques simples indiquées dans le paragraphe précédent. Cela permet aussi de se passer d'étalonnage dans une certaine mesure, bien que les performances soient légèrement dégradées.
- les mesures en ligne des gaz en écoulement, ce qui permet une résolution temporelle et donc spatiale (lors du déplacement de l'avion) très fine, et l'adaptation du profil de vol en fonction des observations en temps réel.
- leur simplicité d'utilisation, par des personnes peu formées sans que cela impacte les performances.

Si l'on compare, maintenant, les cavités non-résonantes aux résonantes, celles-ci permettent d'atteindre des parcours optiques de quelques kilomètres, soit typiquement 50 à 100 fois plus longs que dans les cavités non-résonantes. Mais cet avantage est atténué par le fait que le domaine sondé associé est resté jusqu'à maintenant dans le proche infrarouge, où les forces de raies correspondent à des transitions non-fondamentales, et sont donc typiquement 10 à 1000 fois plus faibles que dans le moyen infrarouge. Finalement les Trace Gas Monitors d'Aerodyne Research Inc. ou SPIRIT opérant dans le moyen infrarouge sont concurrentiels, et sont apparus en mettant à profit la nouvelle génération de lasers à la suite des diodes à sels de plomb : les QCL ont l'avantage d'émettre de grandes puissances lumineuses, sur un domaine spectral assez étendu ($> 1 \text{ cm}^{-1}$) favorable à la détection de plusieurs molécules, de pouvoir être considérés comme monochromatiques, d'être fiables dans le temps et au point de vue du domaine spectral émis, et de fonctionner à température moyennement basse ($> -30^\circ\text{C}$), donc sans besoin d'azote liquide. Concernant SPIRIT lui-même, celui-ci présente d'autres avantages qu'il convient de rappeler :

- Robustesse : l'instrument est robuste et donc embarquable et utilisable dans des environnements assez hostiles. La cellule à parcours multiples de Robert (Robert, 2007) se

réaligne à intervalles de temps choisis par une procédure automatisée. L'instrument est relativement insensible aux vibrations, à la température ambiante et aux variations de pression en amont du prélèvement.

- Simplicité de conception : il est possible d'effectuer des réparations, directement sur le terrain, ce que ne permet pas l'emploi des instruments commerciaux.
- Adaptabilité : les lasers pour la mesure peuvent être changés en fonction des espèces gazeuses souhaitées. Le fait d'utiliser des miroirs métallisés fait que la cellule a les mêmes performances quel que soit le laser utilisé (et donc l'espèce mesurée).
- Maîtrise du traitement de données : on sait comment est réalisé le traitement des mesures et il est donc possible de modifier le programme pour prendre en compte l'évolution de la connaissance des paramètres spectrométriques par exemple.
- Légèreté : comparé à d'autres instruments, le poids de 100 kg pour 3 voies de mesures et 4 à 5 molécules reste raisonnable.

Le principe de fonctionnement de SPIRIT est présenté en figure 2.2.

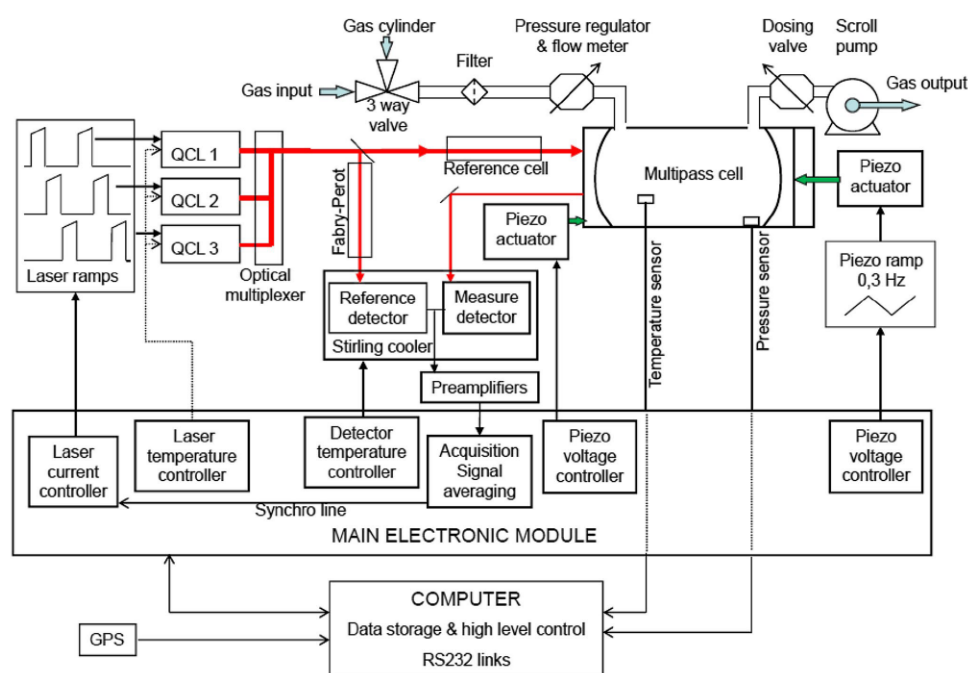


Figure 2.2 — Représentation du principe de fonctionnement de l'instrument SPIRIT (Catoire et al., 2017).

Il est composé de trois lasers à cascades quantiques (QCL) couplés à une cellule optique multi-passage et deux détecteurs, un pour la chaîne de mesure (measure detector) et l'autre pour la chaîne de référence (reference detector). Les trois lasers fonctionnent successivement, synchronisés par le système d'acquisition de données. Le module électronique (main electronic module), commandé par un PC portable via un lien RS-232, permet de piloter en courant (current controller) et en température (temperature controller) chaque QCL. L'asservissement

en température grâce au module à effet Peltier permet de maintenir individuellement chaque laser à une température constante, à mieux que le centième de degré près, conduisant à l'émission d'une longueur précise. En diminuant la température, on atteint les longueurs d'onde souhaitées. L'asservissement en courant est possible par l'application d'une rampe de courant de quelques mA qui effectue un balayage des micro-fenêtres spectrales d'intérêt, à définir selon les espèces à mesurer. La séquence complète de mesures pour les trois voies laser s'effectue en 1,6 s. Un schéma du banc optique est présenté en figure 2.3.

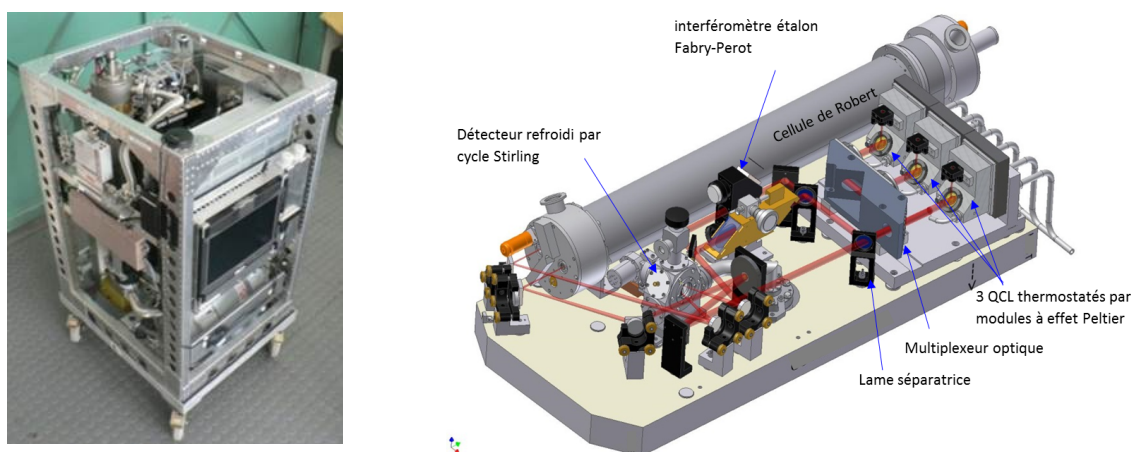


Figure 2.3 — (À gauche) Photo de SPIRIT dans son rack avion. (À droite) Représentation 3D du banc optique. Les rayons rouges symbolisent le parcours des rayons laser.

À la sortie des QCL, un multiplexeur optique (optical multiplexer) permet de regrouper les trois faisceaux laser en un seul. Puis, une lame séparatrice (beamsplitter) est utilisée pour diviser ce faisceau lumineux en deux. Une petite partie (quelques %) est dirigée vers un interféromètre de Fabry-Pérot qui permet de fournir une échelle relative en fréquence. Ce signal de référence est reçu au niveau du détecteur de référence. La majeure partie du faisceau est, quant à elle, envoyée dans la cellule optique multi-passage, la cellule de Robert (Robert, 2007), qui contient les gaz traces que l'on souhaite mesurer. Cette cellule se compose de trois miroirs sphériques. L'alignement des miroirs est contrôlé par deux actionneurs piézoélectriques (en orange sur la figure 2.3) de part et d'autre de la cellule. La rotation d'un de ces miroirs permet d'ajuster la longueur du parcours optique pouvant aller de 20 à 200 mètres ; dans notre cas nous avons utilisé des parcours de 83,88, 134,22 ou 151,00 m. Un troisième mécanisme est utilisé pour faire bouger d'avant en arrière le miroir autonome afin de limiter les interférences spectrales. Avant d'entrer dans la cellule de Robert, le faisceau peut passer à travers une petite cellule optique de référence contenant un gaz connu, ajoutée afin d'obtenir une échelle absolue en nombre d'ondes et vérifier que le domaine d'émission du laser est correct. C'est le cas de la voie mesurant NO_2 pour laquelle une cellule de 3 cm de long contenant environ 120 ppmv de CH_4 à 100 hPa conduit à un doublet de 1% d'absorption centré à $1630,407 \text{ cm}^{-1}$, c'est-à-dire sans interférer avec l'absorption de NO_2 à $1630,326 \text{ cm}^{-1}$. Cette espèce est en effet en concentration fortement variable et pas toujours

délectable en vol dans une atmosphère non polluée, alors que CO, CH₄, N₂O et CO₂ sont suffisamment abondants, quelles que soient les conditions, pour être visibles en permanence en direct sur les spectres. Pour finir son parcours après plusieurs réflexions entre les miroirs dans la cellule, le faisceau lumineux est collecté sur un miroir plat extérieur pour être ensuite conduit vers le détecteur de mesure. Les deux détecteurs en fin de chaîne sont refroidis par le même refroidisseur à cycle de Stirling. Les signaux électriques sont finalement amplifiés, numérisés, et moyennés au niveau du module électronique principal, et envoyés vers le PC portable.

L'air de l'atmosphère ambiante est continuellement prélevé par une prise d'air en acier localisée sur le toit à l'avant de l'avion, orientée vers l'arrière (rear-facing inlet) pour éviter la contamination ou colmatation par des particules (glace, poussières), dans laquelle un tuyau en téflon PFA de diamètre intérieur 1/2" est inséré. Au bout de 2 à 3 m, celui-ci est raccordé par une vanne à un régulateur de pression couplé à un débitmètre (pressure regulator et flowmeter, figure 2.2), marquant l'entrée de la cellule optique. Cet air est en écoulement continu régulier, aspiré par une pompe (scroll pump, figure 2.2), à la sortie de la cellule, avec un débit fixé par une vanne de dosage manuelle (dosing valve) avant le vol. Le temps de renouvellement de l'air dans la cellule est ainsi connu : de 5,2 à 8,8 secondes. Le régulateur de pression permet de maintenir la cellule à pression constante connue (à 0,1 hPa près) réduite (d'environ 30-35 hPa). L'élargissement des raies ro-vibrationnelles est donc limité, donnant ainsi aux mesures une grande sensibilité et une excellente précision. La température de la cellule est mesurée et homogène à 1 K près. Pression et température de la cellule sont des paramètres permettant de déduire les rapports de mélange volumiques des espèces mesurées à partir de leurs concentrations dérivées de la loi de Beer-Lambert.

SPIRIT peut fonctionner de façon automatique. De ce fait, pour éviter des dérives, un réaligement optique durant environ 1 minute est effectué toutes les dix minutes par un mécanisme piézoélectrique, compromis entre la limitation de perte de signal optique dû aux variations des conditions expérimentales (vibration, température, pression, ...) et perte de données de mesures optimales lors de ce réaligement. Des rapports de mélange approximatifs sont calculés (basés seulement sur les hauteurs des pics d'absorption des espèces) et affichés à l'écran en direct tout au long des vols afin de permettre un ajustement de la trajectoire de l'avion si nécessaire. Enfin, un système GPS synchronisé à l'ordinateur est intégré à l'instrument afin de pouvoir disposer du temps universel, de la latitude, longitude et de l'altitude, paramètres utiles au traitement des données.

2.2.2 Méthode de traitement des données : du spectre d'absorption aux concentrations

Dans cette partie, il est question de détailler les méthodes d'ajustement et d'inversion des spectres IR utilisées afin d'obtenir finalement les concentrations des gaz traces mesurés dans l'atmosphère. L'objectif des algorithmes de traitement de données manipulés lors de

cette thèse est de faire correspondre le spectre expérimental avec le spectre simulé (dans notre cas, par un profil de Voigt). Pour atteindre cet objectif, plusieurs étapes de calculs détaillées ci-dessous sont nécessaires.

- Étape 1 : étalonnage de l'échelle en nombres d'ondes

L'acquisition du signal par SPIRIT se fait en fonction du temps et doit donc être convertie en nombre d'ondes. Pour ce faire, on enregistre pendant tout le temps du vol le spectre du signal provenant de l'interféromètre étalon de Fabry-Pérot positionné le long du trajet optique. Ce dernier fournit une figure d'interférences dont l'intervalle spectral est constant, de $1,22 \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$. On détecte ensuite la position des maxima et minima des pics correspondant à cet intervalle à partir desquels on reconstruit une échelle spectrale par interpolation. Ainsi, à partir de l'étalonnage séquentiel effectué par le Fabry-Pérot et de la détection des pics, on peut dériver par interpolation une échelle en nombre d'ondes. À cause des effets de pression et de température, cette échelle doit être corrigée tout au long du vol pour obtenir, finalement, une calibration absolue en nombre d'ondes. Comparant la position des raies d'absorption observées des gaz dans la cellule de mesure et la position théorique de ces mêmes raies donnée par HITRAN, l'échelle est alors réajustée précisément.

- Étape 2 : reconstruction de la ligne de base

La ligne de base correspond donc au signal laser $I_0(\tilde{\nu})$ en l'absence d'absorption. Du fait des fluctuations d'émission du laser, on observe des variations de cette ligne de base au cours du temps qu'il faut corriger avant de pouvoir extraire les concentrations à partir des spectres. On reconstruit le signal de la ligne de base à partir d'une interpolation polynomiale des points d'absorption nulle (loin de la raie) sur tout le spectre. On obtient alors la transmittance en divisant le signal obtenu expérimentalement $I(\tilde{\nu})$ par la ligne de base reconstruite.

- Étape 3 : extraction des concentrations

La dernière étape consiste à extraire les concentrations à partir des spectres ajustés. On peut déterminer la concentration C à partir de la loi de Beer-Lambert. On obtient ainsi :

$$C = \frac{-\ln [T(\tilde{\nu})]}{S \cdot g(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0) \cdot l} \quad (2.13)$$

La méthode d'inversion consiste à déterminer la valeur de C qui permet de réduire au minimum l'écart entre le spectre synthétisé à partir d'un profil de Voigt ($S \cdot g(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_0) \cdot l$) et celui du spectre expérimental ($-\ln [T(\tilde{\nu})]$) pour chaque nombre d'ondes de la fenêtre spectrale. L'ajustement entre les deux spectres est basé sur la méthode des moindres carrés. L'inversion se fait par l'intermédiaire de la dérivée seconde des spectres, méthode qui a l'avantage de

ne pas nécessiter la reconstruction parfaite de la ligne de base et de réduire l'influence des franges d'interférences dues à de la lumière parasite, ce qui est utile dans le cas d'espèces présentes en faible concentration (NO_2 par exemple). Lors d'un vol, on peut visualiser la différence d'ajustement, appelée résidu, afin de vérifier que le profil de raie simulé est le plus adapté. Un exemple de transmission direct du spectre du CO ainsi que de sa dérivée seconde est fourni en figure 2.4.

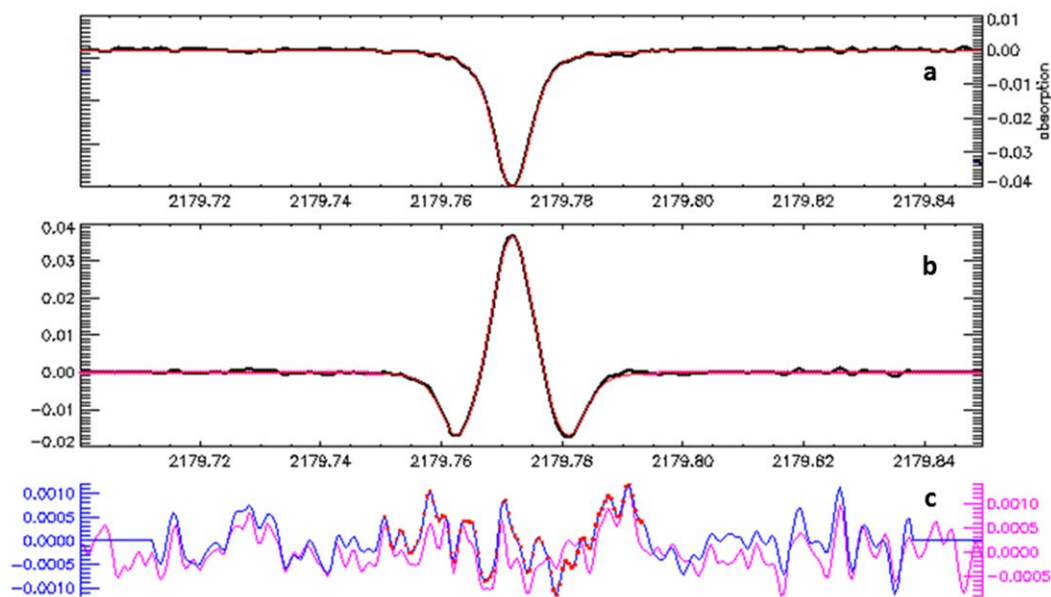


Figure 2.4 — (a) Exemple d'un spectre de transmission expérimental (en noir) et simulé (en rouge) pour CO. (b) Dérivées secondes du signal transmis expérimental (en noir) et simulé (en rouge). (c) Résidus minimum de la transmission (en rose) et de la dérivée seconde (en bleu), d'après [Catoire et al., 2017](#).

Sur cette figure, le résidu minimum est d'environ 1% à 1σ . Les mêmes figures pour CH_4 et NO_2 sont fournies en figure 2.5 et 2.6 respectivement.

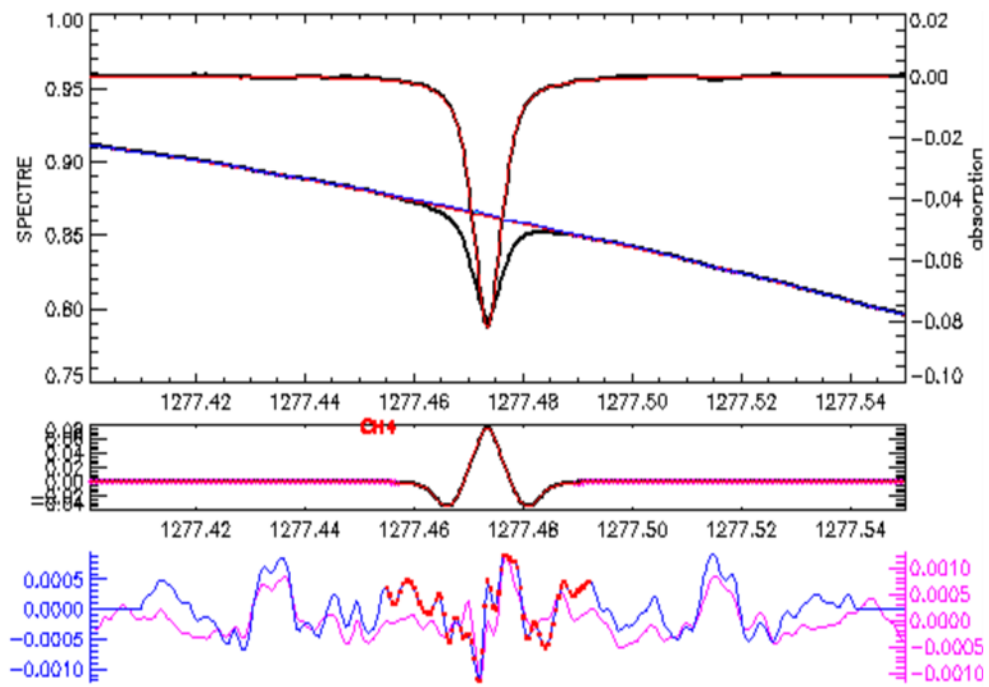


Figure 2.5 — Idem à la figure 2.4 mais pour CH_4 .

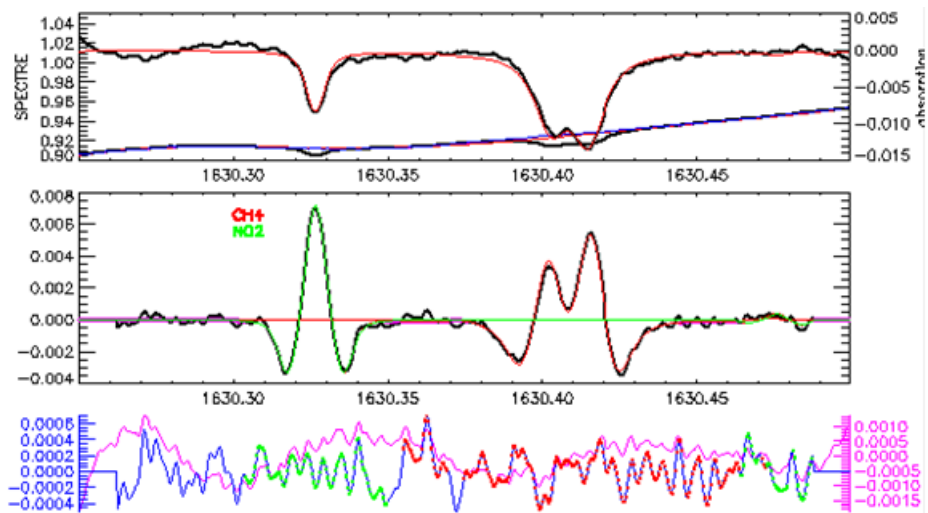


Figure 2.6 — Idem à la figure 2.4 mais pour NO_2 et un doublet de CH_4 .

2.2.3 Caractéristiques et performances de SPIRIT

Au cours de ces trois années de recherche, en dehors des vols liés à l'estimation des incertitudes, SPIRIT a été utilisé lors de deux campagnes de terrain : les campagnes GLAM et APSOWA (voir description dans les chapitres 3 et 4 respectivement). Le tableau 2.1 liste les micro-fenêtres spectrales d'absorption utilisées en fonction des espèces mesurées.

Espèces	GLAM	APSOWA
CO	2179,70 cm^{-1} -2179,85 cm^{-1}	2179,70 cm^{-1} -2179,85 cm^{-1}
CO ₂	2307,27 cm^{-1} -2307,57 cm^{-1}	—
CH ₄	1249,55 cm^{-1} -1249,72 cm^{-1}	1277,10 cm^{-1} -1277,60 cm^{-1}
N ₂ O	1249,55 cm^{-1} -1249,72 cm^{-1}	1277,10 cm^{-1} -1277,60 cm^{-1}
NO ₂	—	1630,18 cm^{-1} -1630,55 cm^{-1}

Tableau 2.1 — Récapitulatif des fenêtres spectrales choisies en fonction des espèces chimiques pour les campagnes GLAM et APSOWA.

Le dépouillement et l'étude des données de la campagne GLAM a permis de mettre en évidence la nécessité d'un changement de laser pour le CH₄ et le N₂O afin d'avoir une fenêtre spectrale plus sensible. Ainsi, un nouveau laser a pu être utilisé lors de la campagne APSOWA avec des absorptions plus fortes que lors de la campagne GLAM.

Concernant les incertitudes des mesures de SPIRIT, durant la période de cette thèse, une estimation en laboratoire et en vol a été réalisée dans le cadre du projet ChemCalInt financé par le Comité Scientifique et Technique Avion (CSTA) du CNRS/INSU, par le Service des Avions Français Instrumentés pour la Recherche en Environnement (SAFIRE) du CNRS/INSU, du CNES et de Météo-France, et par l'infrastructure de recherche européenne des avions de recherche EUFAR (EUropean Facility for Airborne Research) du 6^{ème} Programme Cadre R&D de l'Union Européenne concernant des Activités de Recherche conjointes (JRA) de Traçabilité dans les Observations en phase Gazeuse (TGOE). Le tableau 2.2 en récapitule les principales performances.

Molécule	Précision à 1σ à 1,6 s	Incertitude totale estimée avec (ou sans) calibration
CO	0,3 ppbv	0,9 (ou 4,7) ppbv à 150 ppbv de CO
CH ₄	5 ppbv	22 (ou 27) ppbv à 1900 ppbv de CH ₄
NO ₂	0,3 ppbv	0,5 ppbv (+ 5%)

Tableau 2.2 — Précisions et incertitudes des mesures en vol de SPIRIT pour les rapports de mélange de CO, CH₄ et NO₂ (adapté de [Catoire et al., 2017](#)).

Les précisions choisies comme un écart-type (1σ) à 1,6 s sont données pour chaque espèce. L'incertitude totale peut être estimée à partir des mesures en vol. Pour CO, des comparaisons avec des bouteilles de gaz étalonnées par les standards WMO mènent à un biais et son écart-type associé de $3,8 \pm 0,4 = 4,2$ ppbv. Pour CH₄, les comparaisons sont faites avec des bouteilles de gaz étalonnées par les standards de la NOAA et mènent à un biais et son écart-type de $4,7 \pm 7,8 = 12,5$ ppbv. Enfin, les comparaisons pour NO₂ sont effectuées avec les mesures de deux autres instruments différents (les modèles 42C et 42S de TEI) et mènent à un biais de 0,5 ppbv. Concernant la répétabilité des mesures, les dérives à long terme (typiquement 2h : le temps d'un vol) de 0,7% pour CO et de 1,5% pour CH₄ mènent à des incertitudes de $\pm 0,5$ et ± 14 ppbv pour des valeurs de rapports de mélange atmosphérique typiques de 150 ppbv et 1900 ppbv respectivement. Pour NO₂, la comparaison avec l'instrument AC-31M (Environnement SA) en laboratoire mène à une surestimation des valeurs du SPIRIT de 5%. En additionnant directement ces incertitudes en prenant en compte (ou non) l'étalonnage, l'estimation de l'exactitude du rapport de mélange pour CO est de 0,9 (ou 4,7) ppbv, de 22 (ou 27) ppbv pour CH₄ et de 0,5 ppbv (+5%) pour NO₂.

2.2.4 Autres instruments aéroportés

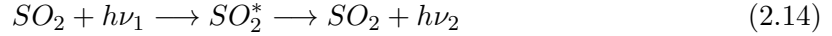
Cette partie va permettre d'introduire les mesures utilisées, autres que celles du SPIRIT, venant aussi d'instruments embarqués à bord de l'avion.

Les données météorologiques proviennent des instruments embarqués directement opérés par SAFIRE pour la campagne GLAM et par le DLR (Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt) pour la campagne APSOWA. On retrouve des mesures de température, de pression et d'humidité de l'air ainsi que des mesures des trois composantes du vent et du rayonnement.

Les concentrations d'O₃ ont été mesurées par l'instrument Mozart, développé grâce à l'expérience acquise du programme MOZAIC (Measurement of OZone by Airbus In-service airCraft) à bord de l'Airbus commercial A340. Son principe de fonctionnement est basé sur la spectroscopie d'absorption UV dans deux cellules parallèles (une cellule de référence et une cellule d'échantillonnage) avec une précision de 2 ppbv + 2% pour un temps d'intégration de 4 s (Thouret et al., 1998). Le principe de fonctionnement ainsi que les cellules proviennent d'une version modifiée d'un analyseur d'ozone commercial (Modèle 49C TEI Thermo Environment Instrument). Il est régulièrement calibré par le laboratoire d'Aérologie et la division technique du CNRS/INSU.

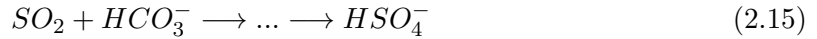
Pour le projet APSOWA, les concentrations de SO₂ sont mesurées par un Thermo Electron pulsed fluorescence SO₂ analyzer (Model 43C) opérées par l'IPA (Institut für Physik der Atmosphäre) du DLR. Le principe de mesure repose sur le fait que les molécules de SO₂ absorbent le rayonnement UV. Elles passent alors à un état électronique excité accompagné

de différents états vibrationnels. Des désexcitations vibrationnelles ont lieu rapidement jusqu'au niveau vibrationnel fondamental de l'état électronique excité. Puis, la désexcitation électronique a lieu pour revenir au niveau d'énergie électronique initial, mais avec différents niveaux vibrationnels donc en émettant un rayonnement UV proportionnel à la concentration de SO_2 , à une longueur d'onde différente. On peut traduire cela sous la forme de l'équation 2.14 :



L'instrument a été calibré avant et après la campagne APSOWA. Il s'agit d'une calibration multipoints pour laquelle un gaz avec des rapports de mélange de SO_2 connus est ajouté à l'instrument.

Pour le projet SHIVA, des mesures de SO_2 par un CI-ITMS et de NO_2 par un mini-DOAS sont utilisées. Le principe de fonctionnement du Chemical Ionization Ion Trap Mass Spectrometry (CI-ITMS) repose sur l'ionisation des gaz en trace (tels que SO_2) par des réactions sélectives avec des ions réactifs, produits dans une source d'ions à décharge. Les ions produits sont ensuite analysés par un spectromètre de masse à trappe d'ions et séparés par leur rapport masse/charge. La réaction de détection de SO_2 est donnée par l'équation 2.15 :



Le mini-DOAS ([Grossmann, 2014](#)), servant aux mesures de NO_2 , consiste en un télescope qui reçoit la lumière avec une visée au limbe analysée grâce à deux spectromètres optiques. Les mesures sont évaluées en utilisant la technique de la spectroscopie d'absorption optique différentielle (DOAS) pour des gaz traces absorbant dans l'UV et le visible.

Au total des deux campagnes, trois instruments ont été utilisés pour les mesures des concentrations en particules : un PCASP, un UHSAS et un CPC. Le Passive Cavity Aerosol Spectrometer Probe (PCASP-100X) mesure la taille des particules à partir de la diffusion de la lumière laser (à 0,6328 μm) par ces particules (le principe étant que la quantité de lumière diffusée est fortement corrélée à la taille des particules) pour un intervalle de taille allant de 0,1 μm à 3 μm dans 30 classes. L'Ultra-High Sensitivity Aerosol Spectrometer (UHSAS) fonctionne sur le même principe de diffusion de la lumière mais avec une gamme de taille ciblée beaucoup plus fine allant de 0,06 μm à 1 μm dans 99 classes. Ces deux instruments sont fabriqués par Droplet Measurement Technologies (DMT). Enfin, le Condensation Particle Counter (CPC TSI3010) de la compagnie TSI Incorporated est un compteur de particules capable de détecter et compter, par diffusion de la lumière laser, des particules. À la différence d'un compteur de particules standard, les particules dans un CPC sont utilisées comme des

noyaux de condensation et sont donc grossis jusqu'à une taille de 10-12 μm permettant une détection plus aisée.

2.3 Mesures spatiales

2.3.1 MODIS

L'instrument MODIS (MODerate resolution Imaging Spectroradiometer) est intégré aux satellites AQUA et TERRA de la NASA. Il possède une vision globale de la Terre en 1 à 2 jours avec une orbite héliosynchrone. Ses détecteurs sont capable de mesurer sur un large domaine du spectre électromagnétique : 36 bandes spectrales entre 0,405 μm et 14,4 μm . Les produits dérivés des observations de MODIS décrivent les caractéristiques des terres, des océans et de l'atmosphère et peuvent être utilisés afin d'étudier des processus et des tendances allant de l'échelle locale à l'échelle globale.

Dans la catégorie des produits terrestres, MODIS est capable de fournir des informations journalières et géographiques sur les feux actifs (produits MOD14 de Terra et MYD14 d'AQUA) en se basant sur leurs fortes émissions dans l'infrarouge moyen. En effet, les températures détectées lors d'un feu peuvent varier de 800 K à 1800 K. L'algorithme de détection des feux (Giglio et al., 2003) examine chaque pixel du balayage de MODIS et affecte à chacun de ces pixels une des catégories suivantes : donnée manquante, nuage, eau, absence de feu, feu ou inconnu. Ainsi, les pixels qui manquent de données valides sont classés comme données manquantes. Des filtres pour les nuages et l'eau sont appliqués permettant de classer les pixels dans leur catégorie respective. Les catégories « absence de feu » et « feu » sont remplies après comparaison de la température apparente du pixel par rapport à la température de fond. Enfin, les pixels pour lesquels la caractérisation d'une température de fond n'est pas possible du fait d'un nombre insuffisant de pixels valides rentrent dans la catégorie « inconnu ».

Pour chaque pixel de feu détecté, une estimation du pouvoir radiatif du feu (Fire Radiative Power, FRP) est ensuite fournie. Ce paramètre donne une estimation de la puissance du feu. Le FRP est pris en compte dans certains scénarios d'émission et notamment dans GFAS (voir section 2.4.1). À noter toutefois qu'il existe des incertitudes sur la détection. La mesure du FRP est une mesure instantanée lors du passage du satellite. Aucune dynamique sur les épisodes de feux n'est donc prise en compte. Certaines détections peuvent être atténuées par la présence de panaches très denses ou même manquées (Giglio et al., 2006). Enfin, il est possible d'avoir de fausses détections comme des sites industriels détectés comme points chauds (Giglio et al., 2006). Bien que ces fausses détections soient repérées et éliminées par un masque, nous n'utilisons par la suite que les données de feux avec un niveau de confiance de plus de 75% afin de limiter au maximum ces différentes sources d'erreur.

Les données de feu de MODIS seront utilisées pour localiser les feux lors des campagnes GLAM et APSOWA et seront indirectement utilisées par le biais des scénarios d'émission.

2.3.2 IASI

L'instrument IASI (Interféromètre Atmosphérique de Sondage Infrarouge), développé par le CNES, est intégré sur les satellites météorologiques européens à orbite polaire Metop-A et Metop-B lancés en 2006 et 2012 respectivement. Il est composé de deux éléments dont un spectromètre haute résolution à transformée de Fourier, avec des mesures dans la partie infrarouge du spectre électromagnétique et dont la ligne de visée est au nadir, et d'un imageur. Avec son orbite héliosynchrone à environ 817 km d'altitude et un balayage de 2200 km perpendiculaire à sa trace, IASI couvre la totalité du globe deux fois par jour. Initialement, il avait pour but principal la mesure de profils de température et d'humidité à haute résolution spatiale nécessaires aux prévisions météorologiques. En plus de cela, la surveillance du climat et la compréhension de la chimie atmosphérique sont assurées par la mesure des aérosols, des nuages et des polluants et gaz à effet de serre comme par exemple l'ozone, le méthane ou encore le monoxyde de carbone (Clerbaux et al., 2009). Chaque molécule possède une signature caractéristique du fait de ses transitions ro-vibrationnelles. Ainsi, les concentrations des gaz traces peuvent être extraites pour chaque molécule absorbant dans un domaine spectral défini en utilisant des méthodes d'inversion itératives. Par la suite, les mesures de la colonne totale de CO seront utilisées afin de suivre le transport intercontinental de ce polluant et les colonnes totales de NH_3 permettront de confirmer une source de pollution par corrélation avec CO.

2.3.3 CALIOP

CALIOP (Cloud-Aerosols Lidar with Orthogonal Polarization ; Winker et al., 2004, Winker et al., 2007) est un lidar à rétrodiffusion à deux longueurs d'onde (532 nm et 1064 nm). Il se situe sur le satellite franco-américain CALIPSO (Cloud Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations) lancé en 2006, ce dernier faisant partie de la constellation de satellites A-train, avec aussi un imageur infrarouge et une caméra visible. En orbite quasi héliosynchrone à 705 km d'altitude, la mission de CALIPSO est d'étudier, en localisant et mesurant l'altitude des couches nuageuses et des aérosols ainsi que leurs propriétés optiques, l'impact radiatif de ces nuages et ces aérosols sur le climat terrestre. Dans ce but, CALIOP fournit des profils verticaux à haute résolution des nuages et des aérosols. Le principe du LIDAR est d'émettre une onde lumineuse qui va interagir avec les constituants qu'elle va rencontrer dans l'atmosphère. La partie de l'onde réfléchiée par les nuages et les aérosols va être collectée par un télescope. À partir de cette onde rétrodiffusée, il est possible de remonter à des informations sur le diffuseur et son altitude. Par la suite, les données de CALIOP permettront de déterminer à quelle altitude ont été détectés des aérosols venant de feux afin d'ajuster la hauteur d'injection des modèles.

2.3.4 AIRS

L'instrument Atmospheric Infrared Sounder (AIRS) a été lancé à bord de la deuxième plateforme en orbite polaire du système d'observation de la Terre (EOS), EOS-AQUA, en mai 2002. Il s'agit d'un spectromètre infrarouge imageur hyperspectral. Son objectif est de soutenir la recherche sur le climat et d'améliorer les prévisions météorologiques en observant et en caractérisant l'ensemble de la colonne atmosphérique, de la surface au sommet de l'atmosphère. Dans le chapitre 3, nous utilisons les moyennes zonales de CO de AIRS avec une résolution journalière de $1^\circ \times 1^\circ$. Ces données seront utilisées pour estimer la hauteur d'injection de CO par les feux.

2.4 Modèles numériques de modélisation de l'atmosphère

2.4.1 Les inventaires d'émission

CAMS (Copernicus Atmosphere Monitoring Service ; <http://atmosphere.copernicus.eu/>), le programme d'observation de la Terre de l'Union Européenne, fournit des données et des informations concernant la composition atmosphérique. Il combine les données de modélisation atmosphérique avec des observations pour fournir des services couvrant la prévision et la surveillance de la composition atmosphérique globale, la qualité de l'air en Europe, le forçage radiatif, la couche d'ozone, les radiations solaires, les flux de surface et les émissions. CAMS compile des inventaires d'émission qui servent de données d'entrée aux modèles atmosphériques. Afin de pouvoir fournir des estimations précises des flux d'émission pour les aérosols, les espèces chimiques et les gaz à effet de serre provenant des feux, le service opérationnel GFAS (Global Fire Assimilation System ; [Kaiser et al., 2012](#)) de CAMS a été développé et fournit des données depuis 2003. GFAS s'appuie sur les données de pouvoir radiatif du feu (FRP) de MODIS (voir section 2.3.1) en supposant que les émissions sont directement reliées à l'intensité d'un feu. Il fournit des estimations globales journalières de FRP ainsi que des émissions de matière sèche brûlée et de feux de biomasse pour 41 espèces avec une résolution de $0,1^\circ$. De fausses observations de FRP pouvant provenir de volcans, du torchage des plateformes pétrolières ou encore d'activités industrielles sont éliminées à l'aide d'un masque. Différents paramètres de hauteur d'injection sont aussi fournis : l'altitude du bas et du haut du panache, ainsi que la hauteur moyenne d'injection maximale. Pour définir la hauteur d'injection des émissions d'un feu, nous utilisons l'altitude du haut du panache ([Rémy et al., 2017](#)). GFAS utilise la classification de la végétation en 8 biomes de GFED (Global Fire Emissions Database) et les facteurs d'émission mis à jour d'[Andreae and Merlet \(2001\)](#).

L'inventaire MACCity ([Granier et al., 2011](#), [Diehl et al., 2012](#)) a été développé dans le cadre des projets MACC et CityZen fondés par la Commission Européenne. Il s'agit

d'une extension des émissions ACCMIP (Atmospheric Chemistry and Climate Model Inter-comparison Project, [Lamarque et al., 2010](#)) et du RCP 8.5 (Representative Concentration Pathway, [Vuuren et al., 2011](#); scénario de l'évolution du forçage radiatif conduisant à l'augmentation du forçage radiatif à la surface de la Terre de $8,5 \text{ W.m}^{-2}$ en 2100 par rapport à 1870). Cet inventaire a été développé afin de combler l'absence de base de données capable de fournir des émissions globales des principaux gaz troposphériques pour chaque année entre 1990 et 2011. Ainsi, MACCcity a été créé en se basant sur les émissions ACCMIP de 1990 et 2000 et sur les émissions fournies par le RCP 8.5 pour 2005, 2010 et 2020. Pour l'inventaire MACCcity anthropique, les émissions pour chaque espèce ont donc été interpolées linéairement pour chaque secteur d'activité et chaque année en se basant sur les années de référence de ACCMIP et RCP 8.5, soit 1990, 2000, 2005, 2010 et 2020. L'inventaire fournit aussi des émissions de feux de biomasse. Nous n'utilisons que les émissions anthropiques, et plus particulièrement les émissions par les bateaux sur une grille de résolution $0,5^\circ$ pour l'année 2016 (voir section [4.1.5.1](#)). Ces données sont téléchargeables via la base de données eccad.sedoo.fr.

EDGAR v4.2 (Emission Database for Global Atmospheric Research, edgar.jrc.ec.europa.eu; [EDGAR, 2011](#)) est un inventaire fournissant des données d'émissions anthropiques mondiales de gaz à effet de serre et de polluants. Les émissions sont fournies pour chaque espèce, chaque secteur d'activité et chaque pays de 1970 à 2008 sur une grille de résolution $0,1^\circ$. Les différents secteurs d'activité utilisés sont : transports non routiers, énergie pour les bâtiments, transport routier, combustion dans l'industrie manufacturière, industrie de l'énergie et incinérateur de déchets, transformation, production de pétrole et raffinage, industrie chimique du papier non-métallique, processus métalliques et feux de combustibles fossiles.

Un inventaire spécifique pour le torchage des plateformes pétrolières ([Deetz and Vogel, 2017](#)) a été développé afin d'être intégré dans le modèle de chimie COSMO-ART ([Vogel et al., 2009](#)) dans le but de servir à la prévision de la distribution des espèces chimiques et des aérosols pour la campagne DACCIWA. Cet inventaire, appliqué à l'Afrique du Sud-Ouest, combine les observations de nuit du satellite VIIRS (notamment la température de la source et la chaleur radiante) avec des équations de combustion et fournit des émissions pour CO, CO₂, NO et NO₂. Les émissions ont été créées pour les mois de juin et juillet 2014 et 2015. Cependant, il a été possible d'avoir accès à des émissions de CO, CO₂, SO₂, NO et NO₂ pour les mois de juin et juillet 2016 (communication personnelle avec K. Deetz, projet DACCIWA).

Enfin, un inventaire « DACCIWA » ([Junker and Lioussse, 2008](#)) disponible via la base de données eccad.aeris-data.fr a été créé dans le cadre de la campagne du même nom (Lioussse et al., en préparation). Il répertorie les flux d'émissions anthropiques de surface annuels couvrant la période 1990-2015 avec une résolution de $0,125^\circ$. Centré sur le continent

africain, l'inventaire fournit des émissions pour les NO_x , NMVOCs, SO_2 , BC et OC. L'objectif de cet inventaire est de mettre en place une nouvelle base de données en se basant sur des mesures de la consommation de carburant et sur de nouvelles mesures des facteurs d'émissions tout en incluant d'autres sources d'émission non négligeables en Afrique telles que le torchage des gaz des plateformes d'extraction pétrolière et l'incinération des déchets (Lioussse et al., 2017). Ce nouvel inventaire est l'occasion de réduire les incertitudes sur les émissions anthropiques en Afrique.

2.4.2 Les champs de vent

Les champs de vent horizontaux constituent l'un des paramètres d'entrée nécessaire à l'initialisation et au forçage des modèles de transport. Ils peuvent être fournis par le centre européen pour les prévisions météorologiques à moyen terme (en anglais, ECMWF : European Centre for Medium-range Weather Forecasts) sous forme de données prévisionnelles, analysées ou réanalysées. Seules les données réanalysées ERA-Interim (Dee et al., 2011) sont utilisées dans cette thèse. Elles sont issues d'une combinaison entre des données de modèles et des observations afin d'obtenir la meilleure estimation possible des paramètres atmosphériques. Les données fournies au modèle FLEXPART doivent être sur les niveaux du modèle de l'ECMWF qui sont définis par un système de coordonnées hybrides. La conversion des coordonnées hybrides en coordonnées de pression est donnée par $p_k = A_k + B_k p_s$ avec p_s la pression de surface et A_k et B_k les coefficients au $k^{\text{ième}}$ niveau du modèle choisis de telle sorte que les niveaux les plus proches du sol suivent la topographie tandis que les niveaux les plus hauts coïncident avec les niveaux de pression. Pour les études des campagnes, les champs de vent sont extraits toutes les 3 h (analyses à 0000, 0600, 1200 et 1800 UTC combinées avec les prévisions opérationnelles à 0300, 0900, 1500 et 2100 UTC) avec une résolution horizontale de $0,5^\circ \times 0,5^\circ$ et une résolution verticale comprenant 91 niveaux pour la campagne SHIVA et 137 niveaux pour les campagnes GLAM et APSOWA.

2.4.3 Le modèle FLEXPART

FLEXPART (pour FLEXible PARTicle dispersion model) est un modèle global lagrangien de dispersion et de transport de particules permettant le calcul des trajectoires de masses d'air. Le modèle a été développé par Andreas Stohl (Stohl et al., 2005) au NILU (Norwegian Institute for Air Research). FLEXPART est un modèle dit en « open source », directement disponible sur le site du modèle (<https://www.FLEXPART.eu>). FLEXPART est un modèle largement utilisé au sein de la communauté scientifique pour, par exemple l'étude du transport des feux de biomasse (Cristofanelli et al., 2013), l'étude climatologique du transport de masses d'air au sein de la troposphère (Forster et al., 2004) ou encore l'étude des intrusions stratosphériques au sein de la troposphère (Leclair De Bellevue et al., 2006).

FLEXPART traite l'advection et la diffusion turbulente en calculant la trajectoire d'un grand nombre de particules relarguées (par particules, on entend ici des petits paquets d'air). Il permet le calcul de trajectoires en avant pour simuler la dispersion de traceurs atmosphériques depuis leurs sources (mode « forward »), ou en arrière (rétro-trajectoire) (Seibert and Frank, 2004). Ces rétro-trajectoires permettent le suivi d'un traceur atmosphérique en remontant le temps. Nous désignerons par la suite ce type de simulation comme étant en mode backward. Ces deux modes de simulation sont décrits plus en détails dans la suite de cette partie.

Météorologie dans le modèle

FLEXPART est un modèle dit « off-line » : il a besoin de données météorologiques afin d'effectuer ses calculs de transport. Pour nos études, FLEXPART est contraint par les champs de vent du centre européen ECMWF décrit en section 2.4.2. Les paramètres utiles à son fonctionnement sont indiqués dans le tableau 2.3 ci-dessous.

Données de surface (2D)	
Pression	Pa
Vitesse du vent zonal u et méridien v	m.s^{-1}
Température	K
Autres données (2D)	
Précipitations convectives et à grande échelle	kg.m^{-2}
Flux de chaleur sensible	W.m^{-2}
Température du point de rosée	K
Autres données (3D)	
Pression	Pa
Vitesse des composantes u, v et w du vent	m.s^{-1}
Température	K
Humidité spécifique	$\text{kg}_{\text{eau}}/\text{kg}_{\text{air}}$

Tableau 2.3 — Récapitulatif des données 2D et 3D nécessaires au fonctionnement de FLEXPART.

Transport dans le modèle

Afin de représenter le transport par les tourbillons liés aux turbulences mécaniques (appelés eddies en anglais), les champs de vent globaux sont surposés aux perturbations stochastiques calculées à partir des équations de Langevin (Stohl and Thomson, 1999). La représentation du transport convectif nécessite de redistribuer les particules dans toute la colonne atmosphérique. Pour cela, FLEXPART combine les effets de convection à grande échelle des vents ECMWF avec un schéma de convection sous-maille. Cette paramétrisation du transport convectif sous-maille a été développée par Emanuel and Živković Rothman (1999) et est basée sur les champs de température et d'humidité. La paramétrisation et la validation du transport convectif implémenté dans FLEXPART sont décrites dans Forster et al. (2007). L'activation de la convection lors des simulations est optionnelle.

Temps de vie des traceurs dans le modèle

Au niveau chimique, les seules réactions possibles le long des trajectoires sont celles avec le radical hydroxyle OH (concentrations du modèle GEOS-CHEM moyennées sur 1 mois avec une résolution de $3^\circ \times 5^\circ$; Bey et al., 2001). Pour cela, il est nécessaire de donner au modèle la constante de vitesse k à 298K, puis une correction selon la température est appliquée en prenant une énergie d'activation E égale à 10000 J.mol^{-1} selon l'équation 2.16 :

$$k(T) = k(298) \times \exp\left(\frac{E}{R} \times \left(\frac{1}{298,15} - \frac{1}{T}\right)\right) \quad (2.16)$$

Des processus de dépôt (sec ou humide) sont aussi inclus. Le dépôt humide se traduit par le lessivage de l'espèce dans le nuage et en dessous. Le lessivage dans le nuage suit le schéma de Hertel et al. (1995) et dépend principalement du taux de précipitation I . Le lessivage sous les nuages dépend de I et de deux facteurs propres à chaque espèce : A le coefficient de lessivage pour $I=1 \text{ mm.h}^{-1}$ et B la dépendance de l'espèce à I . Le dépôt sec se traduit par une vitesse de dépôt des espèces. Pour les gaz, elle dépendra du type de surface (forêt, océan ...) définie dans FLEXPART. Cette vitesse sera la vitesse de transfert des gaz vers la surface de dépôt. Trois paramètres sont à fixer : D la vitesse de diffusion des espèces dans l'air, H la constante de Henry effective et f_0 la réactivité des espèces par rapport à l'ozone (compris entre 0 et 1). Le dépôt sec pour les particules se traduit par un effet de la gravité. Il dépend de la densité des particules (ρ) et du diamètre moyen des particules (d_{quer}) ainsi que l'écart type de ce diamètre (d_{sig}).

La plupart des paramètres sont fixés par défaut dans les fichiers, traduisant l'apport des utilisateurs au modèle FLEXPART au fil des mises à jour. L'ensemble des paramètres utilisés pendant notre étude est regroupé dans le tableau 2.4.

Traceurs	Réaction avec OH	Dépôt humide		Dépôt sec		
	$k(298K) \text{ (cm}^3.s^{-1}\text{)}$	A	B	D	H	f_0
CO	$1,5 \times 10^{-13}$	-	-	-	-	-
NO ₂	$4,1 \times 10^{-11}$ <i>Atkinson et al. (2004)</i>	1×10^{-5}	0,62	1,6	1×10^{-2}	0,1
SO ₂	-	-	0,62	2,0	1×10^5	0
	$k(298K) \text{ (cm}^3.s^{-1}\text{)}$	A	B	rho	dquer	dsig
Aérosols	-	2×10^{-7}	0,62	$1,4 \times 10^3$	$2,5 \times 10^{-7}$	1,25

Tableau 2.4 — Récapitulatif des paramètres utilisés dans FLEXPART pendant notre étude. Lorsqu’aucune référence n’est spécifiée, alors les grandeurs utilisées sont les valeurs par défaut dans FLEXPART.

Architecture du modèle

Différents fichiers d’entrée sont intégrés dans la partie options du système (figure 2.7) qui englobent le fichier COMMAND, RELEASES, SPECIES, AGECLASSES et OUTGRID. Le fichier COMMAND permet d’établir la période de simulation, de définir le pas de temps de calcul, d’activer certaines options de transport (convection par exemple) et de définir l’unité des grandeurs en sortie du modèle. Le fichier RELEASES se compose du nombre de points de relargage des particules avec leurs coordonnées spatiales (longitude, latitude et altitude) et temporelles et le nom des espèces relarguées. Pour nos études, dans le cas des simulations en backward, le fichier RELEASES est créé de façon à suivre la trajectoire de l’avion lors des campagnes, c’est-à-dire que les particules sont relarguées à intervalles réguliers le long de la trajectoire de l’avion. Pour nos études en mode forward, la source de particules consiste en un point d’émission (un bateau ou une plateforme pétrolière par exemple). C’est dans le dossier SPECIES que sont définies les propriétés physico-chimiques de nos particules : constante de vitesse de réaction avec OH, paramètres de dépôt sec et humide. Il est également possible de calculer l’âge des masses d’air en activant l’option « lagespectra » dans le fichier COMMAND et en définissant les classes d’âge dans AGECLASSES. Pour cela, les concentrations sont séparées en contribution de particules d’âges différents, l’âge étant défini comme le temps écoulé depuis le relargage de ces particules. Enfin, le fichier OUTGRID permet de définir la grille pour les données de sortie du modèle.

Simulation en mode backward et postprocessing

L’indication du lieu d’où venait la parcelle d’air (la source) avant qu’elle n’atteigne l’endroit où elle est mesurée (le récepteur) est donc une aide quant à la détermination de sa source d’émission. En mode backward, la sensibilité du récepteur à la source est directement

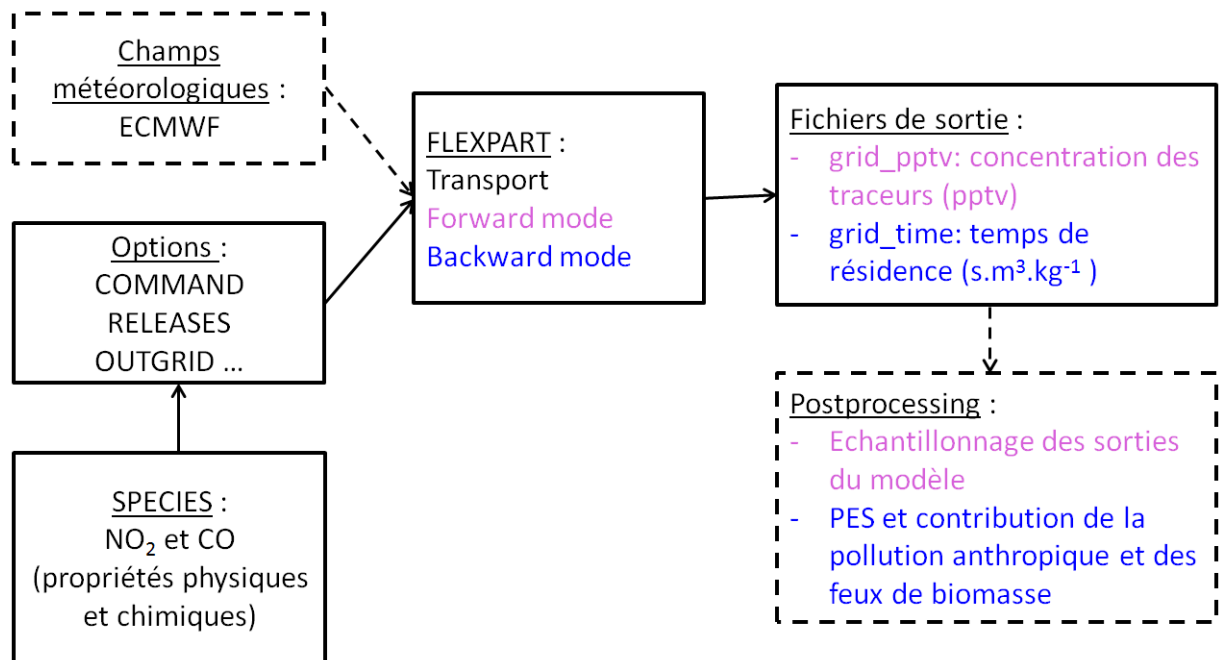


Figure 2.7 — Schéma simplifié de la structure de FLEXPART dans le cadre de nos études. Les encadrés pointillés représentent les données ou procédés externes au modèle. Le code couleur bleu concerne les procédés propres au mode backward tandis que le code couleur rose concerne ceux des simulations en mode forward.

reliée au temps de résidence des particules. Ce champ à 4 dimensions (3 dimensions spatiales et 1 dimension temporelle) nous renseigne sur l'endroit où la masse d'air échantillonnée a été sensible aux émissions de surface, définies comme la PES (Potential Emission Sensitivity). En effet, en considérant que la plupart des émissions proviennent de la surface, la PES nous indique donc où et pendant combien de temps la masse d'air s'est rapprochée du sol où elle a pu potentiellement se charger en émissions. Selon le type d'émissions, la définition de surface ne sera pas la même. En effet, pour des émissions du type urbain par exemple, une couche de surface de 200 m sera prise alors que pour des feux de biomasse, l'impact des émissions sur l'atmosphère dépend de la hauteur d'injection. Ainsi, des tests seront effectués par la suite pour augmenter la hauteur de la couche sensible aux émissions dans le cas de feux de biomasse (chapitre 3). FLEXPART calcule le temps de résidence des particules sur une grille régulière (définie dans OUTGRID). Afin de connaître la contribution des émissions au récepteur (lieu de mesure), la PES doit être couplée aux flux de masse des émissions dans la grille de sortie. Une représentation schématique de ce couplage est donnée figure 2.8. Les différents inventaires d'émission utilisés pour ce couplage ont été décrits précédemment dans la section 2.4.1. Tout d'abord, chaque inventaire, possédant sa propre résolution, doit préalablement être interpolé selon la grille de sortie de FLEXPART. Les émissions surfaciques, en $\text{kg.m}^{-2}.\text{s}^{-1}$, sont calculées selon un volume ($\text{kg.m}^{-3}.\text{s}^{-1}$) vis-à-vis de la couche atmosphérique souhaitée (en m) afin de pouvoir les coupler avec la PES (en $\text{s.m}^3.\text{kg}^{-1}$) calculée par FLEXPART et, ainsi, obtenir une contribution sans unité que l'on convertit par un facteur

10^9 en ppbv. Toutes ces étapes sont réalisées pour chaque jour puisqu'il s'agit de coupler les émissions journalières avec la PES calculée pour chaque jour de rétrotrajectoire.

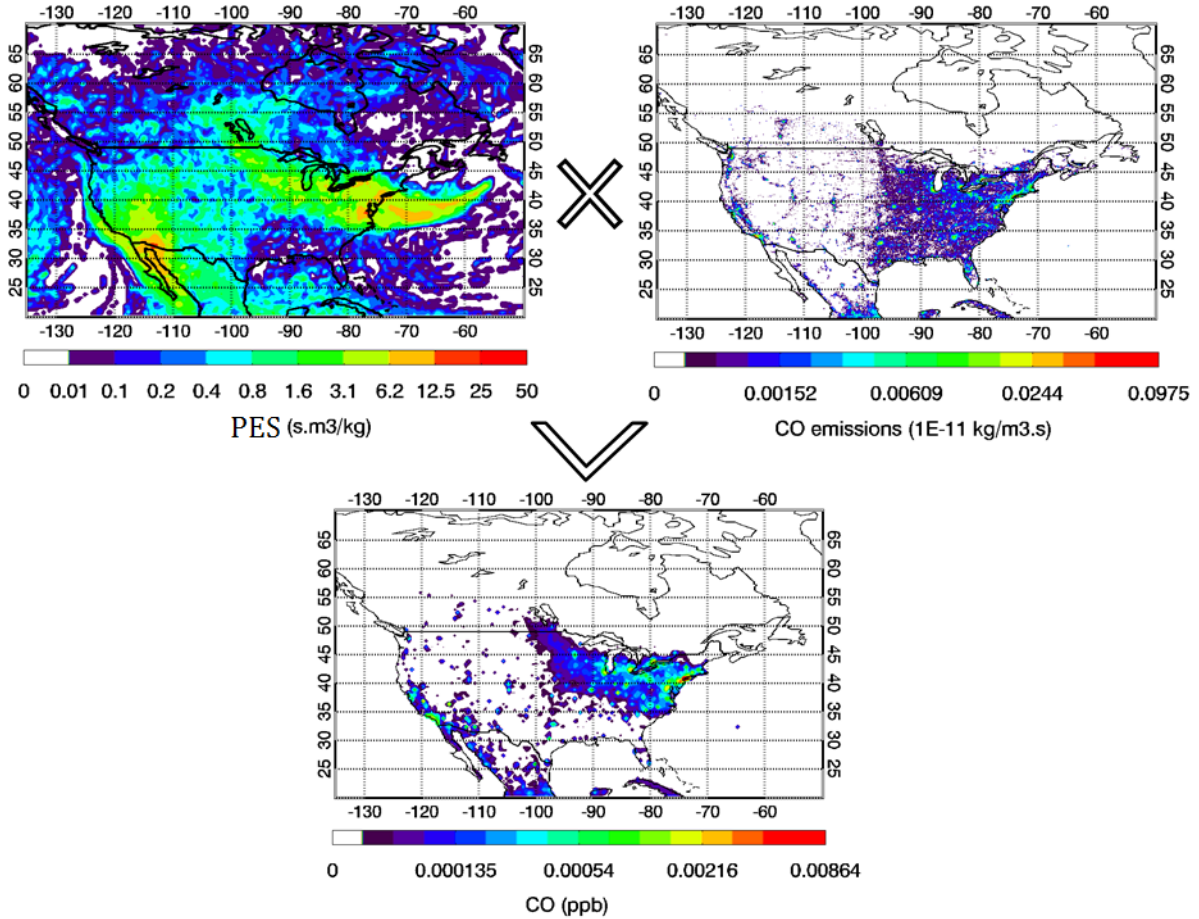


Figure 2.8 — Représentation du couplage entre la PES (en $\text{s.m}^3/\text{kg}$) et les émissions de CO (en $\text{kg}/\text{m}^3.\text{s}$) de l'inventaire EDGAR donnant la contribution totale du CO (en ppbv).

Simulation en mode forward et postprocessing

Par opposition au mode backward, le mode forward simule la dispersion des traceurs depuis la source vers le récepteur. Ces simulations sont utiles pour visualiser et comprendre la dispersion des émissions, depuis la source, en lien avec les conditions synoptiques. Pour ces simulations, chaque particule est associée à une masse, spécifiée par l'utilisateur, relarguée pendant le temps de la simulation et donnant donc un flux. Les particules relarguées suivent donc la direction du vent. Après un temps donné, il est possible de compter ces particules sur la grille de sortie et d'estimer, soit les concentrations, soit les rapports de mélange de la source. Généralement, les modèles fournissent en sortie des données régulièrement espacées sur une grille, tandis que les observations utilisées pour confronter les résultats du modèle se trouvent à des emplacements aléatoires sur la grille du modèle. Il est donc nécessaire d'interpoler les simulations du modèle depuis leur point fixe vers les mesures. Cette interpolation vaut pour

les coordonnées géographiques de longitude et latitude mais aussi pour le temps et les niveaux d'altitude.

Récapitulatif général des simulations par campagne

La version 9.0 du modèle FLEXPART est utilisée pour nos études, utilisant les champs de vent de l'ECMWF ERA-Interim à une résolution spatiale de $0,5^\circ \times 0,5^\circ$. L'utilisation d'une approche lagrangienne permet d'évaluer l'influence que peut avoir le transport sur la distribution des gaz traces et des aérosols.

Dans le chapitre 3, FLEXPART a été utilisé afin de déterminer l'origine des fortes concentrations mesurées au niveau de la Sardaigne et a permis de mettre en évidence le transport intercontinental. Pour cette étude, le transport de CO, d'un traceur inerte (TI) et des aérosols ont été simulés. Plusieurs cas d'étude différents sont présentés dans le chapitre 4. Dans le premier cas, FLEXPART a servi à déterminer l'origine des feux mesurés lors des campagnes APSOWA et SHIVA avec CO comme traceur alors que, dans le deuxième cas, son utilisation a permis de quantifier les émissions de sources individuelles locales, provenant notamment du trafic maritime et des plateformes pétrolières avec NO₂ comme traceur. Dans le tableau 2.5 sont récapitulées la configuration générale du modèle ainsi que les différentes options activées ou non en fonction de chaque campagne. Les propriétés physico-chimiques de chaque traceur sont définies dans le tableau 2.4 dans la partie « Temps de vie des traceurs dans le modèle ». Selon les campagnes, le modèle a été utilisé à la fois en mode forward et backward. Un code couleur est donc appliqué pour pouvoir faire la distinction entre les deux types de simulation. Globalement, au cours de cette thèse, une part importante du travail a été de développer les outils nécessaires au travail de postprocessing des sorties de modèle FLEXPART en utilisant le langage informatique IDL.

	GLAM	APSOWA	SHIVA
Mode	Backward sur 20 jours	Backward sur 20 jours Forward pendant quelques heures	Backward sur 7 jours Forward pendant 2h
Convection	Activée		
Inventaires	GFAS EDGAR	GFAS Deetz and Vogel, 2017	EDGAR Dalsoren et al., 2009
Résolution de la grille de sortie du modèle	$0,5^\circ \times 0,5^\circ$	$0,5^\circ \times 0,5^\circ$ $0,01^\circ \times 0,01^\circ$	$0,25^\circ \times 0,25^\circ$ $0,01^\circ \times 0,01^\circ$
Traceurs	CO, TI, BC	CO NO ₂	TI, CO CO, NO ₂ , SO ₂

Tableau 2.5 — Récapitulatif des différentes options choisies pour le lancement des simulations des campagnes GLAM, APSOWA et SHIVA. Le code couleur bleu désigne toutes les caractéristiques des simulations en mode backward tandis que le code couleur rose représente les caractéristiques des simulations en mode forward.

2.4.4 Le modèle MOCAGE

MOCAGE (MOdèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle; Josse et al., 2004, Sič et al., 2015, Guth et al., 2016) est un modèle 3D stratosphérique et troposphérique de chimie transport (CTM en anglais) basé sur un schéma de transport semi-lagrangien. Son utilisation permet de décrire l'évolution de la composition atmosphérique aussi bien pour les gaz que pour les aérosols. Il s'agit d'un modèle off-line, ce qui signifie que le modèle a besoin de forçages météorologiques externes basés sur les champs de vent et d'humidité des analyses du modèle opérationnel de Météo-France, ARPEGE (Courtier et al., 1991). Les simulations MOCAGE peuvent se faire avec plusieurs grilles imbriquées. La configuration choisie pour l'étude de la campagne GLAM (chapitre 3) correspond à une résolution horizontale pour le domaine global de $2^\circ \times 2^\circ$, avec 47 niveaux verticaux. Un domaine régional imbriqué défini avec une résolution horizontale de $0,2^\circ \times 0,2^\circ$ est centré sur le bassin Méditerranéen. Différents inventaires d'émission sont utilisés pour le domaine global dont le Global Emissions InitiAtive (GEIA; Guenther et al., 1995) et l'inventaire MACCity (Lamarque et al., 2010, Granier et al., 2011, Diehl et al., 2012) pour les émissions naturelles et anthropiques, respectivement. Pour le domaine régional, les émissions anthropiques proviennent de l'inventaire Monitoring Atmospheric Composition and Climate - Interim Implementation (MACC II; Kuenen et al., 2011), les émissions de feux de biomasse sont issues du Global Fire Assimilation System (GFAS v1.1; Kaiser et al., 2012) et les émissions naturelles viennent de l'inventaire GEIA. Le schéma chimique complet utilisé pour les espèces gazeuses est RACMOBUS, combinaison de deux schémas chimiques : RACM (Stockwell et al., 1997) pour la troposphère et REPROBUS (Lefèvre et al., 1994) pour la stratosphère. La paramétrisation du transport par convection est celle de Bechtold et al. (2001). Cependant, aucun phénomène de pyroconvection n'est intégré au modèle. Pour pallier cela, des hauteurs d'injection sont fixées par bandes de latitudes (Sič et al., 2015) :

Bandes de latitudes	Hauteurs d'injection	Domaines
60° - 90°	6000 m	Boréal
30° - 60°	4000 m	Moyennes Latitudes
0° - 30°	1000 m	Tropical

**
*

Pollution aux moyennes latitudes : cas du bassin Méditerranéen

La région méditerranéenne subit une pression anthropique croissante, accompagnée d'un doublement de la population pour les pays de l'Afrique du Nord et du Proche-Orient attendu d'ici la moitié du 21^e siècle. S'ajoute à cela une topographie particulière (par exemple, la présence de la chaîne des Alpes ou du désert du Sahara) qui induit des processus locaux affectant le climat méditerranéen. Des simulations de modèles de circulation générale (GCM) et de modèles régionaux de climat (RCM) montrent une diminution des précipitations, associée à une augmentation des températures pendant l'été au-dessus des terres au niveau du bassin méditerranéen ([Giorgi and Lionello, 2008](#)). C'est dans ce contexte que s'inscrit la campagne aéroportée GLAM (Gradient in Longitude of Atmospheric constituents above the Mediterranean basin), incluse dans le projet ChArMEx (Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment) qui a pour but d'estimer l'état présent et futur de la composition atmosphérique et de ses impacts sur le bassin méditerranéen.

Ainsi, la première partie de ce chapitre décrit la campagne avec ses objectifs et les instruments impliqués. Les deux parties suivantes se focalisent sur deux vols pour lesquels des concentrations élevées en CO et aérosols ont été mesurées. Lors de ces deux études de cas, nous avons pu mettre en évidence, à l'aide du modèle FLEXPART (FLEXible PARTicle dispersion model), le transport à longue distance de polluants provenant de feux de biomasse au niveau de la Sibérie et du continent nord-américain impactant le bassin méditerranéen. Ces résultats ont pu être validés avec le modèle de chimie transport MOCAGE (MOdèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle).

Cette étude a fait l'objet d'une publication soumise à Atmospheric Chemistry and Physics ([Brocchi et al., 2017](#)).

3.1 Description de la campagne GLAM

3.1.1 Objectifs du projet ChArMEx

Le projet international ChArMEx (Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment ; <http://charmex.lsce.ipsl.fr>) fait partie intégrante du programme interdisciplinaire MIS-TRALS (Mediterranean Integrated Studies at Regional and Local Scales). Le projet, lancé en 2010, a déjà connu plusieurs campagnes de mesures intensives pendant les étés 2012, 2013 et 2014. Le but du projet est de réaliser un inventaire aussi complet que possible des espèces présentes dans l'atmosphère et de leur transformation lors du transport des masses d'air au niveau du bassin Méditerranéen afin de mieux comprendre les interactions entre pollution atmosphérique et climat. Afin de répondre à cette problématique, trois objectifs scientifiques ont été décidés :

1. Évaluer l'environnement atmosphérique au niveau de la Méditerranée via l'étude des processus chimiques et dynamiques impliqués,
2. Quantifier l'impact des aérosols et des gaz à faible durée de vie sur les écosystèmes, sur la qualité de l'air, sur le climat régional et sur le bilan radiatif,
3. Prévoir les évolutions futures de l'environnement méditerranéen dans un contexte de changement climatique.

Le choix du bassin Méditerranéen (BM) comme zone d'étude n'est pas anodin. La Méditerranée est considérée comme un laboratoire naturel représentatif des effets du réchauffement climatique et de la qualité de l'air de toute l'Europe. D'autres campagnes comme MINOS (Mediterranean Intensive Oxydant Study ; [Ladstätter-Weissenmayer et al., 2003](#), [Scheeren et al., 2003](#)) en août 2001 ont montré que la pollution de l'air au-dessus du BM dépasse souvent les concentrations observées sur une grande partie de l'Europe durant l'été. De plus, en regardant les projections pour le changement climatique, le BM est considéré comme une zone sensible et a été identifié comme l'un des plus importants « hot-spots » ([Giorgi and Lionello, 2008](#)). Elle est une zone de convergence des masses d'air venant des continents limitrophes (Europe et Afrique) mais aussi d'Asie, et est en cela soumise à différentes sortes de pollution :

- d'origine naturelle comme les poussières désertiques en provenance du Sahara, les émissions par les feux de biomasse ou les volcans et les émissions biogéniques et océaniques.
- d'origine anthropique, venant principalement d'Europe où l'on trouve de grandes capitales, ou venant d'Asie via l'anticyclone de la mousson asiatique.

Le climat ensoleillé, chaud et sec favorise l'augmentation des émissions (pas de pluie pour lessiver), des réactions photochimiques qui entraînent la formation de polluants secondaires et une recirculation des masses d'air continental entraînant une augmentation des concentrations en O_3 et en aérosols. Une description plus détaillée de la météorologie et des caractéristiques régionales du BM sera donnée en section [3.1.4](#).

3.1.2 La campagne de terrain GLAM

La campagne GLAM (Gradient in Longitude of Atmospheric constituents above the Mediterranean basin) (Ricaud et al., 2017) s'est déroulée en août 2014 dans le cadre du projet ChArMEx (Chemistry-Aerosol MEditerranean Experiment). Cette campagne aéroportée avait pour but d'estimer la variabilité des gaz à effet de serre et polluants et des aérosols entre les versants est et ouest du bassin méditerranéen. Comme expliqué par Ricaud et al. (2014), un gradient de concentration est observé, conséquence d'une météorologie spécifique au bassin méditerranéen, entre 5 et 10 km d'altitude, enrichissant le bassin ouest de gaz tels que CH_4 , CO et O_3 pour toutes les saisons, sauf l'été. Inversement, pendant l'été, c'est la mousson asiatique qui va indirectement favoriser l'enrichissement du bassin est de la Méditerranée en polluants et gaz à effet de serre (figure 3.1).

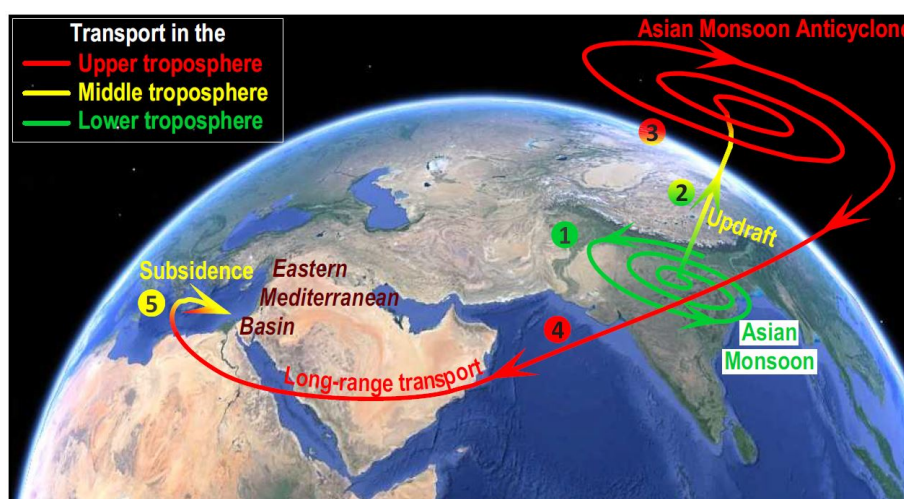


Figure 3.1 — Représentation schématique en 5 étapes des processus impactant les concentrations en polluants dans la moyenne et haute troposphère au-dessus du versant est du BM. (1) Piégeage des polluants dans la mousson asiatique. (2) Élévation de ces polluants jusque dans la haute troposphère. (3) Accumulation des polluants dans la haute troposphère. (4) Transport des polluants à longue distance via l'anticyclone de la mousson asiatique au-dessus du Moyen-Orient et de l'Afrique du nord. (5) Phénomène de subsidence entraînant une accumulation des polluants dans la moyenne troposphère au niveau du versant est du BM (d'après Ricaud et al., 2014)

En effet, certains polluants piégés dans la mousson asiatique (étape 1) vont ensuite être élevés et s'accumuler dans la haute troposphère (étapes 2 et 3). À haute altitude, l'anticyclone de la mousson asiatique va transporter sur une longue distance ces polluants avant de les redistribuer au niveau du Moyen-Orient et de l'Afrique du nord (étape 4). Suite à un phénomène de subsidence au-dessus du versant est du bassin méditerranéen, on observe une accumulation des polluants et donc une augmentation des concentrations dans la moyenne troposphère (étape 5). Pour cette campagne, 8 vols, représentés en figure 3.2, ont eu lieu du 6 au 10 août 2014 pour effectuer un transect aller-retour entre Toulouse et Larnaca (Chypre).

Parmi ces 8 vols, on différencie les quatre premiers vols (vols 1 à 4) avec une altitude

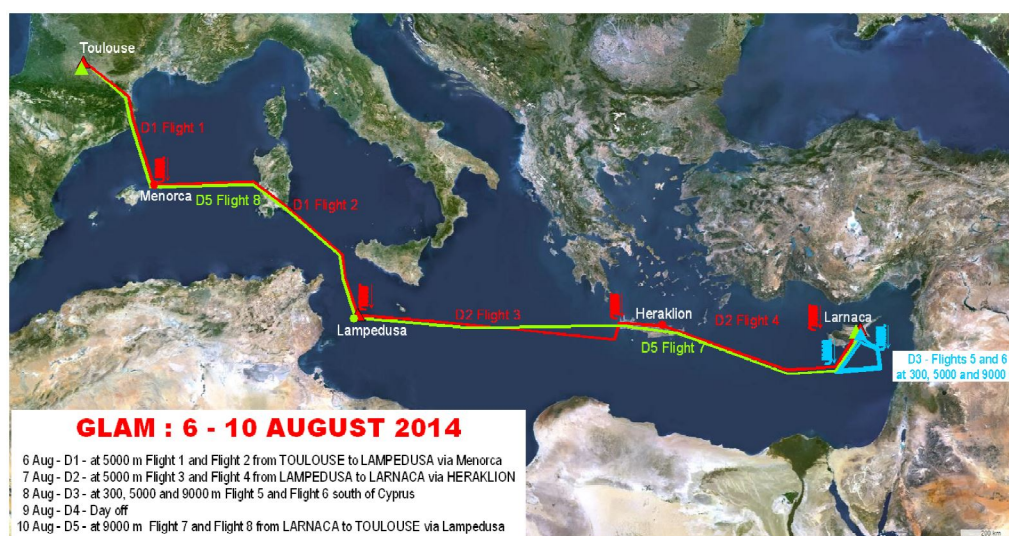


Figure 3.2 — Schéma des 8 vols (en rouge pour l’aller, en vert pour le retour) et des profils verticaux (spiralettes rouges et bleues) tels qu’effectués durant la campagne GLAM.

de l’avion à environ 5400 m (500 hPa) des deux derniers vols retour (vols 7 et 8) à une altitude de 9700 m (300 hPa). De plus, deux vols intermédiaires (vols 5 et 6) ont permis de sonder l’atmosphère entre la surface et environ 12 km d’altitude. Un descriptif plus complet de chaque vol est donné dans le tableau 3.3.

Les différents instruments présents à bord du Falcon-20 de SAFIRE (Service des Avions Français Instrumentés pour la Recherche Scientifique) ont permis de mesurer des espèces telles que O_3 , CO , CH_4 , N_2O , CO_2 et H_2O . L’instrument SPIRIT, intégré dans sa baie (ou rack) avion et pour lequel un parcours optique a été fixé à 8388 cm, servait aux mesures de CO , CH_4 , N_2O et CO_2 . Les fenêtres spectrales pour ces espèces ont été décrites en section 2.2.3. Finalement, les mesures de CO_2 et N_2O n’ont pas été utilisées. Pour CO_2 , deux problèmes inédits se sont présentés durant la campagne. Premièrement, un fort gradient de température entre le plancher de l’avion (à des températures négatives) et 1 mètre au-dessus (à des températures positives) a rendu inhomogène la température de la cellule. Deuxièmement, la raie d’absorption de CO_2 , espèce la plus absorbante, avait été choisie de façon à être forte afin d’avoir la meilleure précision possible (parcours de 83,88 m choisi afin de limiter l’absorption à environ 70% pour le CO_2). Cependant, cela a mené à des absorptions trop importantes et des problèmes de non-linéarité des détecteurs. Pour N_2O , l’inhomogénéité de température et la longueur restreinte du parcours ont dégradé la précision. Les mesures d’ O_3 proviennent de l’instrument MOZART décrit en section 2.2.4. Les aérosols ont été mesurés par deux instruments : le PCASP et l’UHSAS (voir section 2.2.4). Les mesures des paramètres géophysiques tels que la température de l’air, la pression ou les données de vent proviennent des instruments opérés par SAFIRE.

Toutes les données utilisées dans la suite sont corrigées en air sec pour être en accord avec les mesures de MOZART faites en air asséché. Pour SPIRIT, les données de vapeur d’eau

DATE	FLIGHT # (*)	TYPE	START		END	
			TIME UTC	LOCATION	TIME UTC	LOCATION
06/08/2014	F1	Transect (alt: 5.4 km)	07h14mn01	Toulouse	08h14mn02	Minorca
	P1	Profile 0-12.2 km	08h36mn58	Minorca	09h10mn36	Minorca
	F2	Transect (alt: 5.4 km)	11h10mn43	Minorca	12h48mn00	Lampedusa
	P2	Profile 0-12.2 km	13h11mn05	Lampedusa	13h52mn27	Lampedusa
07/08/2014	F3	Transect (alt: 5.4 km)	07h30mn26	Lampedusa	08h30mn27	Heraklion
	P3	Profile 0-12.8 km	09h57mn14	Heraklion	10h47mn16	Heraklion
	F4	Transect (alt: 5.4 km)	12h34mn20	Heraklion	13h34mn21	Cyprus (near Paphos)
	P4	Profile 0-11.6 km	14h23mn00	Cyprus (near Tobal)	15h00mn50	Cyprus (near Tobal; NW off Paphos)
	F4	Transfert (alt: 3.0 km)	15h00mn50	Cyprus (Tobal)	15h36mn14	Larnaca
08/08/2014	F5	Transect (alt: 5.4 km)	10h04mn55	Larnaca	11h04mn56	Larnaca
	P5	Profile 0-13.0 km	12h02mn30	25.00°N, ~34.75°E	12h44mn28	25.00°N, ~34.75°E
	F6	Transect (alt: 5.4 km)	14h43mn55	Larnaca	16h43mn56	Larnaca
	P6	Profile 0-13.0 km	16h52mn18	APLON 33.15°N, 32.10°E	17h19mn39	APLON 33.15°N, 32.10°E
09/08/2014			DAY OFF			
10/08/2014	F7	Transect (alt: 9.7 km)	07h04mn28	Larnaca	10h16mn35	Lampedusa
	F8	Transect (alt: 9.7 km)	12h14mn14	Lampedusa	14h32mn44	Toulouse

* seuls les 6 profils verticaux (P1 à P6) atteignant une altitude de 12 km sont listés dans le tableau.

Les profils verticaux entre le décollage et l'altitude du transect ou entre l'altitude du transect et l'atterrissage n'ont pas été notés ici.

Figure 3.3 — Dates, lieux et altitudes des vols lors de la campagne aéroportée GLAM (d'après [Ricaud et al., 2017](#)).

servant à la correction des rapports de mélange des espèces en air sec proviennent d'une raie de H_2O^{18} à $1249,59 \text{ cm}^{-1}$, soit sur la même fenêtre spectrale que CH_4 et N_2O .

3.1.3 Comparaison entre les mesures de SPIRIT et la station de surface calibrée WMO/GAW

Pour des raisons de sécurité à bord de l'avion, il n'a pas été possible d'emmener de bouteille de gaz pour étalonner l'instrument SPIRIT avant et après chaque vol. La présence d'une station de mesure de surface ($35,52^\circ\text{N}$, $12,63^\circ\text{E}$, 45 m d'altitude au-dessus du niveau de la mer : asl (above sea level)) calibrée située à 2,5 km au nord-ouest de l'aéroport de Lampedusa fut une opportunité pour confirmer la qualité des mesures aéroportées effectuées lors de GLAM. Les rapports de mélange de CO en surface sont mesurés quotidiennement au niveau de cette station par l'instrument WMO/GAW (World Meteorological Organization/Global Atmosphere Watch) Picarro. La comparaison entre les valeurs de CO est possible à condition

que la masse d'air échantillonnée soit la même à la fois pour la station et pour l'avion. Pour valider cette condition, nous utilisons les champs de vent réanalysés ERA-Interim d'ECMWF extraits à 6h d'intervalle (0000, 0600, 1200, 1800 UTC) et combinés avec des prévisions toutes les 3h (0300, 0900, 1500, 2100 UTC) avec une résolution de $0,125^\circ \times 0,125^\circ$ et sélectionnés aux dates où l'avion se situe au voisinage de la station. Deux atterrissages et décollages ont eu lieu à l'aller, le 6 et le 7 août, et lors du retour, le 10 août. Dans le premier cas, le vent venait du nord-ouest, l'avion a donc décollé et atterri dans le sens du vent, tandis que l'on observe le contraire le 10 août (vent en provenance du sud-est). Environ 10 secondes de mesures du SPIRIT sont sélectionnées pour respecter les conditions de vent (dans le vent et contre le vent) dans une bande d'1 km de largeur, correspondant à des altitudes en-dessous de 110 m asl, c'est-à-dire toujours dans la couche limite atmosphérique (650 m asl pour le 6 août et 500 m asl pour le 10 août, figure 3.4), dont la hauteur est définie comme le niveau où le gradient vertical de température potentielle est maximal (Stull, 1988, Seidel et al., 2010).

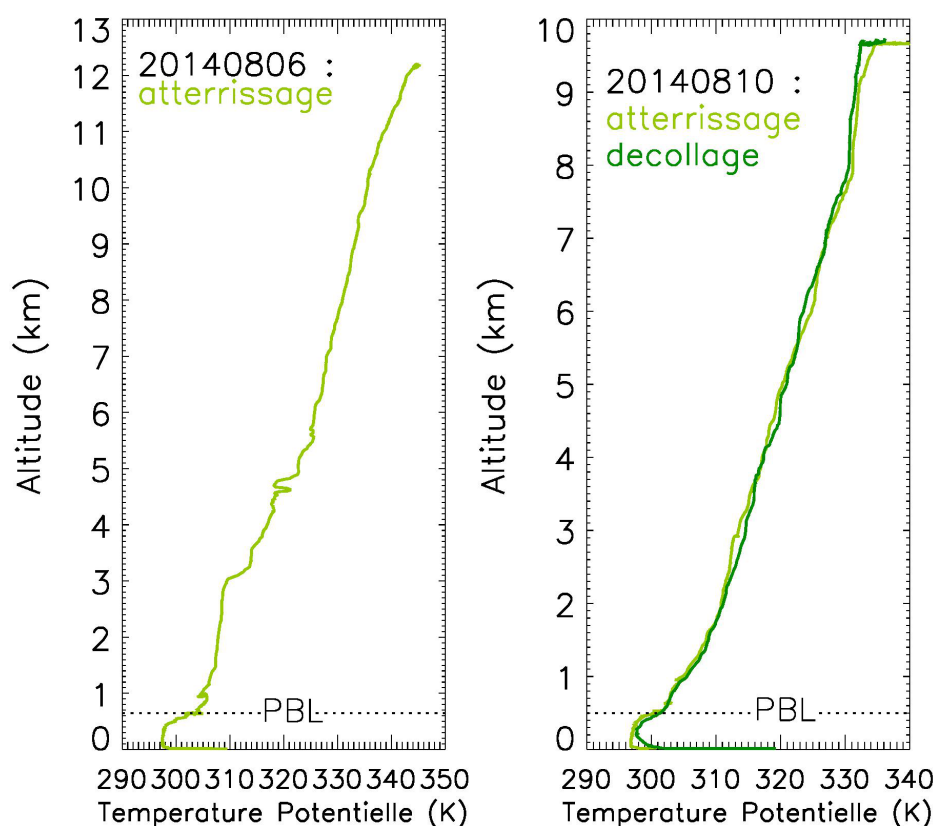


Figure 3.4 — Profil vertical de la température potentielle (à gauche) lors de l'atterrissage de l'avion le 6 août 2014, (à droite) lors de l'atterrissage et du décollage de l'avion le 10 août 2014. La position de la couche limite (PBL) est représentée à l'aide des pointillés noirs.

Les résultats sont regroupés dans le tableau 3.1 et montrent d'excellents accords entre les mesures de CO du SPIRIT et celles de la station de surface : pas de différence significative (-3,5 à +5,1 ppbv) observée étant donné les incertitudes totales estimées données pour les deux instruments (4,7 à 7,9 ppbv). Pour le décollage du 7 août, le SPIRIT n'était pas prêt

pour effectuer une telle comparaison.

Date	Localisation de l'avion	Vmr de CO (station de surface, ppbv)	Vmr de CO (avion, ppbv)	Différence des vmr de CO (station de surface-avion)
6 août, 13 :52 UTC	35,501°N - 12,638°E 84 ± 21 m asl	115,9 ± 5,6*	119,4 ± 4,7	-3,5 ± 10,3
10 août, 10 :17 UTC	35,498°N - 12,621°E 20 ± 2 m asl	115,9 ± 7,9*	110,8 ± 4,7	5,1 ± 12,6
10 août, 12 :14 UTC	35,500°N - 12,646°E 110 ± 1 m asl	113,3 ± 6,5*	109,8 ± 4,7	3,5 ± 11,2

Tableau 3.1 — Comparaison des mesures des rapports de mélange volumique (vmr) en air sec de CO entre la station de surface WMO/GAW (instrument Picarro) sur l'île de Lampedusa (35,52°N, 12,63°E, 45 m asl) et l'avion (instrument SPIRIT). Les incertitudes suivies de * sont des écart-types.

3.1.4 Contexte de l'étude

Du fait de sa latitude, la mer Méditerranée est considérée comme une zone de transition entre le climat sec de l'Afrique du Nord et le climat tempéré de l'Europe Centrale et est en cela affectée par des processus des moyennes latitudes et des latitudes tropicales (Giorgi and Lionello, 2008). En hiver, le climat est doux et humide tandis qu'en été il est chaud et sec. Le climat hivernal, et plus particulièrement les précipitations, est influencé par l'oscillation Nord-Atlantique (NAO - North Atlantic Oscillation) principalement au niveau du versant ouest (Hurrell, 1995). En été, les hautes pressions dominant, favorisant un climat chaud en particulier au sud de la Méditerranée. Nous avons aussi vu précédemment que la variabilité du climat Méditerranéen est connectée avec la mousson asiatique en été. C'est aussi le cas avec la mousson africaine (Alpert et al., 2006, Lionello et al., 2006) et avec l'anticyclone de Sibérie en hiver (Lionello et al., 2006). Tous ces processus font de la Méditerranée une région vulnérable aux changements climatiques induits par l'augmentation des gaz à effet de serre (Lionello et al., 2006, Ulbrich et al., 2006).

Les feux de biomasse sont une source importante d'aérosols et de gaz traces dans l'atmosphère (par exemple, Andreae and Merlet, 2001). Ils émettent de grandes quantités de gaz traces actifs chimiquement (comme le CO et les NO_x) qui impactent la composition de l'atmosphère à l'échelle régionale mais aussi globale, avec des conséquences sur la formation d'O₃. Comme vu dans la section 1.2.1, le CO, produit par combustion incomplète, est un traceur adapté pour le suivi des émissions de feux. Les feux de forêt sont aussi une source significative d'aérosols troposphériques qui jouent un rôle important sur les propriétés radiatives de l'atmosphère (Lioussse et al., 1996), spécifiquement dans la région méditerranéenne (Pace et al., 2005, Bougiatioti et al., 2016).

Le transport à longue distance est maintenant reconnu comme l'un des processus les plus importants affectant la variabilité spatiale des polluants (Roiger et al., 2012). De ce fait, la pollution d'un continent peut affecter la composition chimique de l'atmosphère au-dessus

d'un autre continent. Les composés issus des feux ou chimiquement produits au sein des feux peuvent être transportés horizontalement mais aussi verticalement et être injectés jusque dans la moyenne troposphère et l'UTLS (par exemple [Fromm and Servranckx, 2003](#), [Colarco et al., 2004](#), [Damoah et al., 2004](#), [Jost et al., 2004](#), [Nedelec et al., 2005](#), [Damoah et al., 2006](#), [Cammias et al., 2009](#), [Dahlkötter et al., 2014](#)) quand l'activité du feu est suffisamment importante et peuvent donc impacter le climat et la qualité de l'air ([Val Martin et al., 2010](#) et références citées). Le BM se situe à un carrefour de différents processus de transport ([Lelieveld et al., 2002](#), [Millán et al., 2002](#), [Gerasopoulos et al., 2005](#), [Duncan et al., 2008](#), [Doche et al., 2014](#), [Ricaud et al., 2014](#)) et à l'intersection de différentes sources de polluants, naturels et anthropiques, influençant la variabilité des aérosols ([Nabat et al., 2013](#)) et des gaz traces dans le BM ([Mihalopoulos, 2007](#)). Plusieurs études ont déjà reporté des cas de transport transatlantique d'émissions de feux de forêt boréale depuis l'Amérique du Nord vers l'Europe centrale ([Forster et al., 2001](#), [Petzold et al., 2007](#)) ou vers le BM ([Formenti et al., 2002](#), [Cristofanelli et al., 2013](#), [Ancellet et al., 2016](#)). Ces études sont plus axées sur les aérosols sauf pour [Forster et al. \(2001\)](#) qui travaille aussi sur le CO mais avec des mesures faites en Europe centrale (Allemagne). [Damoah et al. \(2004\)](#) et [Spichtinger et al. \(2004\)](#) ont reporté des cas de transport d'émissions de feux depuis la Russie, circulant vers l'est jusqu'au niveau du Pacifique avant d'atteindre l'Europe. Cependant, leurs études ne sont pas focalisées sur le BM et n'incluent pas de mesures in-situ à haute altitude.

L'étude qui suit est une analyse du transport intercontinental des émissions de CO et de carbone suie (BC) par les feux de biomasse en provenance d'Amérique du Nord et de Sibérie ayant atteint le BM. Deux vols de la campagne GLAM ont été impactés par ces émissions polluantes, le 6 et le 10 août 2014. Seule une quantité limitée d'observations in-situ et de distribution de gaz traces est disponible dans la troposphère pour toute la région méditerranéenne ([Di Biagio et al., 2015](#)). Les mesures in-situ directes, locales et à haute résolution spatiale de la campagne GLAM sont donc d'intérêt pour la région. Le travail entrepris pour déterminer l'origine de ces panaches et comprendre les processus de transport fait appel aux modèles FLEXPART et MOCAGE. Pour FLEXPART, quel que soit le vol étudié, la méthodologie utilisée pour déterminer l'origine géographique de la pollution et les sources d'émission est la même, c'est-à-dire que l'on simule des rétro-trajectoires de 20 jours afin d'avoir accès à la sensibilité aux émissions (PES). La PES nous renseigne sur l'endroit où la masse d'air a pu se charger en émissions. Il s'agit ensuite de combiner la PES avec les émissions de CO et de BC de l'inventaire GFAS et d'en déduire la contribution des feux de biomasse aux concentrations mesurées de CO et d'aérosols. Un tableau récapitulatif des différentes options activées durant les simulations avec FLEXPART est fourni en section [2.4.3](#). Des tests de simulation avec CH₄ ont aussi été effectués pour cette étude. Le temps de vie de CH₄ étant d'environ 10 ans, une simulation de 20 jours ne montrera que des variations faibles de la concentration de fond dues aux émissions pendant la période de simulation.

3.2 Cas d'étude du 10 août 2014 : panache de feux de forêt nord-américains

3.2.1 Description du vol et des mesures

Le vol F8 (8^{ème} vol de la campagne, le 10 août) est un vol effectué d'est en ouest depuis Lampedusa, en Italie, vers Toulouse, en France (figure 3.5 a). Durant le transect à environ 9,7 km asl, une augmentation rapide et très intense du rapport de mélange (vmr) de CO jusqu'à 260 ppbv (avec un fond de CO à environ 70 ppbv) a été mesurée au-dessus de la Sardaigne, corrélée avec une augmentation plus faible d'O₃ (d'environ 35 ppbv à 75 ppbv) et d'aérosols jusqu'à environ 1000 particules cm⁻³ pour des diamètres entre 0,21 et 1,1 µm, ainsi qu'avec une diminution de l'humidité relative, RH (figure 3.5 b). Une photo prise pendant le vol montre que l'avion a traversé une fine et sombre couche de particules (figure 3.5 c). Ce pic intense a duré environ 10 minutes du fait que l'avion volait depuis Lampedusa vers Toulouse et est passé rapidement au-travers de cette couche qui se déplaçait en direction inverse, comme nous allons le montrer. Cet événement a déjà été évoqué dans un article auquel nous avons contribué, concernant l'ensemble de la campagne GLAM (Ricaud et al., 2017). Des simulations de rétro-trajectoires sur 20 jours du modèle Hybrid Single Particle Lagrangian Integrated Trajectory (HYSPLIT), avec des données globales réanalysées sur une grille de 2,5°×2,5°, avaient été utilisées pour déduire l'origine des parcelles d'air. Il est montré que les masses d'air proviennent des Territoires du Nord-Ouest (Canada) au-dessus de 7 km d'altitude et des États-Unis en-dessous de 7 km, là où des feux ont été détectés par MODIS. Des simulations avec le modèle MOCAGE confirment ce résultat et montrent des quantités élevées de CO et de BC au-dessus de l'Amérique du nord. Dans notre étude, nous utilisons le modèle FLEXPART avec une résolution plus fine (0,5°×0,5°) durant 20 jours de rétro-trajectoire afin de reproduire ce pic intense de CO. FLEXPART permet de déduire l'origine des masses d'air mais aussi de calculer la contribution aux CO et BC des feux de biomasse sur les mesures en couplant ces rétro-trajectoires avec l'inventaire GFAS. Une comparaison directe entre les concentrations simulées et les mesures est alors possible. Grâce au calcul de l'âge de l'air, il est aussi possible de discriminer les différentes contributions en termes de jours avant le vol.

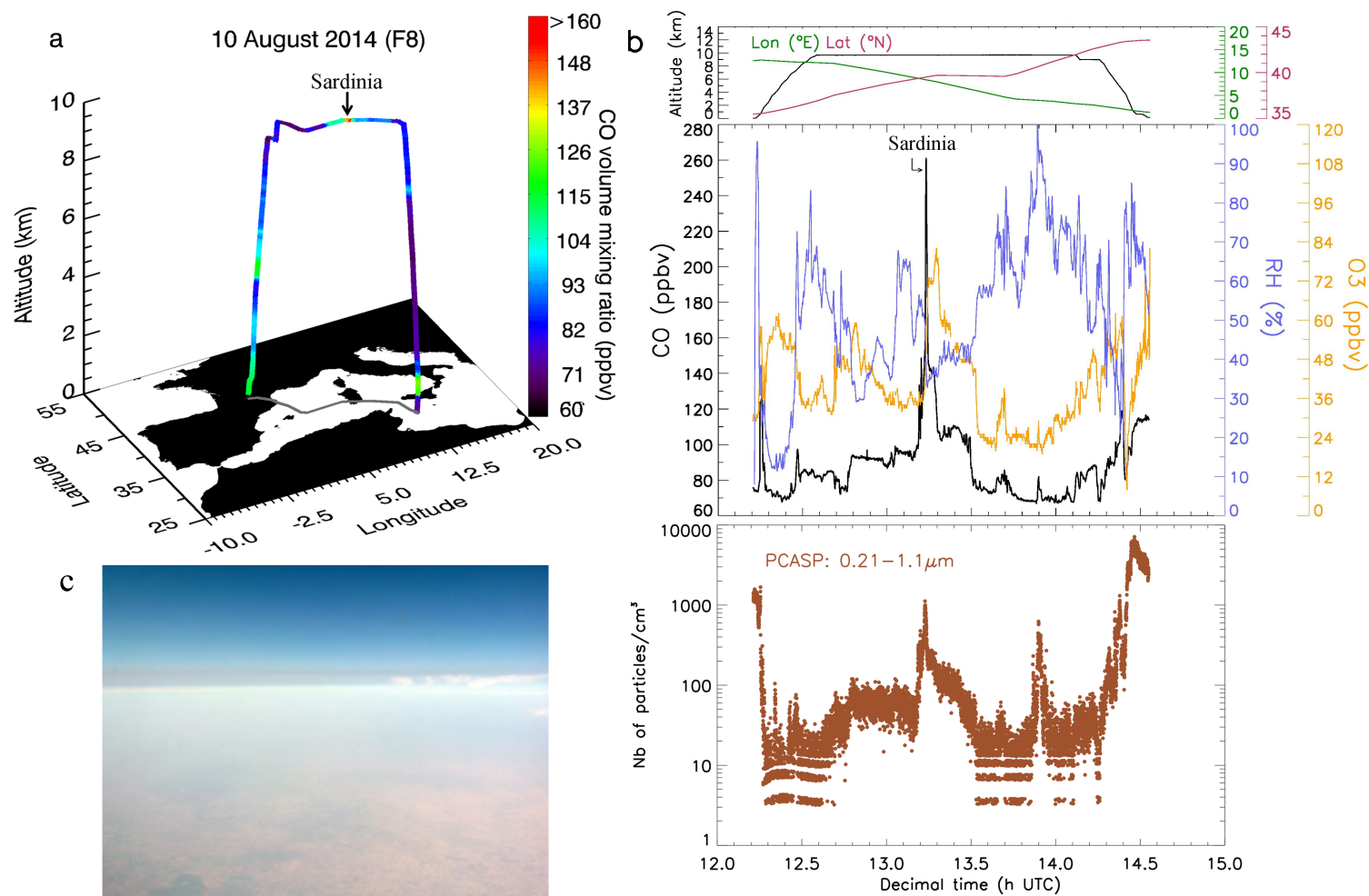


Figure 3.5 — Vol F8 (10 août 2014). (a) Trajectoire 3D avec un code couleur selon le rapport de mélange volumique (vmr) de CO entre Lampedusa et Toulouse. (b) (En haut) : Altitude, longitude et latitude du vol en fonction du temps; (Au milieu) : Séries temporelles des vmr de CO (en noir), O₃ (en orange) et d'humidité relative (en bleu); (En bas) : Séries temporelles des concentrations d'aérosols (en marron). (c) Photo prise depuis le Falcon-20 d'une fine couche sombre d'aérosols à une altitude de 9,7 km, à 13 :12 UTC.

3.2.2 Mise en évidence de la source d'émission

Pour déterminer l'origine de cette pollution, des rétro-trajectoires sur 20 jours sont effectuées avec FLEXPART tout au long du trajet de l'avion. La sensibilité aux émissions est stockée sur une grille 3D avec des niveaux allant de la surface jusqu'à 10 km asl. La représentation de la sensibilité potentielle aux émissions (PES) est un bon indicateur d'où et pour combien de temps la masse d'air s'est probablement chargée en émission. La figure 3.6 a représente les rétro-trajectoires simulées sur 20 jours au départ de la Sardaigne où le CO est à son maximum (13,23h UTC). Elles révèlent que les masses d'air sont restées la plupart du temps au-dessus de la Mongolie et du nord de la Chine entre 12 à 19 jours avant le vol (soit du 22 au 26 juillet). Ensuite, les masses d'air ont voyagé vers l'est où elles sont passées au-dessus du Pacifique central entre 6 à 10 jours (du 31 juillet au 4 août), avant le vol et au-dessus du Canada et des États-Unis 4 à 5 jours (5 au 6 août), et avant enfin d'atteindre la Sardaigne. Comme montré aussi dans la figure 3.6 a, de nombreux feux ont été détectés par MODIS durant plus d'un mois dans le nord-ouest du Canada et aux États-Unis et, notamment, d'intenses feux déclenchés par des éclairs et la sécheresse en Californie et Orégon (figure 3.7).

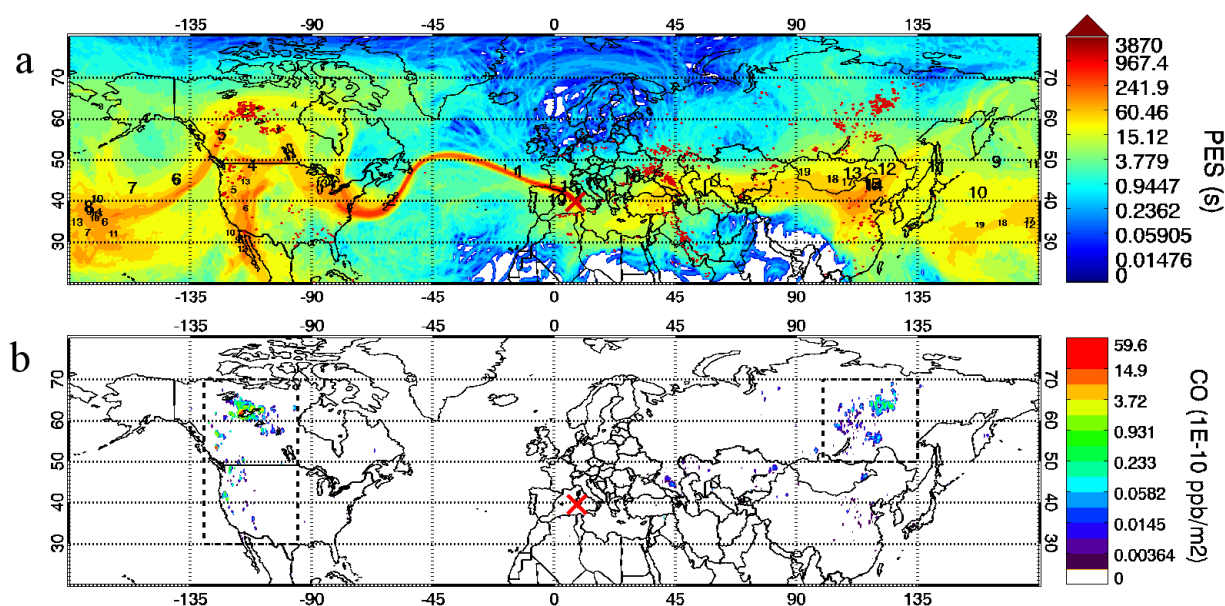


Figure 3.6 — (a) PES des particules dans une couche 0-10 km pour des rétro-trajectoires sur 20 jours le 10 août 2014, superposée à la détection des feux par MODIS (points rouges foncés) et les nombres correspondant aux jours de rétro-trajectoires dont la taille dépend du nombre de particules appartenant à chaque cluster. La croix rouge symbolise la localisation de l'avion au moment de la mesure du pic de pollution. (b) Contribution au CO des feux de biomasse, calculée dans une couche 0-10 km le 10 août 2014. Les rectangles en pointillés représentent les masques utilisés pour voir la contribution spécifique de la Sibérie et du continent nord-américain.

La carte de la contribution au CO des feux de biomasse (figure 3.6 b) calculée avec FLEXPART révèle que la contribution la plus forte vient de la Sibérie, du nord-ouest du

Canada et de la côte ouest des États-Unis (les deux derniers regroupés par la suite pour plus de simplicité en un seul terme : le continent nord-américain), mais presque aucune contribution ne provient de Mongolie et de Chine.



Figure 3.7 — Photo prise depuis un avion d'un pyrocumulus en développement au-dessus d'une partie du « Beaver Complex fire », en Oregon, le 31 juillet 2014 (<https://earthobservatory.nasa.gov/IOTD/>).

Pour exclure la possibilité d'une contribution anthropique de la Chine, on couple FLEXPART avec l'inventaire EDGAR (figure 3.8). Cette carte de la contribution anthropique globale du CO montre des contributions en CO venant majoritairement de Chine et de la côte est des États-Unis. Cette contribution est calculée dans une couche entre 0 et 200 m, représentative de la couche d'injection des émissions anthropiques. Sur la figure 3.8, la contribution totale est estimée à 11 ppbv après sommation des concentrations de toute la grille FLEXPART et montre donc que la contribution de la Chine a une influence négligeable sur les valeurs de CO mesurées.

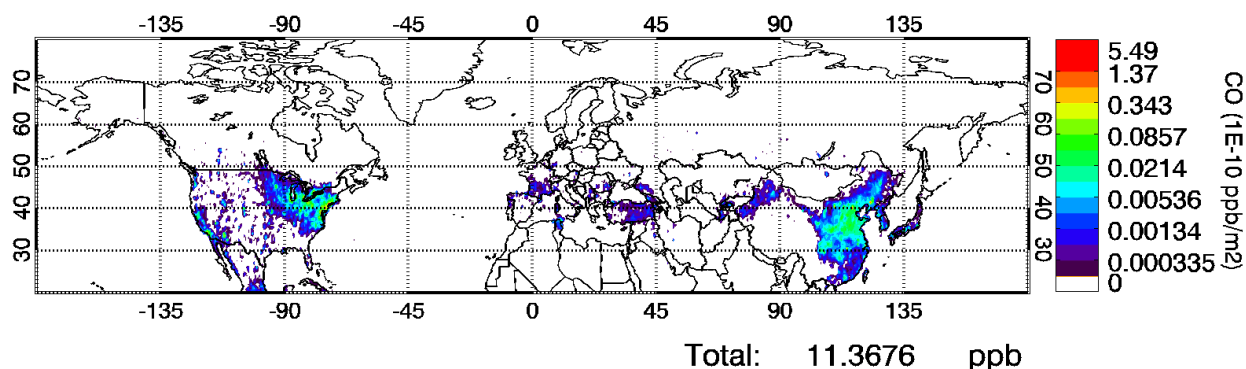


Figure 3.8 — Représentation de la contribution anthropique globale du CO dans la couche 0-200 m pour le 10 août 2014.

Comme montré dans la figure 3.9 a, la contribution de CO simulée par FLEXPART re-

produit bien le CO mesuré, avec un léger retard, seulement 3 minutes. Afin de déterminer la contribution de chaque région, on isole les émissions de CO des zones principales de contribution aux feux de biomasse comme illustré en figure 3.6 b. Cela mène à la conclusion que le continent nord-américain est la source d'émission majoritaire de CO du fait que la contribution de la Sibérie est proche de zéro (figure 3.9 a). Si l'on considère l'âge des masses d'air (figure 3.9 b), on constate que le maximum de contribution est 4 à 5 jours (à savoir le 5 et 6 août) avant le vol au moment où la PES était au-dessus de continent nord-américain (figure 3.6 a), en parfait accord avec les résultats ci-dessus.

3.2.3 Simulation de la contribution au CO des feux de biomasse

3.2.3.1 Ajustement de la hauteur d'injection du panache

Pour comparer quantitativement les deux jeux de données du CO (simulés par FLEXPART et mesurés par SPIRIT), une valeur de fond de 70 ppbv a été ajoutée aux données FLEXPART. Cette valeur ajoutée de 70 ppbv est une moyenne de nos mesures pendant la campagne et donc représentative du fond de CO de la moyenne troposphère pour le versant ouest du bassin Méditerranéen à cette période. Bien que FLEXPART soit capable de simuler l'origine de cette pollution, on constate que le rapport de mélange de CO calculé est plus faible que les mesures de CO (figure 3.9 a). Comme les effets de la pyroconvection ne sont pas inclus dans le modèle, différents scénarios sont testés dans le but de reproduire l'impact du CO venant de ces feux. Pour cela, on ajuste la hauteur d'injection du panache. Cette hauteur est définie comme l'altitude au-dessus de la surface à laquelle les émissions des panaches de fumée sont injectées dans l'atmosphère (Veira et al., 2015, Rémy et al., 2017). La hauteur d'injection joue un rôle important dans le transport à longue distance. En effet, les conséquences sur le transport, le dépôt et le temps de vie dépendent de la localisation du panache en-dessous ou au-dessus de la couche limite atmosphérique. La hauteur d'injection dépend de plusieurs variables comme l'intensité du feu mais dépend aussi des conditions synoptiques. Si les conditions météorologiques sont satisfaites, c'est-à-dire condensation de la vapeur d'eau et libération de chaleur latente due à un environnement plus froid que le panache, alors la pyroconvection peut avoir lieu (Fromm et al., 2010). Pour déterminer la hauteur d'injection initiale, on utilise les données du lidar CALIOP et de l'instrument AIRS. Ces données sont sélectionnées pour le même jour et avec des coordonnées géographiques proches permettant la comparaison entre les deux jeux de données. Le passage de CALIOP au-dessus de l'Amérique du Nord le 6 août à 9 :51 UTC peut être utilisé pour localiser les panaches de fumée (figure 3.10). Les catégories d'aérosols indiquent la présence de fumée jusqu'à 10 km asl pour les latitudes 38-62°N (figure 3.10). Pour le même jour et pour les latitudes 61-64°N, de fortes concentrations de CO sont mesurées par AIRS jusqu'à 10 km avec des concentrations maximales au-dessus de 5 km (figure 3.10). Une estimation de la hauteur d'injection dérivée des données de l'instrument MODIS et des informations météorologiques de ECMWF est aussi fournie par GFAS. Les estimations de la hauteur d'injection par GFAS sont, le 5 et 6 août,

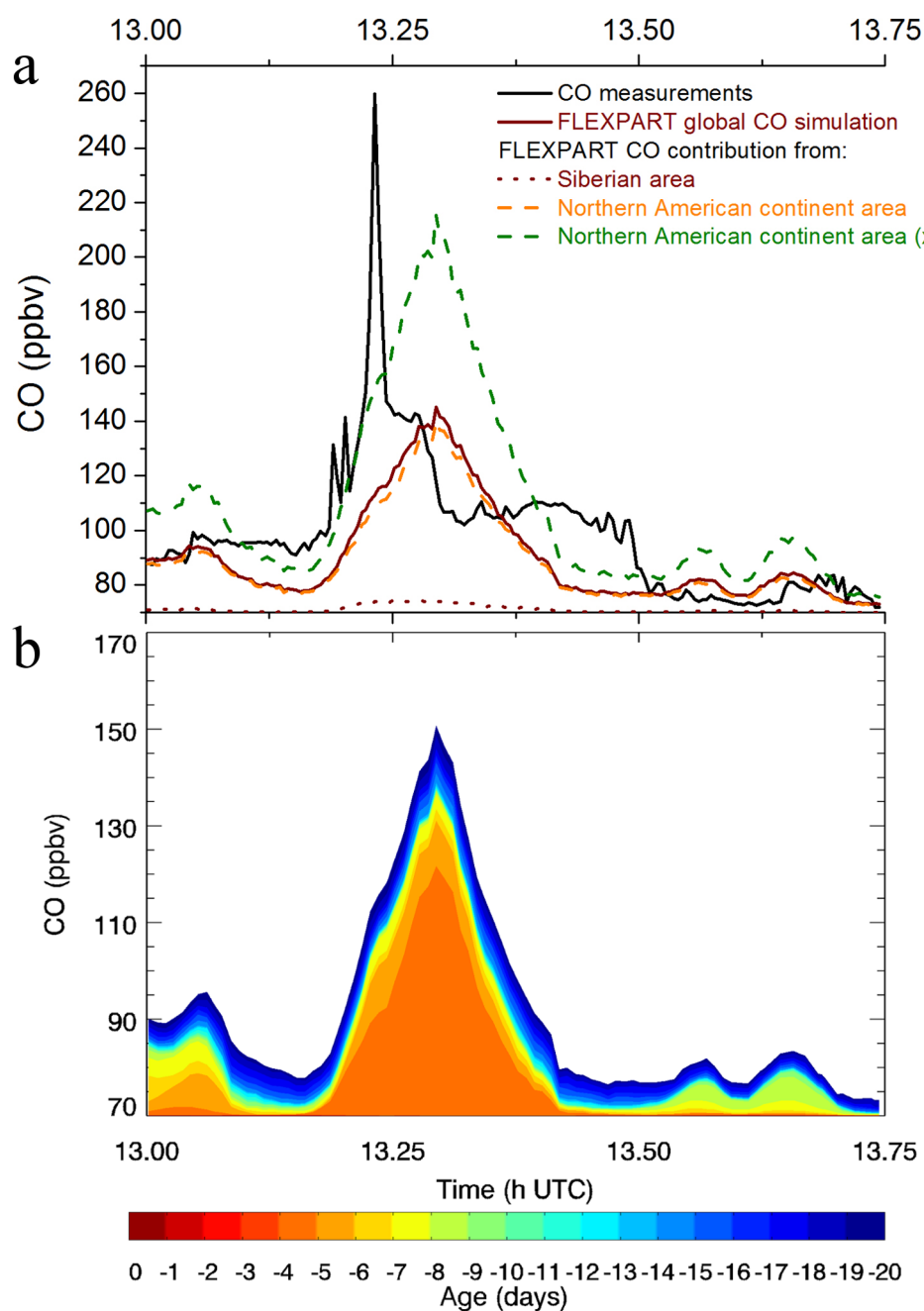


Figure 3.9 — Zoom d'une partie de F8 de 13,0 à 13,75h UTC au-dessus de la Sardaigne à 9,7 km asl avec une hauteur d'injection fixée jusqu'à 10 km dans FLEXPART. (a) Évolution temporelle du CO le long du vol : mesures du SPIRIT (dégradées sur la résolution temporelle de FLEXPART) et simulations FLEXPART. (b) Contribution du CO calculée par FLEXPART, avec un code couleur selon l'âge, de 1 à 20 jours avant F8, de la masse d'air.

à un maximum de 10,9 km au-dessus du Canada (figure 3.11).

D'autres études ont déjà prouvé que l'utilisation d'une telle altitude de 10 km pour injecter les émissions de surface dans l'atmosphère permet de simuler des concentrations en bon accord

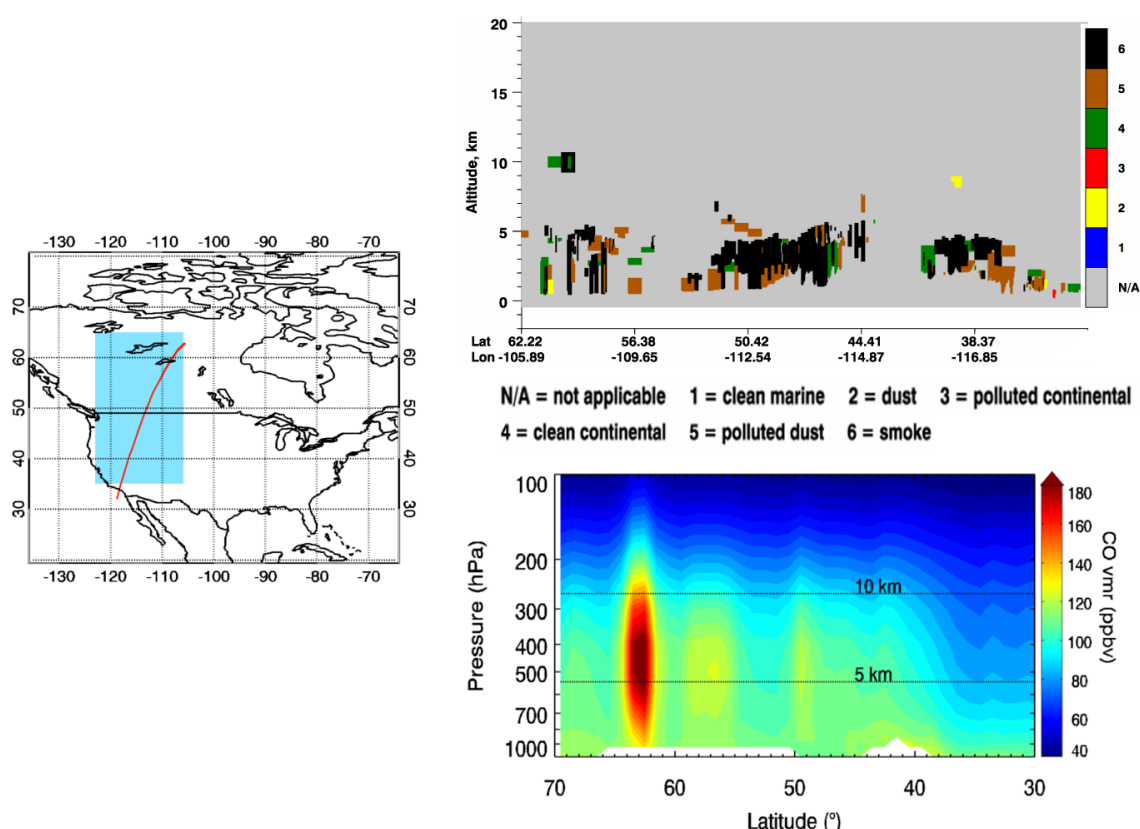


Figure 3.10 — Le 6 août 2014 à 9 :51 UTC. (À gauche) Trace de CALIOP (ligne rouge) et aire correspondant à la moyenne des vmr de CO (rectangle bleu) de AIRS. (À droite, en haut) Distribution verticale des types d'aérosols (fumée en noir) associée à la trace rouge de l'orbite de CALIOP. (À droite, en bas) Distribution verticale du CO de AIRS avec des données moyennées en longitude selon les coordonnées géographiques du rectangle bleu.

avec les mesures (de Gouw et al., 2006, Elguindi et al., 2010).

3.2.3.2 Utilisation d'un facteur d'amplification appliqué aux émissions

Les concentrations de CO mesurées sont toujours environ deux fois plus élevées que les concentrations simulées (figure 3.9 a). Comme FLEXPART a déjà fait ses preuves dans la simulation d'événements de transport à longue distance de panaches de feux (Forster et al., 2001, Damoah et al., 2004, Damoah et al., 2006, de Gouw et al., 2006, Stohl et al., 2007, Lapina et al., 2008, Cristofanelli et al., 2013) et que la question de la convection induite par les feux est résolue en appliquant une altitude d'injection en accord avec les mesures de CALIOP, AIRS et les estimations de GFAS, une hypothèse pour ces plus faibles concentrations serait une sous-estimation des émissions de CO de GFAS, bien que Kaiser et al. (2012) ne discutent pas d'une correction à appliquer à ces émissions. Finalement, un facteur d'amplification de 2 est appliqué dans notre étude afin d'obtenir des quantités de CO similaires, dérivées de la surface calculée correspondant à l'augmentation de CO (figure 3.9 a).

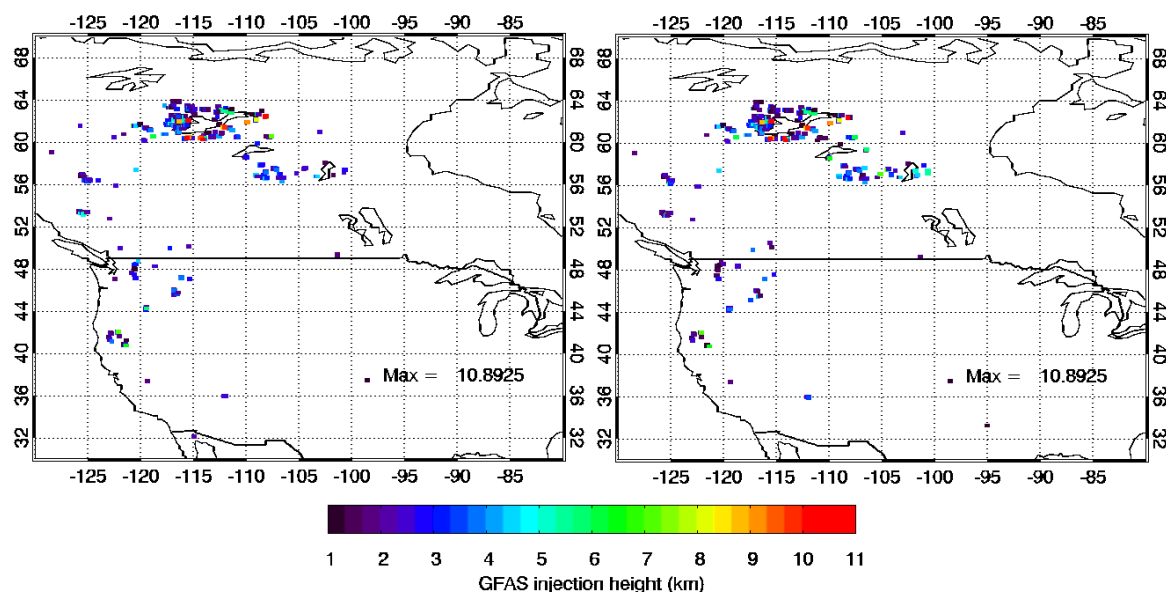


Figure 3.11 — Estimation de la hauteur d'injection par GFAS au-dessus de l'Amérique du Nord (à gauche) le 5 août 2014, (à droite) le 6 août 2014.

3.2.4 Simulation de la contribution au carbone-suie (BC) des feux de biomasse

Les simulations FLEXPART pour la contribution au BC des feux de biomasse total utilisent les mêmes paramètres que les simulations de CO, en particulier une hauteur d'injection jusqu'à 10 km. Pour toutes ces simulations, un coefficient multiplicatif de 3,4 est appliqué aux émissions de BC de GFAS comme recommandé par [Kaiser et al. \(2012\)](#). Dans la figure 3.12, FLEXPART est capable de reproduire qualitativement le pic de concentration d'aérosols mesuré par le PCASP, retardé d'environ 3 minutes comme pour le CO.

La carte de contribution en figure 3.13 donne les mêmes régions, i.e. le continent nord-américain et la Sibérie, à cette augmentation d'aérosols. Pour distinguer quelle région contribue le plus à ce pic de pollution, on isole la contribution du BC aux mesures dans chacune de ces zones. Il apparaît que le continent nord-américain est la source principale des émissions de BC et que la Sibérie contribue pour moins de 3 ng.m^{-3} (figure 3.12).

3.2.5 Mise en évidence du transport par le jet stream

L'utilisation des mesures de la colonne totale de CO par IASI-MetOp permet de mettre en évidence le transport le long du jet stream et suivre les masses d'air polluées. Un exemple est donné en figure 3.14 pour la période du 5 au 10 août 2014, correspondant à l'émission des feux sur le continent nord-américain 5 jours avant le vol et à leur transport jusqu'à la Sardaigne.

En partant du jour d'émission, le 5 août, jusqu'au 6 août, soit 5 et 4 jours avant le vol, des

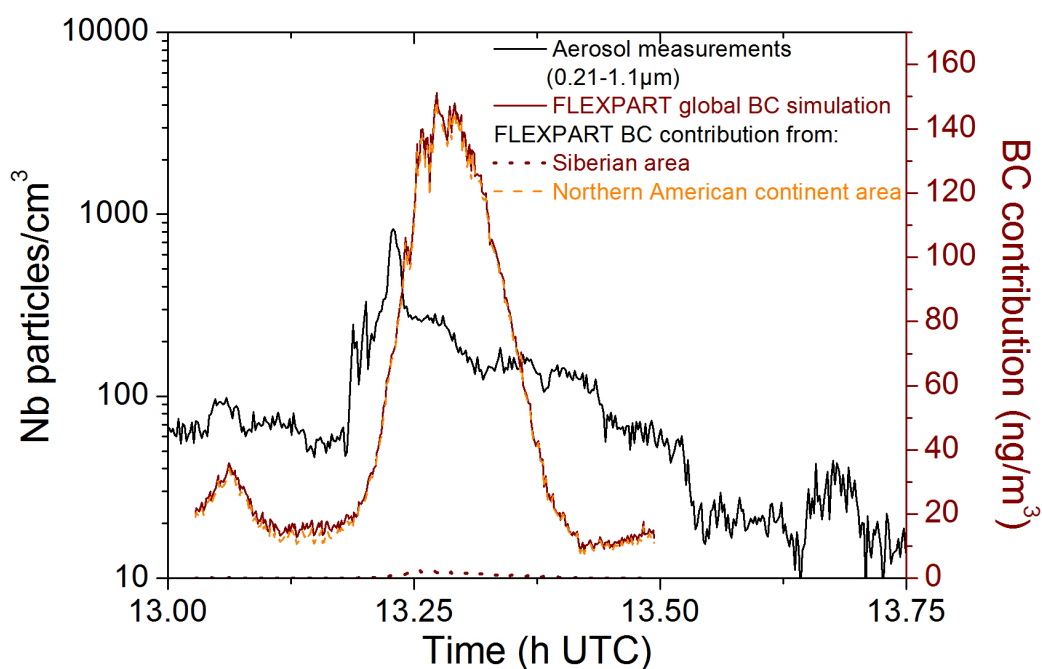


Figure 3.12 — Évolution temporelle de la densité de particules le long de la trajectoire du vol F8 : mesures du PCASP (dégradées sur la résolution temporelle de FLEXPART) et simulations FLEXPART.

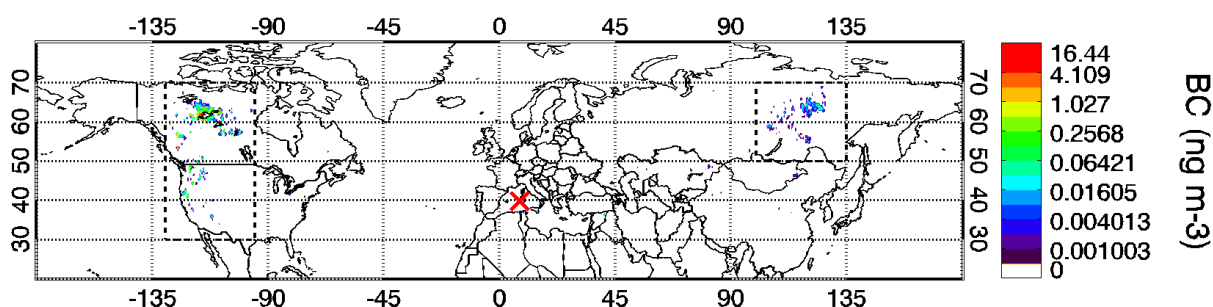


Figure 3.13 — Contribution au BC des feux de biomasse calculée dans une couche 0-10 km le 10 août 2014. Les rectangles en pointillés représentent les masques utilisés pour voir la contribution spécifique de la Sibérie et du continent nord-américain. La croix rouge symbolise la localisation de l'avion au moment de la mesure du pic de pollution.

quantités élevées de CO, supérieures à 3×10^{18} molécules. cm^{-2} , sont mesurées localement sur la côte ouest des États-Unis à 35-49°N et 110-130°O et sur une zone plus large au niveau du Canada à 50-70°N et 90-120°O, en accord avec les résultats de FLEXPART (figure 3.6). Le transport, pendant 2 jours, est visible le 7 et 8 août (3 et 2 jours avant le vol) avec un déplacement des masses d'air vers la côte est des États-Unis (35-50°N et 50-90°O). Le panache traverse ensuite l'océan Atlantique pour se retrouver le 9 août (1 jour avant le vol) à 40-50°N et 10-20°O et finalement descendre vers la Sardaigne le 10 août où IASI mesure une colonne totale de CO aux alentours de 2×10^{18} molécules. cm^{-2} . Le transport transatlantique, par l'intermédiaire du jet stream, a déjà été signalé comme vecteur de pollution sur le BM

(Forster et al., 2001, Formenti et al., 2002, Cristofanelli et al., 2013, Ancellet et al., 2016) et est bien visible au travers des colonnes totales de CO mesurées par IASI.

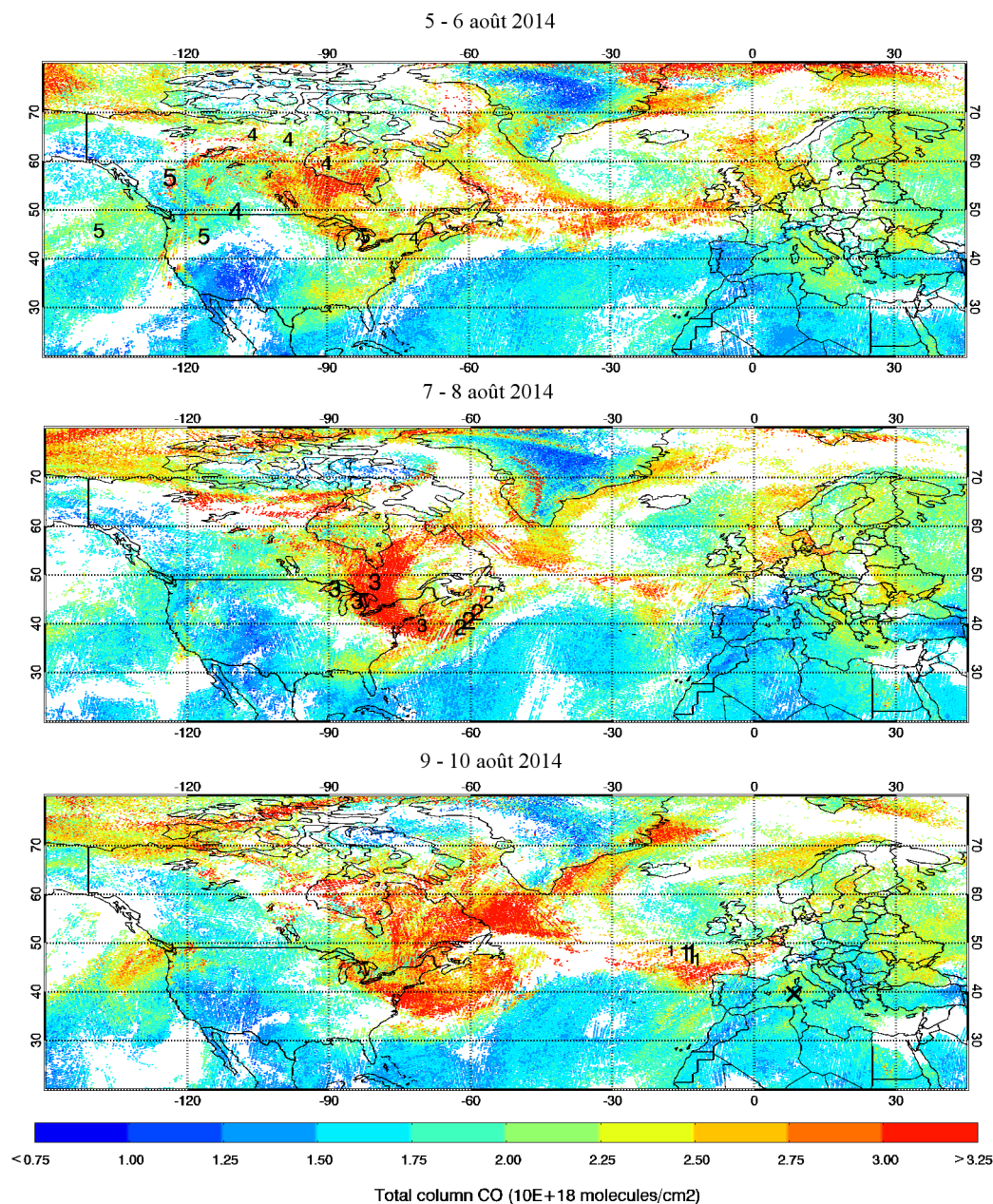


Figure 3.14 — Mise en évidence du transport par l'évolution de la colonne totale de CO en molécules.cm⁻² mesurée par l'instrument IASI, sur le satellite MetOp, du 5 au 10 août 2014. Les chiffres indiquent la localisation des masses d'air en fonction des jours de rétro-trajectoire calculée par FLEXPART. La taille des chiffres varie selon le nombre de particules contenues dans chaque cluster. La croix noire désigne l'emplacement de l'avion lors de la mesure du pic.

Le CO étant émis aussi de façon anthropique, il n'est pas possible de distinguer sur la figure 3.14 les émissions par la combustion de biomasse des autres types de combustion. Néanmoins, avec le travail de localisation des sources d'émission des feux effectué avec FLEXPART, il

est possible, en combinant les jours de rétro-trajectoires avec les données IASI, de suivre les panaches de pollution. De plus, un couplage entre les mesures de CO et d'ammoniac (NH_3) issues de IASI permet de mettre en évidence les feux de biomasse. NH_3 est un polluant dont les sources d'émission principales sont l'agriculture et les feux de biomasse (Bouwman et al., 1997). Le couplage avec CO mène donc à une seule source d'émission commune entre les deux espèces : la combustion de biomasse. La figure 3.15 représente la colonne totale de NH_3 pour le 5 août. Des concentrations de NH_3 supérieures à 93×10^{15} molécules. cm^{-2} sont visibles sur la côte ouest des États-Unis ($40\text{--}50^\circ\text{N}$ et $110\text{--}120^\circ\text{O}$) et au Canada ($55\text{--}65^\circ\text{N}$ et $90\text{--}130^\circ\text{O}$). Le couplage entre CO et NH_3 nous permet donc de localiser les zones géographiques d'émission des feux, en accord avec les zones calculées par FLEXPART, et de vérifier que le panache suivi provient bien des feux de forêts boréales du continent nord-américain.

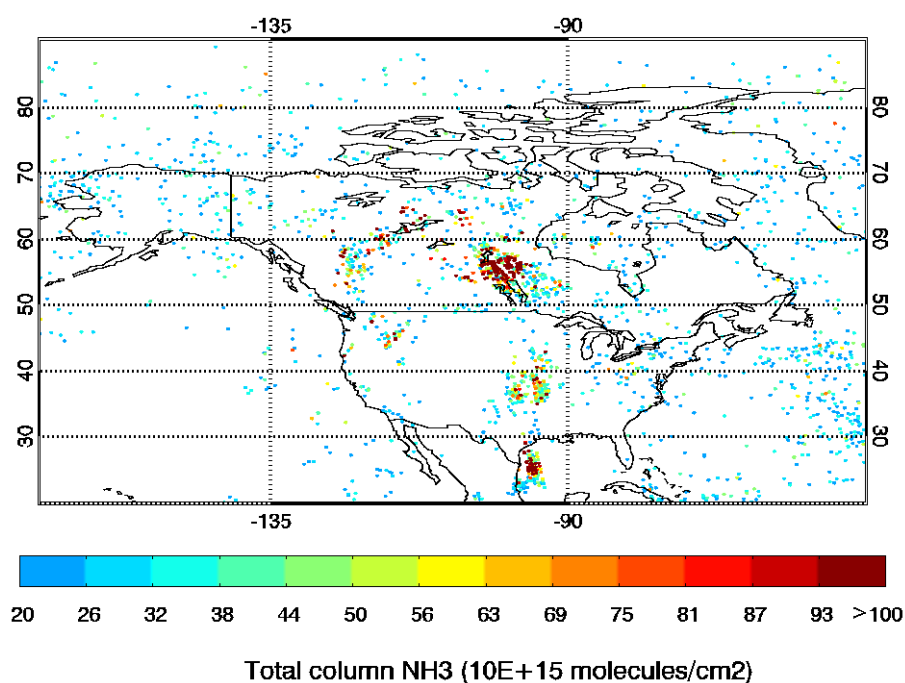


Figure 3.15 — Colonne totale de NH_3 en molécules. cm^{-2} mesurée par IASI-MetOp au-dessus de l'Amérique du Nord le 5 août 2014.

3.2.6 Précédents cas de transport transatlantique de feux de forêt reportés

L'injection d'une telle quantité de CO et d'aérosols mesurés à haute altitude (>9 km) est due à un phénomène pyroconvectif qui a soulevé les polluants à haute altitude, et qui ont par la suite voyagé au-dessus de l'Atlantique nord. Les produits de feux d'Amérique du Nord transportés vers l'Europe et plus spécifiquement vers le BM semble être récurrents mais d'intensité variable. Pu et al. (2007) ont montré, à l'aide de données satellites, que la plupart des feux ont lieu en juin-juillet en Amérique du Nord. Stohl et al. (2002), en utilisant aussi des simulations FLEXPART, ont montré que le BM est l'endroit où les plus hautes concentrations de surface de traceurs nord-américains sont détectées en été. Différents couloirs de pollution

impactant le BM, incluant celui depuis l'Amérique du Nord, ont été identifiés dans [Ricaud et al. \(2017\)](#). Le transport transatlantique est bien documenté et des durées de transport comparables entre l'Amérique du Nord et l'Europe ont été trouvées dans d'autres études : environ 6 jours et 7 jours dans [Petzold et al. \(2007\)](#) et [Forster et al. \(2001\)](#), respectivement. Le transport entre l'Amérique du Nord et le BM dans [Formenti et al. \(2002\)](#) et [Ancellet et al. \(2016\)](#) dure environ 10 jours (tableau 3.2). Une hypothèse de [Forster et al. \(2001\)](#) est que ces émissions de feux de biomasse venant de l'Amérique du Nord peuvent avoir une influence sur les niveaux de concentration de polluants européens pendant la période estivale tous les ans, mais avec des intensités variables chaque année. Au-dessus de l'Europe centrale, [Forster et al. \(2001\)](#) et [Petzold et al. \(2007\)](#) ont trouvé une couche de panache de feux jusqu'à 6 et 8 km asl, respectivement. Au-dessus du versant est du BM, [Formenti et al. \(2002\)](#) ont trouvé une couche de brume due à des feux de biomasse jusqu'à 3,5 km venant des feux de forêts canadiens. [Ancellet et al. \(2016\)](#) ont reporté des couches d'aérosols jusqu'à 7 km d'altitude venant d'Amérique du Nord au-dessus du versant ouest du BM. Les cas publiés, à notre connaissance, de transport transatlantique jusqu'au BM pour des années récentes sont regroupés dans le tableau 3.2. [Fromm et al. \(2005\)](#) ont aussi reporté de la pollution issue de feux pyroconvectifs au-dessus de l'Amérique du Nord. Dans leur cas, l'activité du feu était suffisamment importante pour injecter de la fumée jusque dans la basse stratosphère et ainsi entraîner une augmentation des concentrations en gaz traces et aérosols dans la troposphère au niveau de l'Europe 1 semaine plus tard. D'autres cas d'injection d'émissions de feux d'Amérique du Nord jusque dans la basse stratosphère sont reportés dans [Damoah et al. \(2006\)](#).

Reference	Measurement date	Fire location	Measurement location	Altitude (km)	Pollutant measured	Transport duration (days)
Formenti et al. (2002)	14 Aug 1998	Canada	Aegean Sea	1-3,5	Aerosols, CO, O ₃	10
Cristofanelli et al. (2013)	23-24 Mar 2009	North America	Italy	-	CO, O ₃ , BC	-
Ancellet et al. (2016)	27-28 June 2013	Canada & Colorado	Western MB	2-7	Aerosols	10-11*
Our study	10 Aug 2014	Canada & Western USA	Sardinia	9,7	CO, Aerosols, O ₃	4-5
	6 Aug 2014	Siberia & Canada	Sardinia	5,4	CO, Aerosols, O ₃	12-13

Tableau 3.2 — Liste des panaches de feux de biomasse venant du continent nord-américain ayant impacté le BM reportés dans la littérature. L'altitude correspond à l'altitude de la mesure. Le symbole * fait référence à des simulations de rétro-trajectoires de 10-11 jours avec FLEXPART.

3.3 Cas d'étude du 6 août 2014 : panache de feux de forêt sibériens

3.3.1 Description du vol et des mesures

Le vol F2 (2^{ème} vol de la campagne, le 6 août) est un vol effectué d'ouest en est depuis Minorque (en Espagne) vers Lampedusa (en Italie), comme montré sur la figure 3.16 a. Il se caractérise par un transect à environ 5,4 km asl avec un profil vertical au-dessus de

Lampedusa jusqu'à 12 km. Pendant ce transect (figure 3.16 b), une augmentation de CO d'environ 70 ppbv jusqu'à ~120-140 ppbv à 12 :00 UTC a été mesurée au-dessus de la Sardaigne, synchronisée avec une augmentation d'O₃ de ~30 à ~60 ppbv et d'aérosols jusqu'à ~100 particules cm⁻³ dans la gamme de taille 0,21-1,1 µm et une diminution de l'humidité relative. Cette augmentation a duré plus de 40 minutes correspondant environ à 509 km parcouru. L'avion volait dans la même direction que la masse d'air (voir section 3.3.5.1) ce qui explique pourquoi il est resté si longtemps dans l'air pollué. Après cela, l'avion a effectué un profil vertical, et traversé de nouveau cette couche à la même altitude et avec les mêmes caractéristiques plus de 30 minutes après (juste avant 13 :30 UTC) lors de la descente sur l'île de Lampedusa.

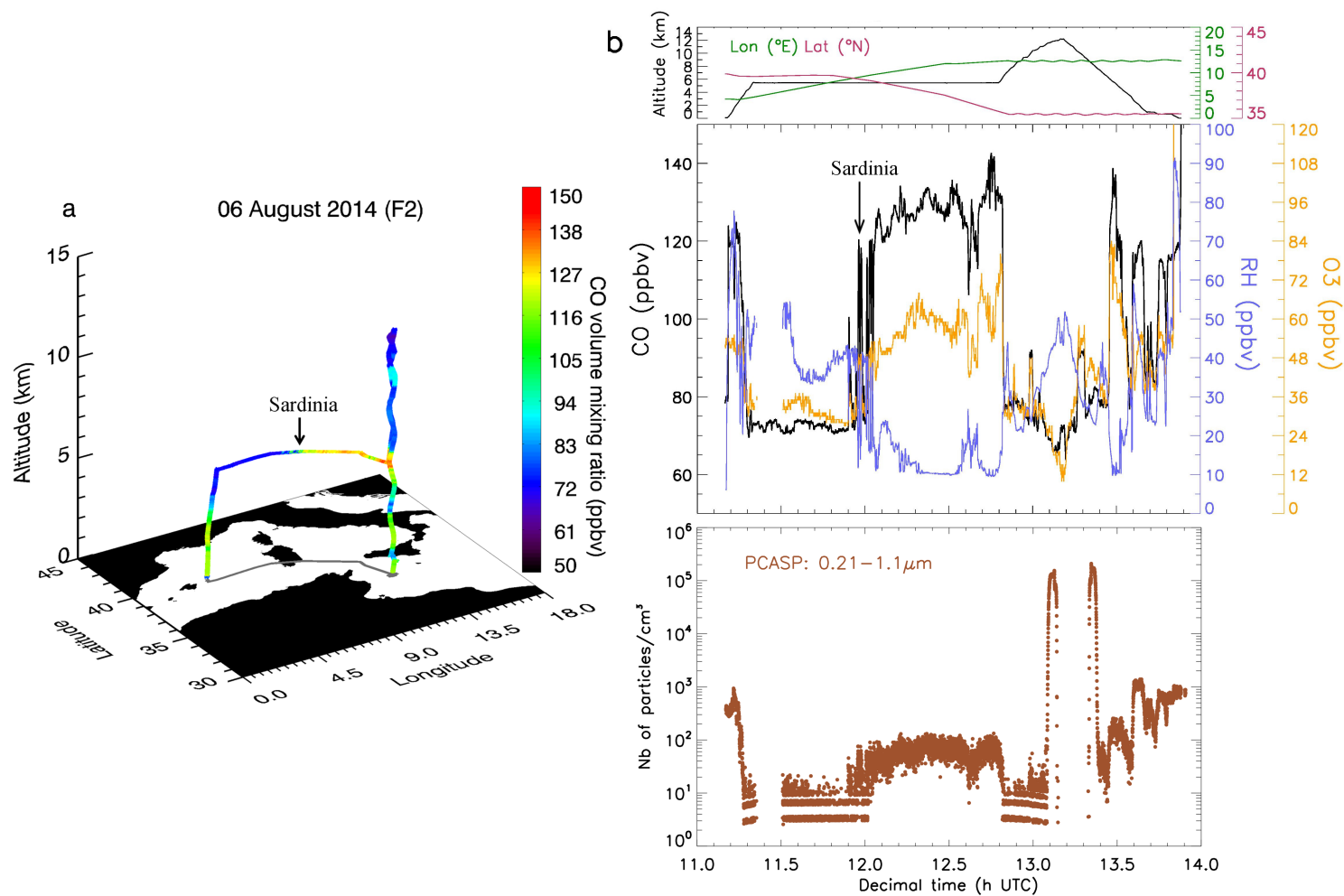


Figure 3.16 — Vol F2 (6 août 2014). (a) Trajectoire 3D avec un code couleur selon la rapport de mélange volumique (vmr) de CO entre Minorque et Lampedusa. (b) (En haut) : Altitude, longitude et latitude du vol en fonction du temps ; (Au milieu) : Séries temporelles des vmr de CO (en noir), O₃ (en orange) et d’humidité relative (en bleu) ; (En bas) : Séries temporelles des concentrations d’aérosols (en marron).

3.3.2 Mise en évidence de la source d'émission

La PES montrée en figure 3.17 a révèle que les masses d'air étaient proches de la Sibérie, du nord-ouest de la Chine et de l'ouest de la Mongolie environ 12 à 16 jours (21 au 25 juillet) avant le vol. Ces masses d'air ont ensuite voyagé vers l'est pour se retrouver au-dessus du Pacifique 6 jours (31 juillet) avant le vol. Leur transport se poursuit au-dessus du Canada environ 3 à 5 jours (1 au 3 août) avant le vol avant de finir au niveau de la Sardaigne. Le long de ces trajectoires, l'instrument MODIS a détecté des feux pour ces mêmes dates principalement au nord-ouest du Canada et en Sibérie (figure 3.17 a). La carte de contribution en figure 3.17 b indique que les contributions au CO des feux de biomasse se situent principalement au nord-ouest du Canada et en Sibérie.

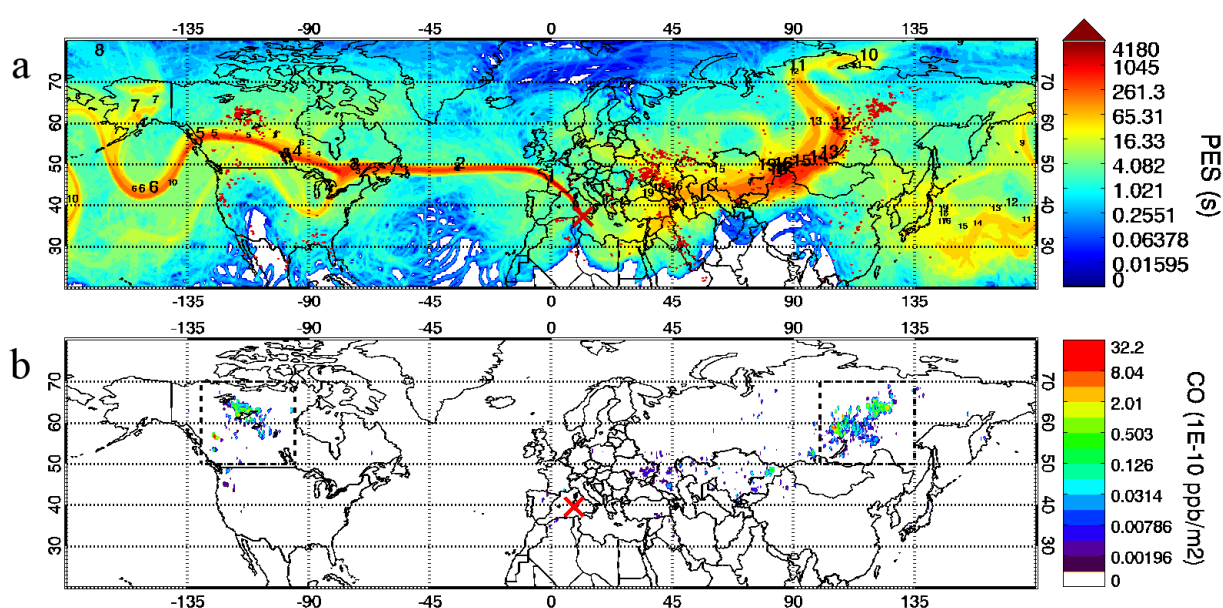


Figure 3.17 — (a) PES des particules dans une couche 0-10 km pour des rétro-trajectoires sur 20 jours le 06 août 2014, superposée à la détection des feux par MODIS (points rouges foncés) et les nombres correspondant aux jours de rétro-trajectoires dont la taille dépend du nombre de particules appartenant à chaque cluster. La croix rouge symbolise la localisation de l'avion au moment de la mesure du pic de pollution. (b) Contribution au CO des feux de biomasse, calculée dans une couche 0-10 km le 6 août 2014. Les rectangles en pointillés représentent les masques utilisés pour voir la contribution spécifique de la Sibérie et du Canada.

Afin de vérifier que la contribution du CO anthropique global n'affecte pas nos résultats, un couplage entre FLEXPART et l'inventaire EDGAR est réalisé. De la carte de contribution (figure 3.18), il peut être déduit que la contribution du CO anthropique contribue pour moins de 3 ppbv au pic.

En regardant l'âge des masses d'air calculé par FLEXPART en figure 3.19, deux contributions principales ressortent entre 12h et 12,8h UTC : le premier maximum se trouve entre le 1^{er} et 2 août (i.e. 5 et 4 jours avant le vol) lorsque la masse d'air se situait au-dessus du Canada et le second maximum est entre le 24 et 25 juillet (i.e. 13 et 12 jours avant le vol)

quand la masse d'air était au-dessus de la Sibérie.

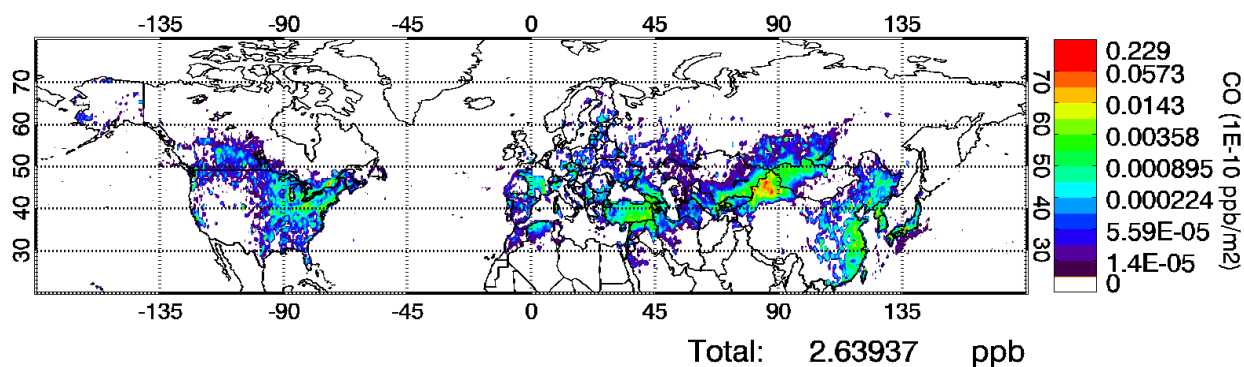


Figure 3.18 — Représentation de la contribution anthropique globale du CO dans la couche 0-200 m pour le 6 août 2014.

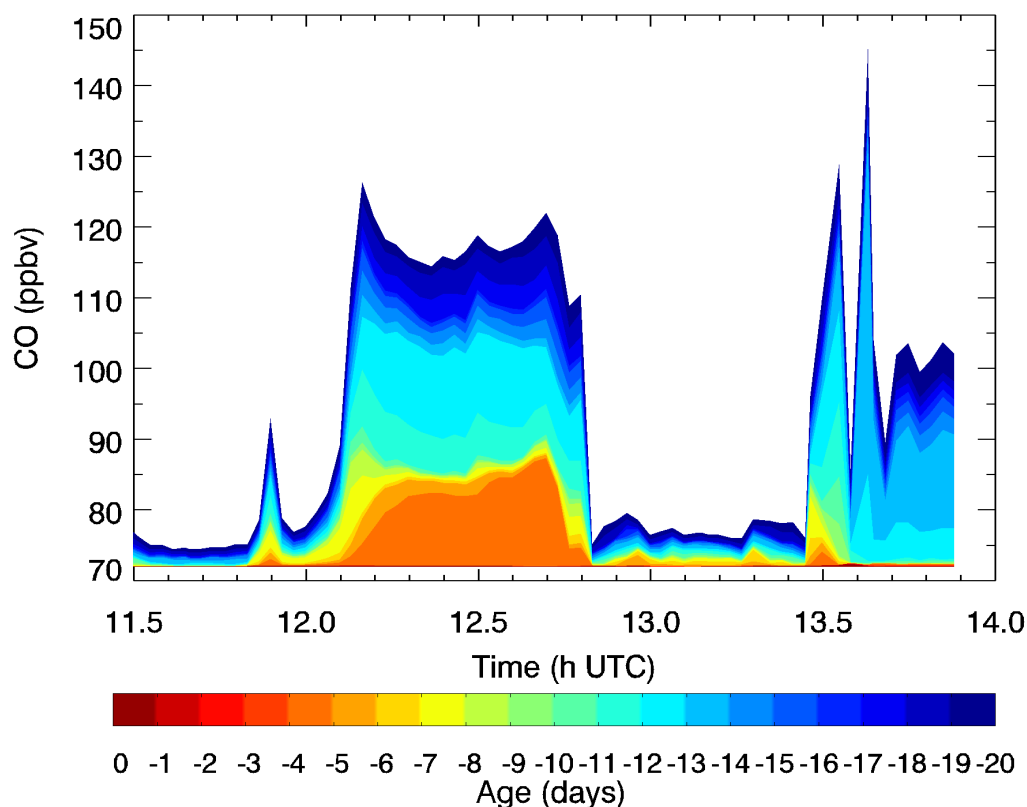


Figure 3.19 — Contribution du CO calculée par FLEXPART, avec un code couleur selon l'âge de la masse d'air, de 1 à 20 jours, sur une partie de F2, de 11,5 à 14,0h UTC, au-dessus de la Sardaigne à 5,4 km asl, avec une hauteur d'injection fixée jusqu'à 10 km dans FLEXPART.

3.3.3 Simulation de la contribution des feux de biomasse au CO : ajustement de la hauteur d'injection du panache

Comme dans l'étude de cas précédente (voir section 3.2.3.1), il faut injecter les émissions de feux de forêt à haute altitude dans les simulations FLEXPART afin d'imiter le transport vertical des panaches de feux. Le passage de CALIOP au-dessus de la Sibérie et de l'Amérique du Nord est encore utilisé pour estimer la hauteur d'injection. Le premier profil CALIOP donné en figure 3.20 a au-dessus de la Sibérie le 24 juillet à 18 :37 UTC indique la présence de fumée détectée jusqu'à 10 km d'altitude pour des latitudes allant de 47°N à 59°N, avec la plupart des aérosols concentrés autour de 5 km. Le second profil (figure 3.20 b) au-dessus de la côte est de l'Amérique du Nord le 2 août à 6 :58 UTC montre de la fumée détectée jusqu'à 11 km d'altitude pour des latitudes de 59°N à 65°N avec la plupart des aérosols détectés au-dessus de 5 km. Les données AIRS sont aussi utilisées pour identifier l'injection du CO par les feux. Le 24 juillet (figure 3.20 a), de fortes concentrations de CO sont détectées jusqu'à 10 km d'altitude, avec des concentrations maximales au-dessus de 5 km pour les latitudes 50-60°N. Le 2 août (figure 3.20 b), des concentrations de CO sont aussi détectées jusqu'à 10 km d'altitude avec des valeurs maximales au-dessus de 5 km pour les latitudes 60-70°N. CALIOP et AIRS sont tous les deux en accord pour estimer la hauteur d'injection du panache. Les estimations de GFAS pour le 24 et 25 juillet sont de 7,9 km au-dessus de la Sibérie, 10,4 km le 1^{er} août et 9 km le 2 août au-dessus du Canada (figure 3.21).

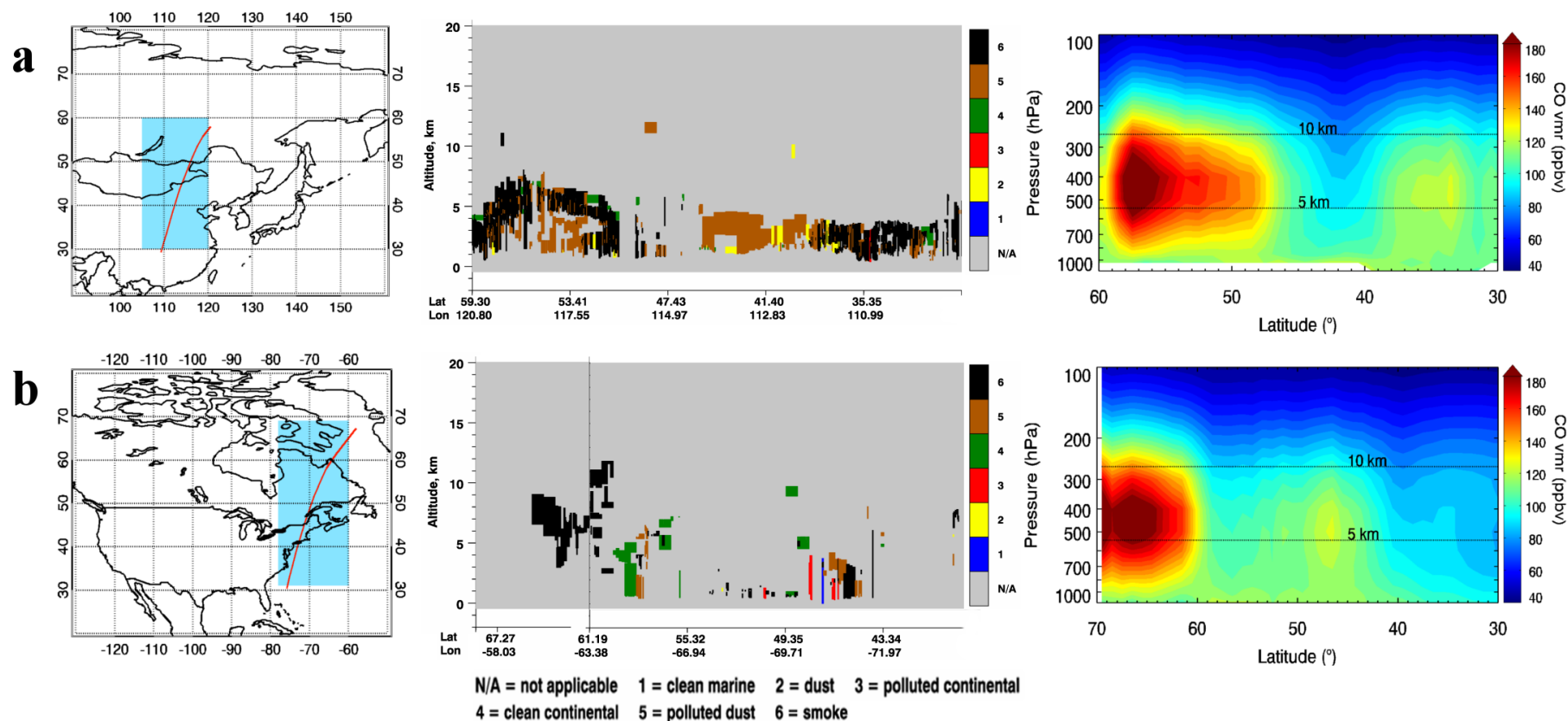


Figure 3.20 — (a) Le 24 juillet 2014 à 18 :37 UTC. (b) Le 2 août 2014 à 6 :58 UTC. (À gauche) Trace de CALIOP (ligne rouge) et aire correspondant à la moyenne des vmr de CO (rectangle bleu) de AIRS. (Au milieu) Distribution verticale des types d'aérosols (fumée en noir) associée à la trace de CALIOP. (À droite) Distribution verticale du CO de AIRS avec des données moyennées en longitude selon les coordonnées géographiques du rectangle bleu.

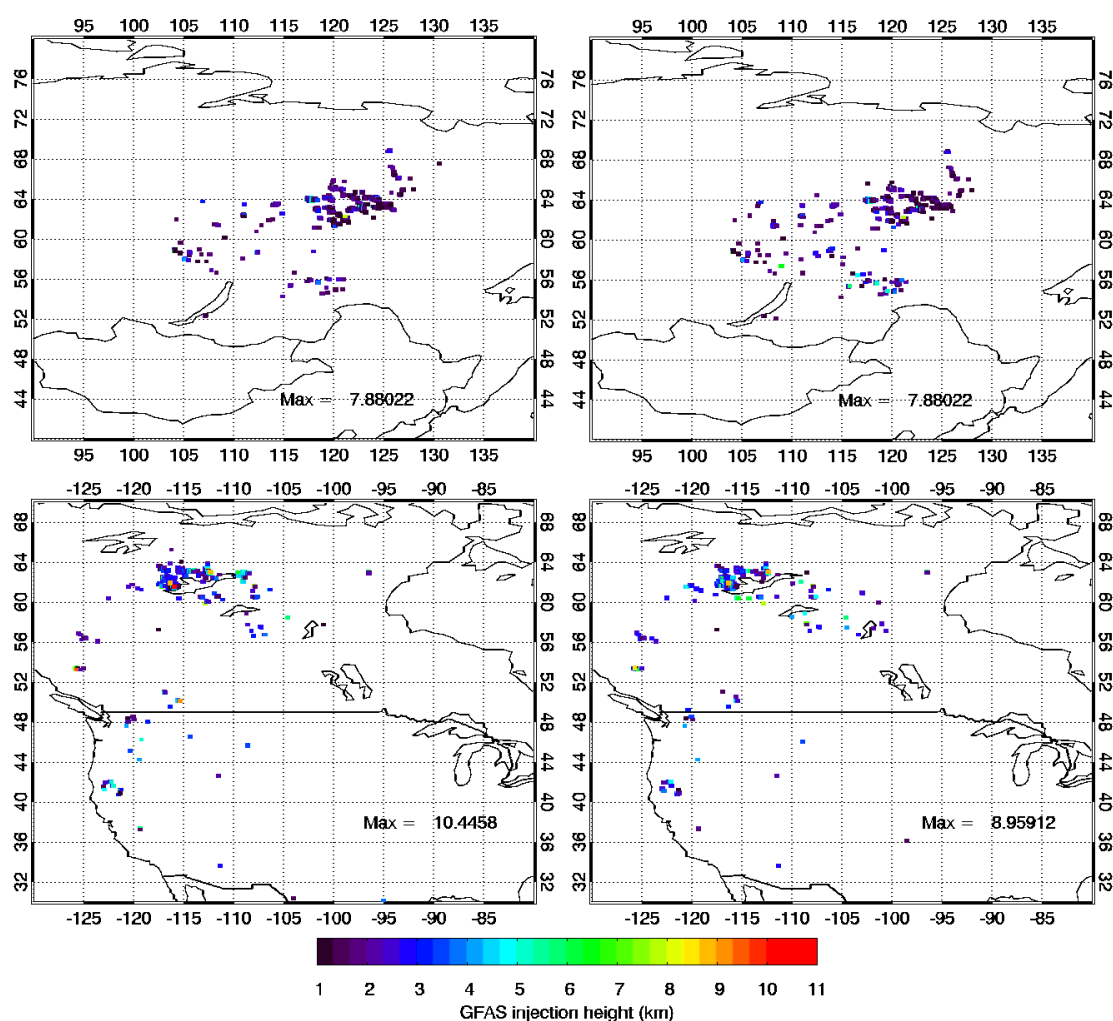


Figure 3.21 — Estimation de la hauteur d'injection par GFAS au-dessus de la Sibérie (en haut) les 24 et 25 juillet 2014, (en bas) au-dessus de l'Amérique du Nord les 1^{er} et 2 août 2014.

Du fait d'une différence de hauteur d'injection pour la Sibérie et le Canada, deux hauteurs sont testées avec FLEXPART pour les deux régions : à 6 et 10 km d'altitude. Pour la Sibérie, la différence entre les deux simulations entre 12,0 et 12,8h UTC est de 7%, ce qui signifie que la plupart des émissions émises par les feux se situent à des altitudes comprises entre 0 et 6 km, bien que certaines puissent atteindre des altitudes plus élevées. Pour le Canada, la différence pour la même période de temps est plus importante, de l'ordre de 27%, avec l'altitude à 10 km donnant les contributions les plus fortes. Une hauteur d'injection de 10 km pour les deux régions est finalement retenue. Cette hauteur d'injection permet une meilleure représentation des mesures pour les feux provenant du Canada tout en simulant des valeurs cohérentes avec les mesures pour les feux provenant de Sibérie (légère surestimation par rapports aux hauteurs d'injection données par CALIOP, AIRS et GFAS). Sélectionner chaque zone pour trouver où la contribution des feux de biomasse domine montre que, pour le CO, la Sibérie et le Canada contribuent approximativement avec la même quantité, avec une contribution

légèrement plus élevée venant de la Sibérie (figure 3.22).

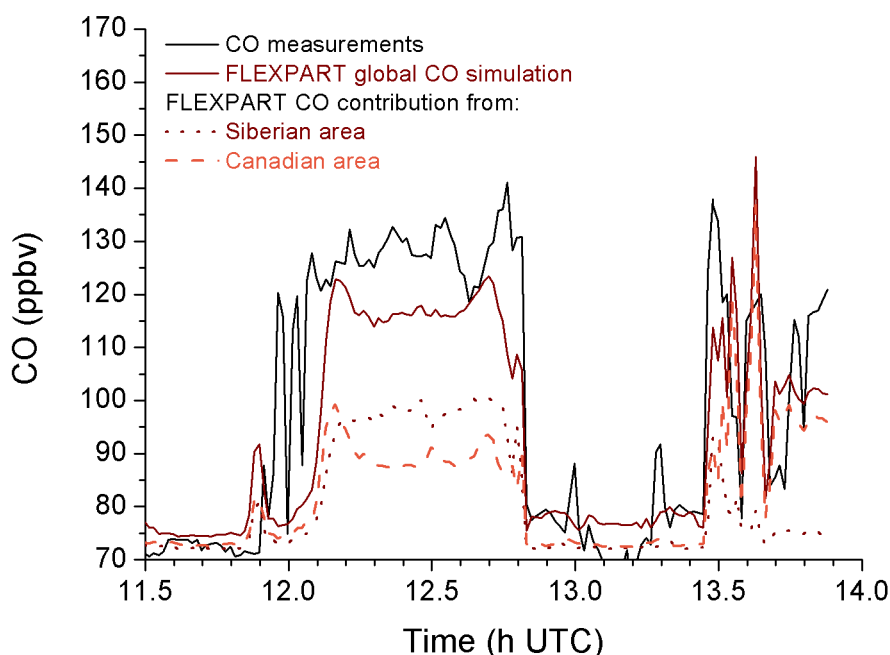


Figure 3.22 — Évolution temporelle du CO le long du vol : mesures de SPIRIT (dégradées sur la résolution temporelle de FLEXPART) et simulations FLEXPART, sur une partie de F2, de 11,5 à 14,0h UTC, au-dessus de la Sardaigne à 5,4 km asl, avec une hauteur d'injection fixée jusqu'à 10 km dans FLEXPART.

3.3.4 Simulation de la contribution des feux de biomasse au BC

Pour ce qui est des simulations du BC (avec un coefficient de 3,4 appliqué aux émissions GFAS (Kaiser et al., 2012) comme dans le cas d'étude précédent), la carte de contribution (figure 3.23) pour une hauteur d'injection fixée jusqu'à 10 km donne le Canada et la Sibérie comme sources principales d'émission.

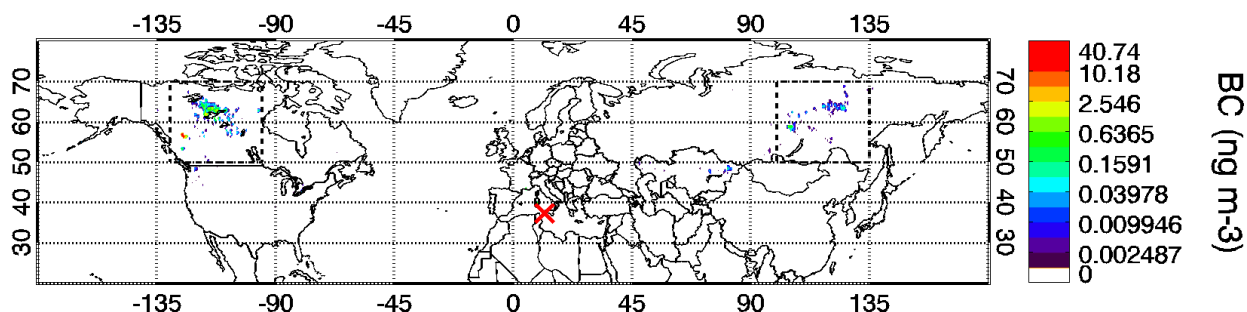


Figure 3.23 — Contribution au BC des feux de biomasse calculée dans une couche 0-10 km le 06 août 2014. Les rectangles en pointillés représentent les masques utilisés pour voir la contribution spécifique de la Sibérie et du Canada. La croix rouge symbolise la localisation de l'avion au moment de la mesure du pic de pollution.

L'augmentation d'aérosols entre 12,0h et 12,8h UTC simulée par FLEXPART est bien corrélée aux mesures, comme illustré dans la figure 3.24. Concernant la contribution au BC pour chaque zone, le Canada est donné comme étant le principal contributeur pour tout le pic (figure 3.24).

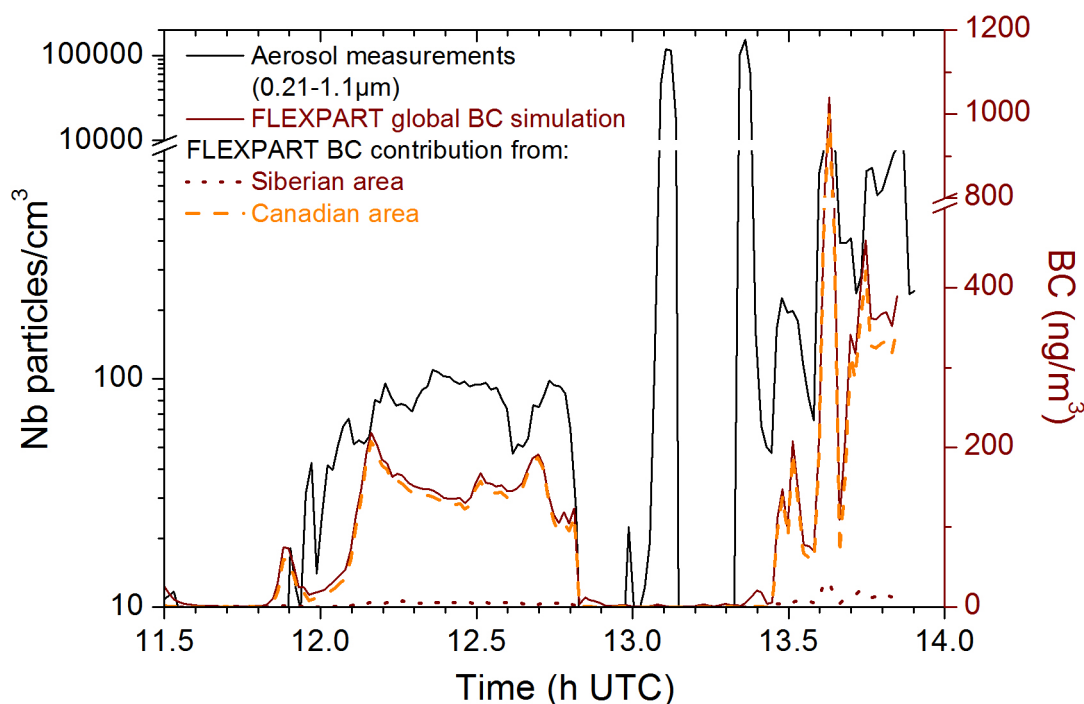


Figure 3.24 — Évolution temporelle de la densité de particules le long de la trajectoire du vol F2 : mesures du PCASP (dégradées sur la résolution temporelle du SPIRIT) et simulations FLEXPART.

Le BC émis par les feux de Sibérie 12 à 13 jours avant le vol a voyagé plus longtemps que le BC émis par les feux canadiens. Les données ARPEGE en figure 3.25 montrent des précipitations stratiformes 2, 4 et 6 jours avant le vol avec moins de 0,1 mm/h et des nuages en-dessous des particules. Ces précipitations sont très faibles et ne permettent pas d'expliquer la faible contribution des aérosols venant de Sibérie. Les processus de dépôts secs et de sédimentation sont activés dans les simulations FLEXPART. Le premier processus s'applique uniquement dans les plus basses couches de l'atmosphère tandis que la sédimentation, due à la gravité, a lieu dans toute la colonne atmosphérique et est un puits important pour les aérosols (Kerckweg et al., 2006). Ces deux processus de dépôt sec induisent un temps de vie court pour les particules, allant de quelques heures à quelques jours (Bond et al., 2013), et expliqueraient pourquoi la Sibérie ne contribue pas de façon significative à la teneur en aérosols mesurée par l'avion pour le vol F2.

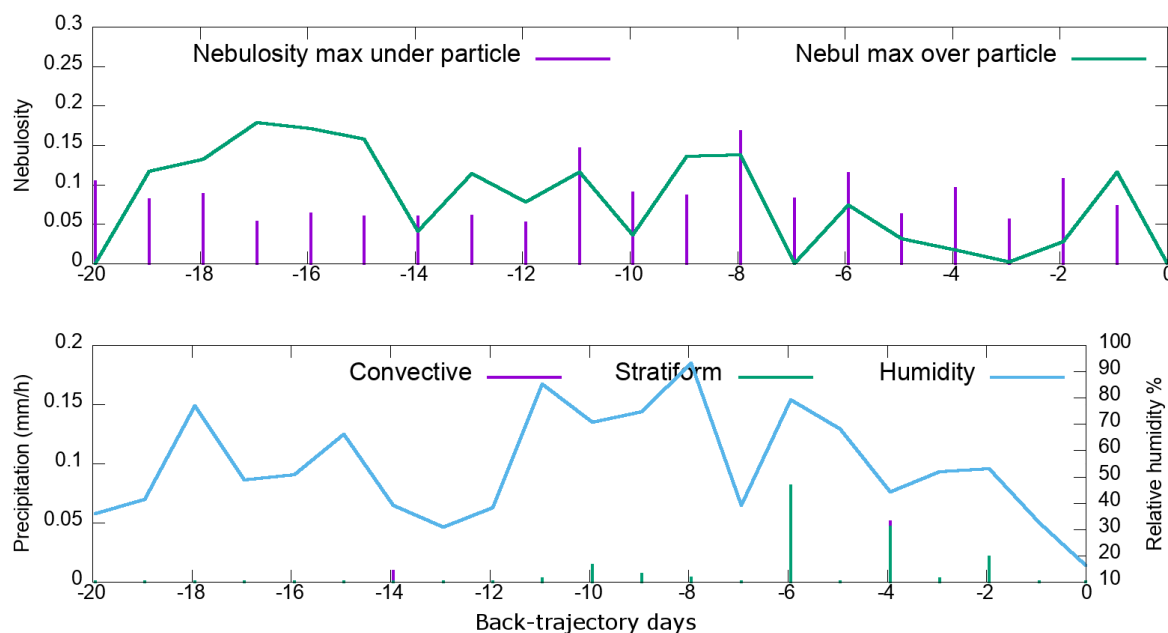


Figure 3.25 — (En haut) Simulation de la nébulosité au-dessus et en-dessous des particules relarguées par FLEXPART le 6 août 2014 et (en bas) simulation des précipitations convectives et stratiformes et de l'humidité relative, par le modèle ARPEGE.

3.3.5 Analyse du transport de la masse d'air vers le bassin Méditerranéen

3.3.5.1 Simulations MOCAGE

D'après l'analyse des rétro-trajectoires fournies par FLEXPART, il apparaît qu'environ 12 à 13 jours avant F2, les masses d'air venaient de Sibérie où elles se sont chargées en CO et aérosols du fait des feux de forêt. Le panache de fumée a voyagé vers l'est jusqu'au Canada où les masses d'air se sont de nouveau chargées en polluants du fait de la présence de feux dans la région. Elles ont ensuite traversé l'Atlantique à 50°N puis se sont dirigées vers le sud-ouest de la côte européenne jusqu'au BM où elles ont finalement été détectées par les instruments de l'avion le 6 août à 5,4 km d'altitude au-dessus de la Sardaigne. Pour compléter cette analyse, des simulations de la composition atmosphérique globale pour les feux de biomasse atteignant le bassin méditerranéen le 6 août sont réalisées avec le CTM MOCAGE. Cela permet de confirmer l'origine de la pollution en utilisant un outil complémentaire. Comme dans les simulations FLEXPART, les émissions de feux de biomasse, provenant de l'inventaire GFAS, sont fixées à une hauteur d'injection de 10 km. Les champs météorologiques proviennent des analyses opérationnelles du modèle de prévision numérique du temps ARPEGE, utilisé à Météo-France. La dynamique est donc légèrement différente de celle utilisée dans les simulations FLEXPART. La figure 3.26 présente les concentrations de CO (en ppbv) à 5,5 km d'altitude entre le 23 juillet (a) et le 6 août (o) à 12h UTC. Les ellipses rouges correspondent à la position de la masse d'air du 23 juillet au 6 août atteignant le BM au moment des observations durant F2 au-dessus de la Sardaigne. Cette figure est à rapprocher de

la figure 3.17 a, représentant la PES des simulations faites avec FLEXPART pour cet épisode.

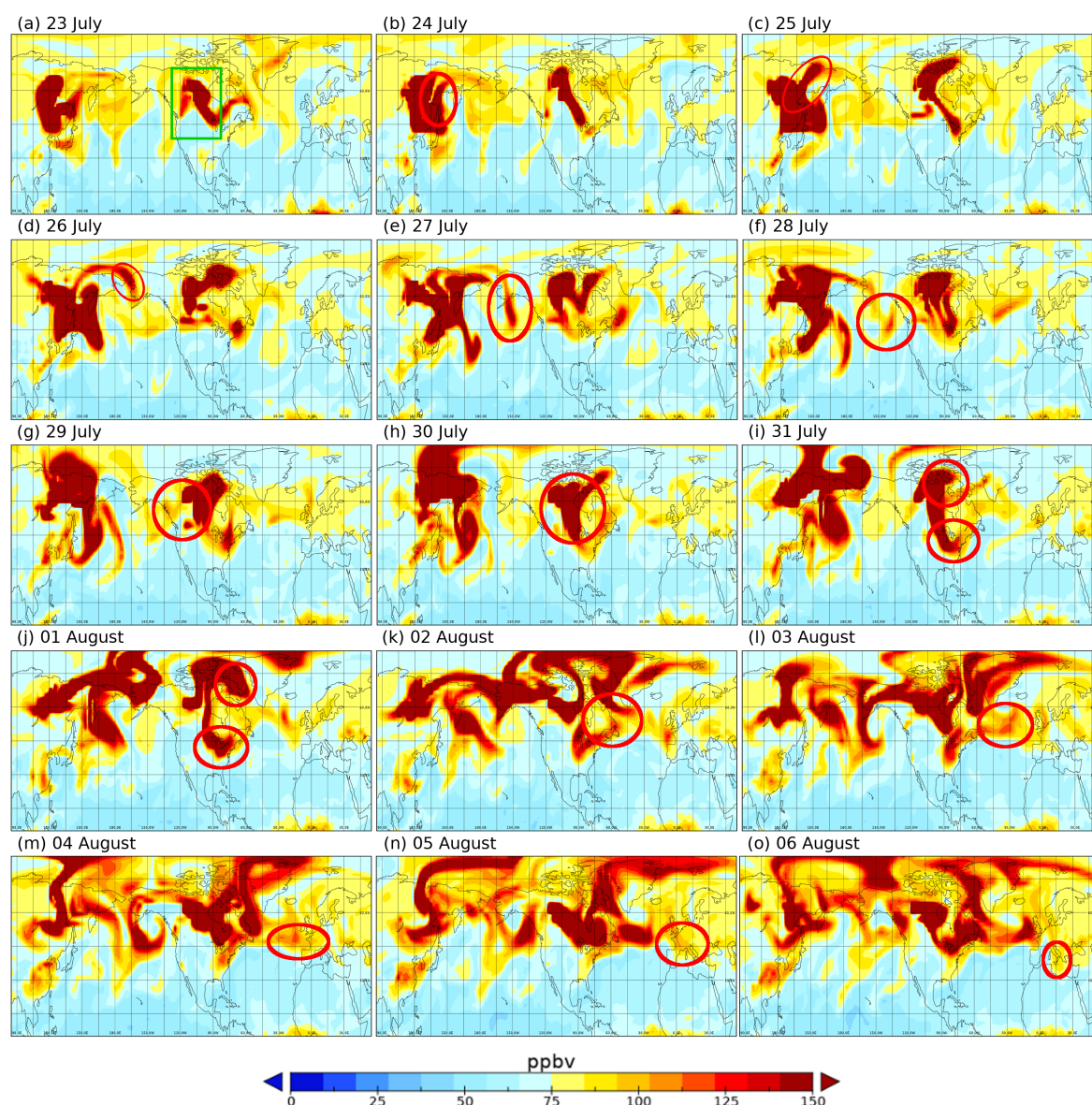


Figure 3.26 — Concentrations de CO à 12 UTC entre le 23 juillet et le 6 août à 5,5 km d'altitude simulées par MOCAGE. Les ellipses rouges sont utilisées pour suivre la trace du panache de feux de biomasse le long de la trajectoire. Le rectangle vert en (a) correspond à la boîte utilisée pour la figure 3.27.

Il y a de fortes concentrations de CO dues aux émissions de feux de biomasse entre le 23 et 26 juillet (figures 3.26 a à d) au-dessus de la Sibérie. Une partie de ces émissions est transportée vers le continent nord-américain. Ce transport commence avec une branche allant vers le nord, au-dessus du détroit de Béring, avant de faire une boucle au-dessus de l'océan Pacifique près des côtes canadiennes entre le 26 et 30 juillet (figures 3.26 d à h). Ce comportement est cohérent avec la PES de FLEXPART en figure 3.17 a montrant une

boucle au-dessus de l'océan Pacifique.

Entre le 31 juillet et le 3 août (figure 3.26 i à l), on peut voir des émissions de CO dues aux feux de biomasse au-dessus de l'Amérique du Nord qui se mélangent avec le panache de feux venant de la Sibérie. Les figures 3.27 a et 3.27 b présentent la coupe transversale des concentrations moyennes de CO et le vent vertical dans une zone entre 40°N et 70°N pour le 1^{er} août à 12h UTC (la zone est représentée en vert dans la figure 3.26 a), respectivement. La figure 3.27 a montre la trace de CO venant de Sibérie (entre 120°O et 100°O), prête à se mélanger avec les émissions fraîches au-dessus de l'Amérique du Nord (autour de 95°O). Cette figure suggère une descente de la masse d'air incluant le CO transporté depuis la Sibérie vers l'Amérique du Nord où les feux ont eu lieu. Cette idée est supportée par la vitesse du vent vertical représentée en figure 3.27 b où les valeurs positives sont un signe de subsidence. Pendant cette période (figures 3.26 i à k), il est possible de voir une séparation au-dessus du continent nord-américain avec une branche passant au-dessus du nord du Canada et une deuxième au-dessus des États-Unis. Ce dernier résultat est, une fois encore, cohérent avec la PES calculée par FLEXPART qui montre une trajectoire préférentielle pour la branche la plus au nord.

Entre le 3 et le 6 août (figures 3.26 l à o), la pollution mesurée pendant le vol F2 a voyagé autour de 5,5 km d'altitude depuis la côte est du continent nord-américain vers le BM via des vents rapides (figure 3.28) qui représentent le champ de vent moyen à 5,5 km entre le 3 et 6 août. Ces vents forts à 5,5 km correspondent à la partie basse d'un jet de haute altitude localisé aux alentours de 10 km d'altitude. Ce transport du panache au-dessus de l'océan Atlantique est simulé de façon similaire avec FLEXPART (figure 3.17 a).

Au moment et à la localisation des mesures, la simulation faite avec MOCAGE donne un rapport de mélange de CO d'environ 90 ppbv dans le panache et de 60 ppbv en dehors du celui-ci (figure 3.26 o). Même si ces valeurs sont plus faibles que les mesures, MOCAGE reproduit la variation du CO à l'intérieur et à l'extérieur du panache. La résolution horizontale du modèle, de 2°x2°, induit une dilution des émissions puis un phénomène de diffusion durant le transport du panache sur plusieurs jours. La simulation FLEXPART montre une contribution légèrement dominante de la Sibérie pour les émissions de feux comparé à l'Amérique du Nord (figure 3.19 a). L'estimation numérique de la contribution des émissions de Sibérie et du continent nord-américain n'a pas été calculée directement par MOCAGE. Cependant, d'après les concentrations modélisées, la contribution de la Sibérie semble être au contraire plus faible que celle de l'Amérique du Nord. Les différents champs dynamiques utilisés pour les simulations (ARPEGE pour MOCAGE et ERA-Interim pour FLEXPART) peuvent produire des différences dans les résultats. La configuration des modèles, schéma lagrangien pour FLEXPART et modèle de chimie transport 3D utilisant un schéma semi-lagrangien pour MOCAGE, peut aussi expliquer les différences de résultats. La géométrie de MOCAGE avec une résolution grossière, ainsi que la diffusion du modèle, rend le transport plus long des émissions

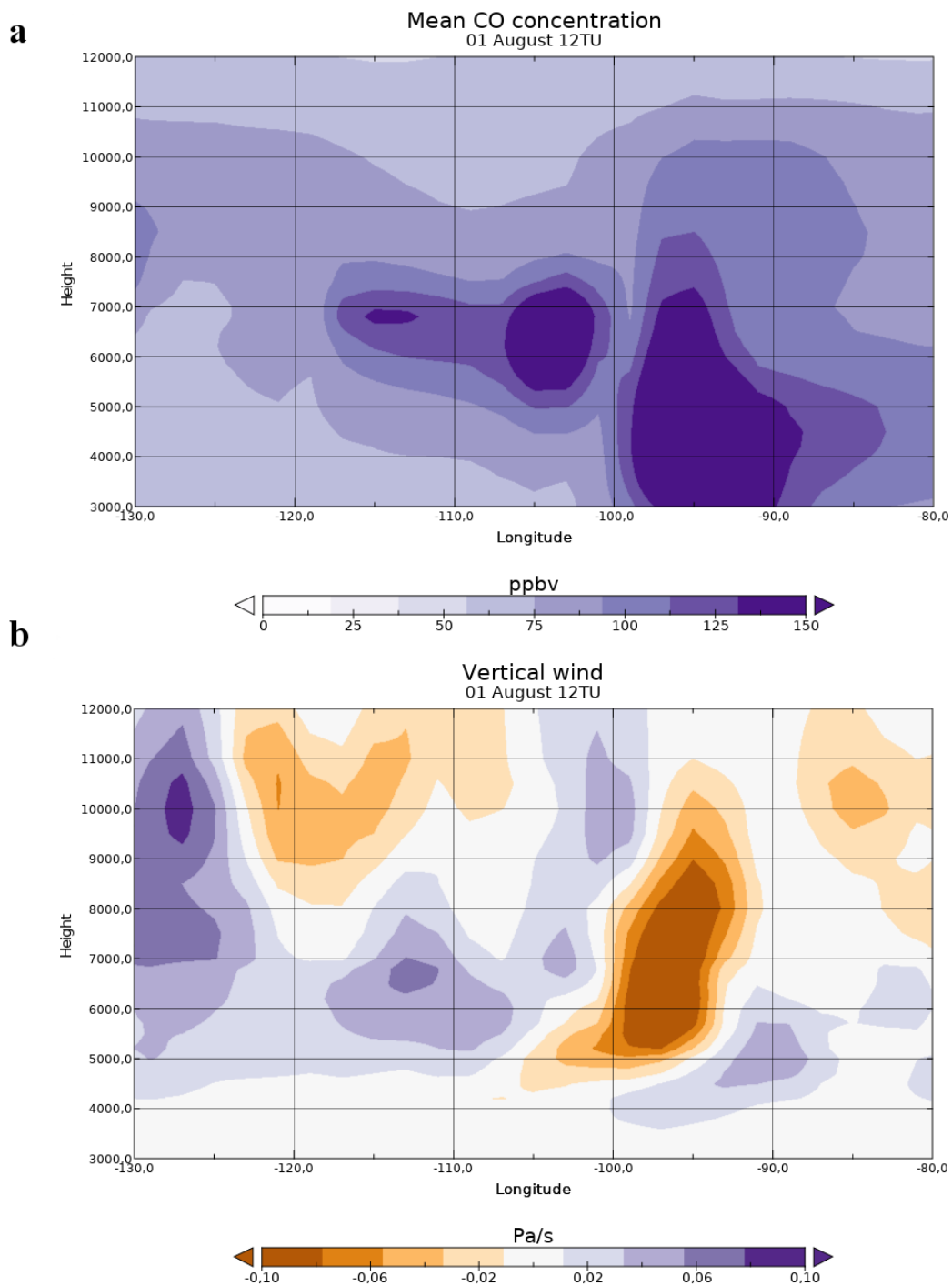


Figure 3.27 — (a) Coupe longitude-altitude des concentrations moyennes de CO calculées par MOCAGE le 1^{er} août, 12 :00 UTC, entre 40°N et 70°N. (b) Vent vertical entre 40°N et 70°N (délimitation géographique donnée par le carré vert en figure 3.26) le 1^{er} août à 12 :00 UTC.

sibériennes et donc plus diluées que les émissions nord-américaines.

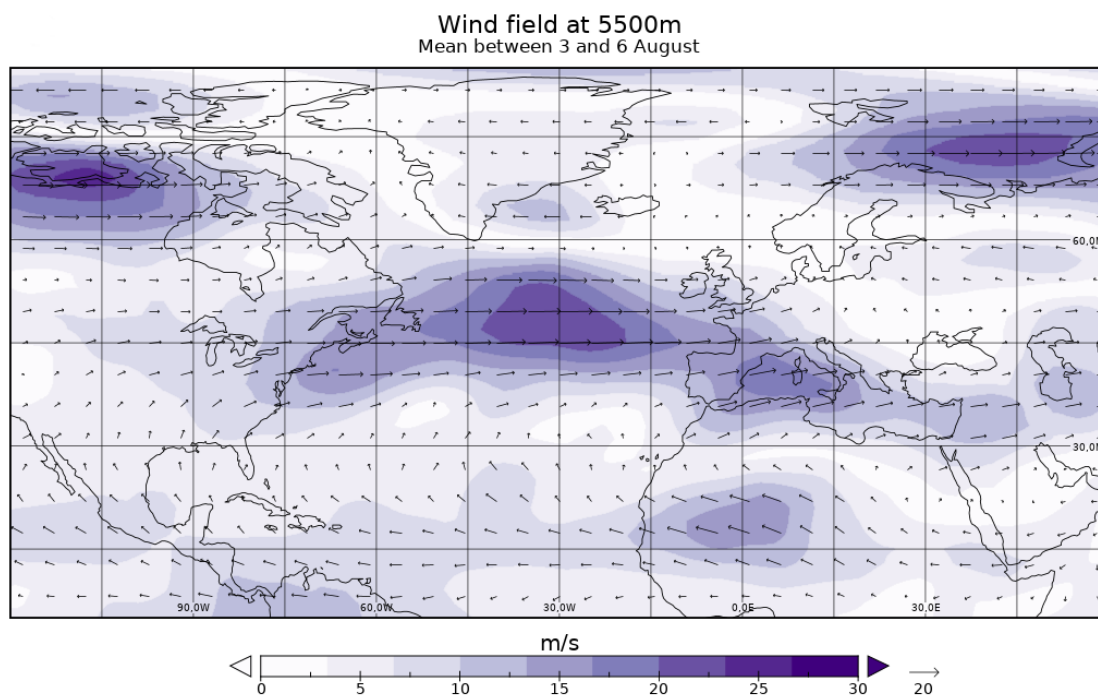
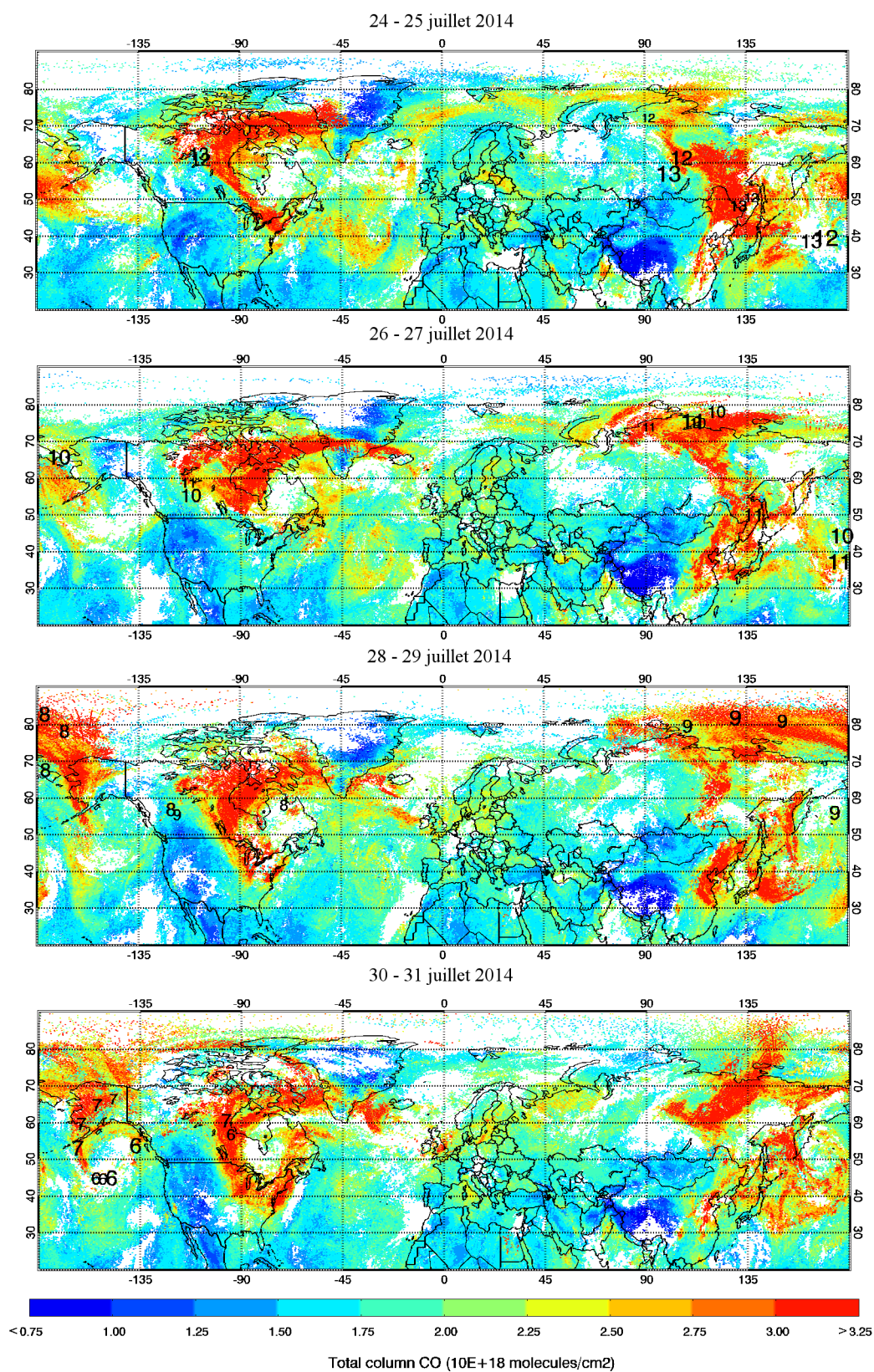


Figure 3.28 — Champ de vent moyen à 5,5 km asl entre le 3 et le 6 août selon le modèle ARPEGE.

3.3.5.2 Données IASI

Une fois encore, les mesures de la colonne totale de CO en molécules.cm⁻² vont permettre de mettre en évidence le transport du panache de pollution de la Sibérie jusqu'au BM et donc confirmer les résultats de FLEXPART et de MOCAGE. La figure 3.29 montre les concentrations de CO du 24 juillet au 6 août 2014, soit 13 jours avant le vol et jusqu'à la mesure du pic.

Les 24 et 25 juillet 2014, des colonnes de CO supérieures à 3×10^{18} molécules.cm⁻² sont visibles au-dessus de la Sibérie autour de 50-60°N et 100-135°E. Les 26 et 27 juillet, le panache s'est déplacé plus au nord de la Sibérie, entre 70°N et 80°N, et plus à l'est, atteignant même le Pacifique. Les 28 et 29 juillet, une bande de CO bien visible autour de 80°N s'étend d'environ 90°E jusqu'à 140°O et arrive donc au-dessus de l'Amérique du Nord. Les 30 et 31 juillet, le panache est uniquement présent en Amérique du Nord et notamment au Canada entre 60-70°N et 90-130°O. Dès le 1^{er} et 2 août, le panache de CO est bien établi au-dessus du Canada (50-70°N et 90-130°O) et va ensuite traverser l'océan Atlantique les 3 et 4 août le long de la latitude 50°N. Enfin, un jour avant la mesure, le 5 août, le panache de CO se situe au-dessus de la France avec des quantités plus faibles, de l'ordre de $2,0-2,50 \times 10^{18}$ molécules.cm⁻² avant d'atteindre la Sardaigne, plus au sud, le jour suivant. Le suivi du transport du CO par les mesures de IASI va donc dans le même sens que les résultats de MOCAGE et FLEXPART et confirme le transport des émissions de biomasse depuis la Sibérie jusqu'au BM en passant par le Canada pendant 13 jours.



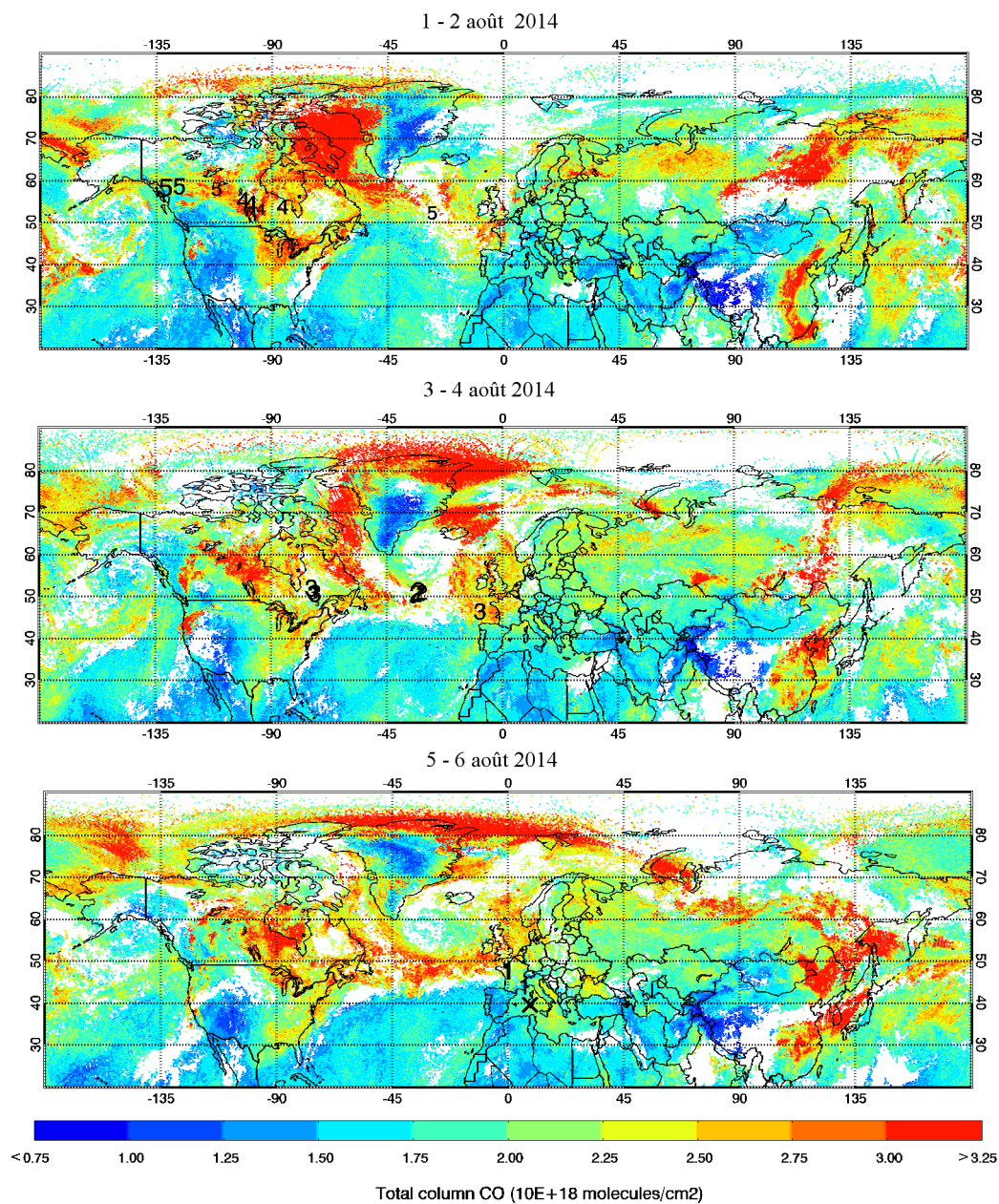


Figure 3.29 — Mise en évidence du transport par l'évolution de la colonne totale de CO mesurée par l'instrument IASI sur le satellite MetOp du 24 juillet au 6 août 2014. Les chiffres indiquent la localisation des masses d'air en fonction des jours de rétro-trajectoires calculés par FLEXPART. La taille des chiffres varie selon le nombre de particules contenues dans chaque cluster. La croix noire désigne l'emplacement de l'avion lors de la mesure du pic.

Il est à nouveau possible de vérifier que les sources de CO étudiées correspondent bien à des émissions naturelles de biomasse et non à des émissions anthropiques en couplant le CO avec le NH_3 . La figure 3.30 représente les concentrations de NH_3 en molécules. cm^{-2} pour le 24 juillet au-dessus de la Sibérie et pour le 2 août au-dessus de l'Amérique du Nord, jours de contribution principale d'après la figure 3.19 b. Des colonnes supérieures à 93×10^{15} molécules. cm^{-2} sont visibles aux alentours de 60°N et $100\text{-}135^\circ\text{E}$ pour le 24 juillet, en accord avec la localisation des quantités élevées de CO par IASI et les résultats de FLEXPART. Pour le 2 août, de fortes quantités sont mesurées sur la côte ouest américaine ($35\text{-}45^\circ\text{N}$ et $115\text{-}130^\circ\text{O}$) et au Canada ($60\text{-}65^\circ\text{N}$ et $110\text{-}120^\circ\text{O}$) toujours en accord avec le CO de IASI. Les résultats de FLEXPART montrent bien ces deux mêmes zones d'émission avec une contribution majoritaire venant du Canada.

3.3.6 Précédents cas de transport transpacifique-transatlantique de feux de forêt reportés

Le transport transpacifique du CO et des particules depuis le continent asiatique vers le nord-est du Pacifique est bien documenté (par exemple, Bertschi et al., 2004 et références citées, Jaffe et al., 2004, Spichtinger et al., 2004, Heald et al., 2003, Heald et al., 2006 et références citées, Bertschi and Jaffe, 2005, Holzer et al., 2005) avec un transport dans les 5 à 8 jours et avec des panaches à des altitudes allant de la moyenne à la haute troposphère. Les feux de forêts boréales, plus fréquents au Canada et en Sibérie (Spichtinger et al., 2004), ont principalement lieu de mai à octobre (Lavoué et al., 2000). La localisation des émissions de Sibérie calculée par FLEXPART est en accord avec Liang et al. (2004) qui indique que les émissions en été de feux de forêts boréales sont exportées à des latitudes supérieures à 55°N , ce qui est confirmé par Spichtinger et al. (2004) avec les concentrations les plus élevées au-dessus de la Sibérie détectées à des latitudes supérieures à 70°N . Des concentrations de CO extrêmes (jusqu'à 800 ppbv) ont été mesurées autour du lac Baikal entre 8 et 12,5 km d'altitude (Nedelec et al., 2005). Un tel événement de circulation autour du globe par l'est en partant de la Sibérie vers l'Europe est décrit dans Damoah et al. (2004). Dans leur étude, le panache simulé par FLEXPART au-dessus de l'Alaska se situe à une altitude entre 2 et 5 km et un peu plus haut au-dessus du Canada, entre 4 et 7 km. Spichtinger et al. (2004) rapportent le transport d'émissions de feux de biomasse sibériens, en 1998, vers le Canada suivi par un transport vers l'Europe. Dans leur cas, le panache au-dessus du Canada se trouvait une fois encore à plus haute altitude (2-8 km) que celui au-dessus de la région source, la Sibérie (0-6 km). Le cas de transport transatlantique, entre le Canada et la Sardaigne, évoqué dans l'étude de cas du 6 août est à rapprocher des cas reportés dans le tableau 3.2.

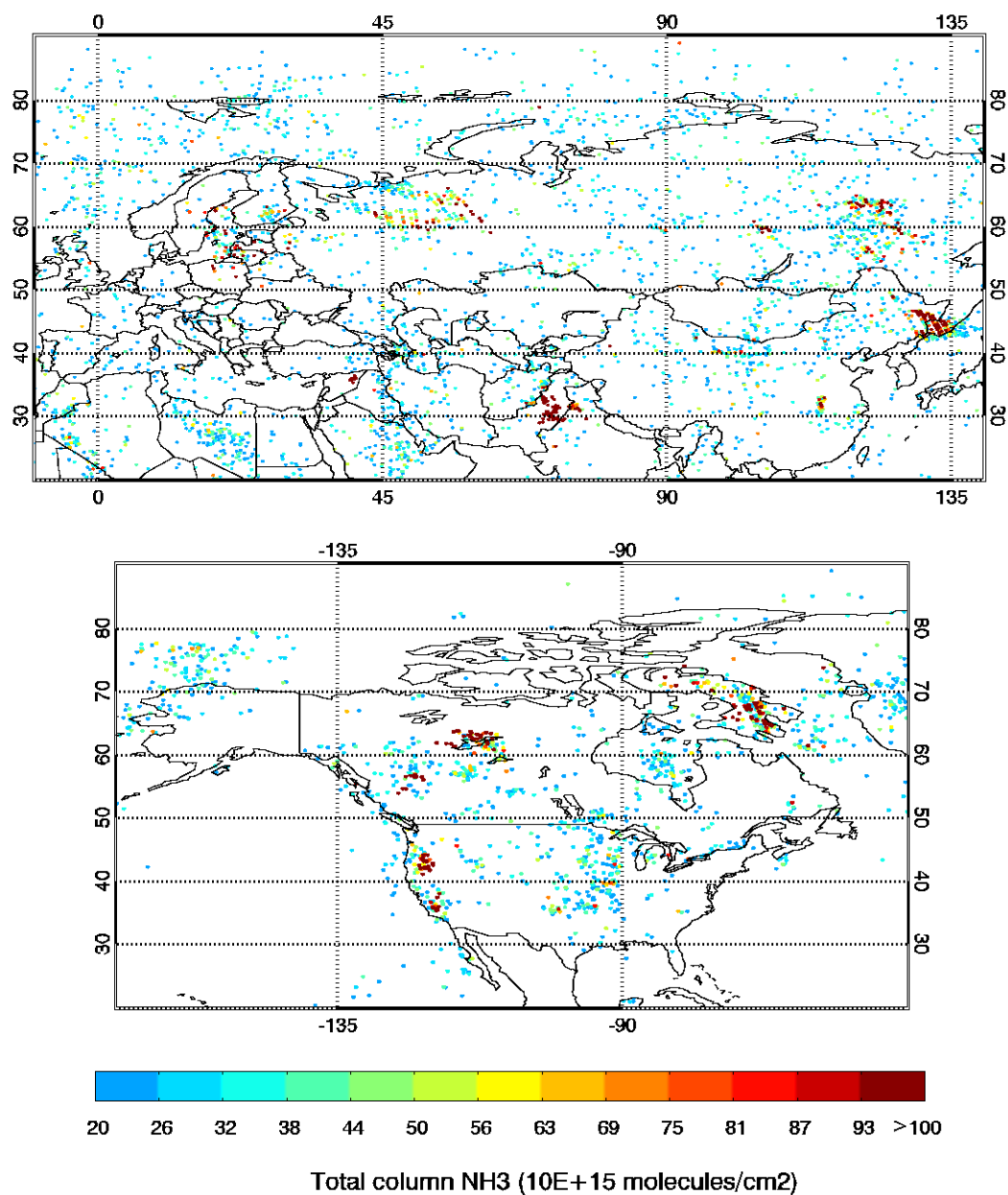


Figure 3.30 — Colonne totale de NH_3 en molécules.cm^{-2} mesurée par IASI-MetOp au-dessus de la Sibérie le 24 juillet 2014 (en haut) et de l'Amérique du Nord le 2 août 2014 (en bas).

3.4 Conclusions

Cette étude présente deux événements notables de transport à longue distance de feux de biomasse détectés au-dessus de la Sardaigne, au niveau du versant ouest du BM, durant la campagne aéroportée GLAM en août 2014. Les mesures de la campagne contribuent à enrichir les quelques observations in-situ déjà disponibles et nécessaires à une meilleure description de la distribution des gaz traces au niveau du BM. Dans le premier cas (F8, 10 août), un pic très

intense de CO à ~ 260 ppbv a été mesuré à 9,7 km asl, corrélé à un pic d'aérosols et d'O₃ et une diminution de l'humidité relative. Dans le deuxième cas (F2, 6 août), une augmentation de CO, O₃ et d'aérosols accompagnée d'une diminution de l'humidité relative a été mesurée à 5,4 km asl pendant plus de 40 minutes le long du vol.

Nous avons utilisé les mesures in-situ de CO et d'aérosols en combinaison avec les modèles pour analyser le transport intercontinental. L'origine de ces événements est étudiée grâce à FLEXPART. En utilisant les cartes de la PES et en sélectionnant des zones d'intérêt sur les cartes de contribution, il est possible de voir que, pour l'épisode du 10 août, les émissions venant du continent nord-américain ont voyagé durant environ 5 jours avant d'être mesurées dans le BM. Dans le cas du 6 août, les émissions de feux de biomasse ont voyagé depuis la Sibérie vers l'est du globe avant d'atteindre le Canada où la masse d'air s'est de nouveau chargée en émissions issues de feux de biomasse, avant de finalement arriver et impacter la troposphère libre du BM.

FLEXPART a montré sa capacité à reproduire la contribution de CO et du BC due aux feux après ajustement de deux paramètres : la hauteur d'injection et l'amplification des émissions de CO de l'inventaire GFAS. L'ajustement de la hauteur d'injection s'explique par le fait que la pyroconvection n'est pas incluse dans le modèle. Le choix de l'altitude d'injection est validée grâce aux données des instruments CALIOP et AIRS et aux estimations fournies par GFAS. Finalement, la hauteur d'injection est fixée jusqu'à 10 km dans les deux études de cas. MOCAGE, avec cette hauteur d'injection, est capable de reproduire qualitativement les variations de la concentration de CO.

L'utilisation des données IASI pour le 10 août permet de mettre en évidence le transport des polluants via le jet stream. Une étude détaillée du transport des masses d'air pour le 6 août révèle une subsidence menant à une descente du CO depuis la Sibérie vers l'Amérique du Nord. Cette pollution voyage depuis la côte est du continent nord-américain jusqu'au BM à une altitude de 5,5 km, dans la partie basse d'un jet de haute altitude. Une future étude serait d'effectuer des simulations spécifiques dans le but de quantifier la fréquence d'occurrence de ces événements de transport à longue distance de feux de forêt à haute latitude, durant l'été.

* *
*

4

Pollution aux latitudes équatoriales

Ce chapitre regroupe les travaux de recherche de deux campagnes de mesures ayant reçu un financement européen du 7^{ème} Programme Cadre de Recherche et de Développement Technologique (PCRDT). Les deux zones d'études se situent au niveau des latitudes équatoriales où l'on observe un fort développement économique avec une transformation des usages des terres à la fois pour l'agriculture et pour l'urbanisation. Le trafic maritime et l'extraction du pétrole à partir de plateformes offshore y est aussi en développement, entraînant une augmentation des émissions de ces secteurs d'activité. Les pays en développement à ces latitudes souffriront d'autant plus du changement climatique de par leurs capacités économiques, reposant en partie sur l'agriculture directement impactée par le changement climatique, et technologiques plus limitées pour s'adapter aux modifications du climat ([Mertz et al., 2009](#)). La première campagne à laquelle je me suis intéressée, dans le cadre du projet DACCIWA/APSOWA (Dynamics-Aerosols-Chemistry-Cloud Interactions in West Africa/Atmospheric Pollution from Shipping and Oil platforms of West Africa), s'est déroulée en juin et juillet 2016 en Afrique de l'Ouest. L'intérêt du golfe de Guinée comme zone d'étude réside dans le fait que les pays côtiers connaissent un développement économique et démographique important, entraînant une augmentation des émissions et une dégradation de la qualité de l'air. La région souffre néanmoins d'un réseau d'observations in situ limité. Les données collectées lors de la campagne permettent donc de faire avancer les connaissances sur les processus atmosphériques complexes au niveau de cette région. Une étude détaillée sera menée sur les émissions de plateformes pétrolières, susceptibles d'impacter la côte, sur les émissions du couloir maritime du golfe de Guinée et sur les émissions de feux d'Afrique centrale transportées jusqu'au golfe de Guinée.

La deuxième campagne d'intérêt pour mes travaux de thèse, dans le cadre du projet SHIVA (Stratospheric ozone : Halogen Impacts in a Varying Atmosphere), s'est déroulée en 2011, en mer de Chine du sud (île de Bornéo, Malaisie). Le but de la campagne était de réduire les incertitudes sur la quantité d'espèces halogénées à très courte durée de vie qui atteignent la stratosphère. Du fait de la convection profonde dans la région, même ces espèces à faible temps de vie peuvent se retrouver à haute altitude. L'étude décrite dans ce chapitre ne trai-

tera pas de ces espèces halogénées mais tirera partie des mesures aéroportées faites durant la campagne, bien que ces mesures n'aient pas été ciblées pour ce type de travail. En effet, la Malaisie est sujette à différents types d'émissions naturelles mais aussi anthropiques. Nous étudierons plus particulièrement les émissions par le trafic maritime, dense autour de l'île de Bornéo, et par les feux, fréquents du fait des pratiques agricoles de la région.

Dans un premier temps, ce chapitre commence par une description plus détaillée de chaque campagne et la présentation de leurs caractéristiques régionales, expliquant l'intérêt pour ces zones. Puis, chaque étude de cas est présentée en fonction du type d'émission en s'appuyant sur les mesures in situ, notamment de l'instrument SPIRIT, de gaz traces et d'aérosols. Le modèle FLEXPART (FLEXible PARTicle dispersion model) est utilisé en mode "trajectoires vers l'avant" (forward) et rétro-trajectoires (backward) afin d'aller plus loin dans nos hypothèses sur les régions sources de pollution. La première étude fera l'objet d'une publication, en cours d'écriture, qui sera soumise prochainement dans l'édition spéciale du projet DAC-CIWA du journal *Atmospheric Chemistry and Physics* de l'EGU. La deuxième étude dans le cadre du projet SHIVA, en cours d'écriture aussi, fera l'objet d'une publication au cours de l'année 2018.

4.1 Étude au niveau de l'Afrique de l'Ouest : le projet DAC-CIWA/APSOWA

4.1.1 Contexte de l'étude

Dans les décennies à venir, l'augmentation du taux d'urbanisation est prévue principalement pour les pays en développement, avec l'Asie et l'Afrique s'urbanisant plus rapidement que les autres (UN, 2008). La croissance de la densité de population africaine fait partie des plus rapides attendues avec une population qui représenterait 19% de la population mondiale en 2050 (UN, 2008). Du fait de cette croissance démographique et économique rapide et de l'urbanisation massive, on s'attend à un triplement des émissions anthropiques en Afrique de l'Ouest entre 2005 et 2030 (Lioussse et al., 2014). Ces émissions de polluants gazeux et particulaires ont différentes origines telles que les activités industrielles, le trafic urbain, le transport maritime, les feux domestiques ou encore les feux de biomasse (Marais et al., 2014). Les émissions biogéniques du sol, de l'océan et de la végétation pourraient, elles aussi, jouer un rôle important. En effet, combinées avec les émissions anthropiques, des perturbations sont à prévoir quant à la formation de polluants secondaires (comme l'ozone) ou la formation d'aérosols secondaires (Stewart et al., 2008). À ce jour, les répercussions sur la santé, la sécurité alimentaire, les écosystèmes et le climat régional sont méconnus.

Les émissions provenant du trafic maritime sont des sources importantes de polluants atmosphériques primaires et de précurseurs tels que CO, NO₂, SO₂, COV mais aussi d'aérosols organiques (OC) et carbone suie (BC). Il est reconnu que les émissions provenant des bateaux ont une importance majeure sur la qualité de l'air dans les régions côtières, aug-

mentant la concentration de l’ozone troposphérique et des aérosols, modifiant la capacité oxydante de l’atmosphère (concentration OH) ou provoquant une acidification locale due au dépôt de soufre ou de nitrate (Eyring et al., 2010). À cause de leurs effets néfastes, les émissions provenant du trafic maritime sont soumises à des réglementations environnementales. L’organisation internationale maritime (IMO) a désigné des zones (Emissions Control Areas : ECAs) où les émissions sont régulées par l’utilisation de fuel à teneur réduite en soufre (0,1% en masse). Ces zones sont soumises à de nombreuses études sur les émissions liées au trafic maritime et leurs conséquences sur la santé et le forçage radiatif au niveau régional (Alföldy et al., 2013). Les côtes de l’Afrique de l’Ouest ne sont pas incluses dans les zones ECAs, cependant des restrictions au niveau global sur la charge en soufre des carburants sont appliquées allant de 3,5% en masse vers une réduction à 0,5% d’ici 2025 (source : International Maritime Organization, IMO). Bien que le trafic maritime dans cette région demeure faible, comparé aux autres grandes zones (Asie de l’Est, Europe du Nord-Est ...), le taux de croissance pendant la période 2001-2012 est le second mondial et l’Afrique de l’Ouest est décrite comme une région émergente (Mengqiao et al., 2015). De plus, lors de la réunion de l’Union africaine qui s’est tenue le 25 juillet 2015 à Addis-Abeba (Éthiopie), la période 2015-2025 a été proclamée « Décennie africaine de la mer et des océans » par les chefs d’État et des Gouvernements (Stratégie AIM 2050). Cette stratégie implique un développement économique majeur de l’espace maritime africain dans un cadre de gestion durable et de protection de l’environnement. Ainsi il est important de définir la vulnérabilité régionale actuelle et future face à un développement économique significatif lié au trafic maritime dans la région de l’Afrique de l’Ouest.

L’excès de gaz extrait lors de l’extraction du pétrole est souvent, soit brûlé par l’intermédiaire de torchères, soit, si les conditions ne sont pas favorables (quantité de gaz, capacité calorifique du gaz trop faible ...), rejeté directement dans l’atmosphère. Si les torchères sont détectables par satellite (VIIRS Nightfire) avec des émissions quantifiables, les relargages de gaz directement dans l’atmosphère ne sont pas détectés et peu quantifiés. En plus de CO₂, un gaz à effet de serre, les torchères produisent des aérosols sous la forme de suies (BC), de monoxyde de carbone et d’autres produits de combustion incomplète, et lorsque le gaz contient H₂S, sa combustion conduit à l’émission de SO₂. Le relargage de gaz directement dans l’atmosphère libère principalement du méthane, gaz à potentiel de réchauffement global 25 fois plus important que CO₂ (IPCC, 2007) à l’horizon de 100 ans. Parmi les pays d’Afrique de l’Ouest, le Nigeria, l’Angola, la Guinée équatoriale, le Gabon et la Cameroun étaient en 2004 parmi les 20 pays au niveau mondial brûlant le plus gros volume de gaz par torchères (GGFR, the world bank ; www.worldbank.org/ggfr), représentant 35% du total des 20 pays classés. En 2011, par des programmes adaptés (redistribution du gaz par pipelines aux pays voisins), l’ensemble de ces pays (excepté l’Angola) ont réduit leur quantité, avec plus de 40% de réduction pour le Nigeria (GGFR). Cependant, le Nigeria reste en 2011 le second pays au niveau mondial brûlant le plus de quantité de gaz aux sorties des torchères. La plupart des complexes d’extraction se situent au niveau du Delta du Niger et le long des côtes dans

le golfe de Guinée avec des plateformes maritimes. Selon les vents, plusieurs villes côtières, telles que Lagos ou Cotonou, sont directement sous l'influence des émissions primaires mais aussi secondaires (telles que l'ozone) liées aux plateformes d'extraction.

Une limitation majeure pour répondre aux questions soulevées par cette croissance rapide des pays d'Afrique de l'Ouest est la disponibilité des observations. Le fait que le réseau d'observation soit limité empêche d'avancer dans la compréhension des phénomènes scientifiques en jeu dans la région. Le projet DACCIWA vise donc notamment à combler cette lacune en générant un jeu de données répondant à des objectifs scientifiques.

4.1.2 Le projet DACCIWA

Ainsi, les données d'observation spécifiques à cette région sont rares et les jeux de données existant n'ont pas été évalués, menant à des incertitudes importantes (Lioussse et al., 2014) et rendant difficile l'étude qu'auront ces changements sur la région. C'est avec l'objectif de mieux appréhender ces questions qu'est né le projet DACCIWA (Dynamics-Aerosols-Chemistry-Cloud Interactions in West Africa; www.dacciwa.eu) du 7^{ème} PCRD (Knippertz et al., 2015b). Ce dernier se concentre sur le couplage entre dynamique, aérosol, chimie et nuage, en particulier sur l'évaluation de leurs impacts sur les bilans radiatifs et énergétiques de la circulation de la mousson ouest-africaine. Un découpage en plusieurs groupes de travail (Work Package, WP) permet de répartir les objectifs scientifiques : dynamique de la couche limite (WP1), pollution de l'air et santé (WP2), chimie atmosphérique (WP3), interactions nuages-aérosols (WP4), processus radiatifs (WP5), processus liés aux précipitations (WP6), processus de la mousson (WP7). Plus en détail, le WP2 vise à lier les sources d'émission, la pollution de l'air et les effets sur la santé en termes de maladies par rapport aux sources urbaines différenciées et représentatives dans les zones équatoriales humides. En se basant sur des sites expérimentaux présents tout au long du projet DACCIWA, le WP2 va, entre autres, permettre la mise à jour des inventaires régionaux d'émission. Le WP3 a pour objectif de faire avancer la compréhension de la chimie atmosphérique dans le contexte du développement de la région sud-ouest africaine. Pour cela, le WP3 propose de fournir une description complète de l'état actuel et de l'évolution prévue de la composition atmosphérique de la région en termes, par exemple, de pollution à l'O₃ et par les aérosols.

Afin de répondre aux objectifs, une campagne de terrain (Flamant et al., 2017) a été organisée en juillet 2016 impliquant la participation de trois avions (Twin Otter du BAS, ATR42 de SAFIRE, Falcon-20 du DLR). En parallèle, trois super-sites ont été implantés au Ghana, Bénin et Nigéria, permettant des mesures continues mais aussi grâce auxquels 15 périodes d'observations intensives ont été conduites. Enfin, au total, 772 ballons météorologiques ont été lancés dans la région. La figure 4.1 donne une vue d'ensemble géographique de la zone d'étude de DACCIWA avec les principales villes d'intérêt.

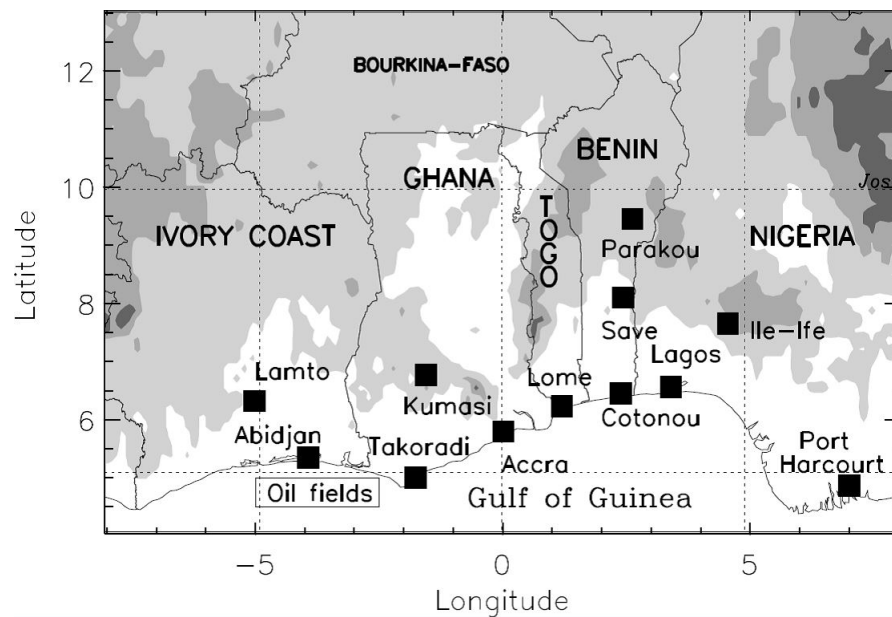


Figure 4.1 — Vue d'ensemble géographique de la zone d'étude de DACCWA avec les principales villes d'intérêt. L'échelle de gris est une indication de la topographie (contours à 200, 400 et 600 m asl) (communication personnelle, C. Flamant, LATMOS).

4.1.3 Le projet APSOWA

Le projet APSOWA (Atmospheric Pollution from Shipping and Oil platforms of West Africa) est associé au projet DACCWA avec trois vols ayant reçu un financement EUFAR (European Facility for Airborne Research) et INSU-LEFE-CHAT. Il est lié aux WP2 et 3 de DACCWA et est lui-même divisé en trois tâches. La tâche 1 est directement liée à la campagne aéroportée DACCWA. La tâche 2 est la mise en relation entre les observations faites dans le cadre de la campagne de terrain et la modélisation. Elle a pour but l'évaluation des inventaires d'émission. Enfin, la tâche 3 permet une visualisation de l'impact actuel et futur des émissions liées au trafic maritime.

APSOWA a pour objectif principal de caractériser les émissions provenant du trafic maritime et des plateformes d'extraction pétrolière et gazière au large du golfe de Guinée, leur transformation et l'impact à l'échelle régionale. Jusqu'à aujourd'hui, cette pollution avait majoritairement été mise en évidence par des mesures satellites, et notamment les mesures de l'instrument OMI (Ozone Monitoring Instrument) sur le satellite AURA de la NASA. Ces mesures montrent des concentrations élevées en NO_2 le long des routes maritimes du golfe de Guinée. Des concentrations anormalement hautes d' O_3 (jusqu'à 300 ppbv) mesurées de façon épisodique par des ballons-sondes ne peuvent s'expliquer uniquement par la pollution urbaine et les feux de biomasse. L'hypothèse d'activités pétrochimiques a donc été avancée (Minga et al., 2010). Jusqu'à présent, seul le Nigéria attirait l'attention du fait que ce soit le pays d'Afrique à la plus importante croissance économique et démographique (Marais et al., 2014). Il existe de grandes différences entre les inventaires régionaux utilisant une approche

bottom-up et les émissions africaines fournies par les inventaires mondiaux et, plus généralement, il manque des inventaires d'émissions anthropiques détaillés aux échelles continentales et régionales (Lioussse et al., 2014).

4.1.4 Campagne de mesures dans la région

4.1.4.1 Description de la campagne

La campagne aéroportée DACCIWA a consisté en 12 vols, dont 3 directement reliés aux objectifs de APSOWA, de l'avion de recherche Falcon-20 du DLR d'environ 3-4 heures chacun avec pour objectif de voler au travers des panaches d'émission des bateaux et plateformes pétrolières, dans la couche limite, le long des côtes du Ghana, Togo et Bénin. L'intégration de l'instrument SPIRIT pour des mesures de CO, CH₄, N₂O et NO₂ a permis l'obtention de mesures rapides, sensibles et précises. Ces mesures, combinées à celles des autres instruments de la campagne DACCIWA telles que le SO₂, l'ozone et les aérosols, permettent la caractérisation de la nature, de l'importance et de l'étendue géographique de ce type de pollution.

Pour la campagne avion, huit différents objectifs de vol ont été définis au niveau du Togo (base pour les avions) et dans les pays alentours (Côte d'Ivoire, Ghana et Bénin) :

- Propriétés des stratus
- Nuages dus aux brises de mer et de terre
- Émissions biogéniques
- Émissions urbaines
- Émissions par les plateformes pétrolières et les bateaux
- Poussières désertiques et feux de biomasse
- Nuages mi-niveaux
- Circulation atmosphérique à basse altitude

Nous avons pu voler avec le Falcon-20 du DLR tout au long de la campagne dont les objectifs pour chaque vol sont listés dans le tableau 4.1.

La trajectoire des 12 vols effectués au total et la liste des instruments embarqués sont donnés en figure 4.2 et tableau 4.2 respectivement. Parmi ces objectifs, l'un concerne les mesures des émissions des bateaux et plateformes pétrolières du projet APSOWA.

4.1.4.2 Caractéristiques régionales et conditions météorologiques

Caractéristiques régionales

Le golfe de Guinée est la région où se concentre la plupart des grosses villes (voir figure 4.1), des ports, aéroports et industries de la côte. Des 180 millions d'habitants que comptent

Date	Numéro de vol	Temps (UTC)	Localisation	Objectifs
29.06.2016	F20160629	13 :11-15 :20	Togo, Bénin	Interactions nuages-aérosols ; Emissions anthropiques : Lomé
30.06.2016	F20160630	11 :18-14 :53	Ghana	Interactions nuages-aérosols ; Emissions anthropiques : Accra, Kumasi, Takoradi
01.07.2016	F20160701	11 :11-14 :31	Ghana	Interactions nuages-aérosols ; Emissions anthropiques : Accra, Kumasi, Takoradi
05.07.2016	F20160705	11 :24-14 :58	Togo, Bénin	Interactions nuages-aérosols ; Emissions anthropiques : Lomé
06.07.2016	F20160706	9 :41-13 :13	Ghana, Côte d'Ivoire	Interactions nuages-aérosols ; Emissions anthropiques : Abidjan ; Feux de biomasse
07.07.2016	F20160707	11 :01-13 :35	Océan	Emissions bateaux et plateformes pétrolières (EUFAR APSOWA)
08.07.2016	F20160708	8 :33-12 :06	Togo, Bénin	Interactions nuages-aérosols ; Emissions anthropiques : Lomé
10.07.2016	F20160710	11 :06-14 :38	Océan, Ghana	Emissions bateaux et plateformes pétrolières (EUFAR APSOWA) ; Feux de biomasse
11.07.2016	F20160711	10 :30-14 :26	Océan, Côte d'Ivoire	Emissions bateaux et plateformes pétrolières (EUFAR APSOWA) ; Feux de biomasse Emissions anthropiques : Abidjan
12.07.2016	F20160712	8 :31-12 :18	Togo	Interactions nuages-aérosols ; Emissions anthropiques : Lomé
13.07.2016	F20160713	9 :18-12 :42	Togo	Interactions nuages-aérosols ; Emissions anthropiques : Lomé
14.07.2016	F20160714	8 :55-12 :33	Océan, Ghana, Côte d'Ivoire	Emissions bateaux et plateformes pétrolières (EUFAR APSOWA) ; Emissions anthropiques : Accra

Tableau 4.1 — Liste des vols effectués par le Falcon-20 et de leurs objectifs durant DAC-CIWA. Les temps sont ceux du décollage et de l'atterrissage. La localisation désigne les zones survolées.

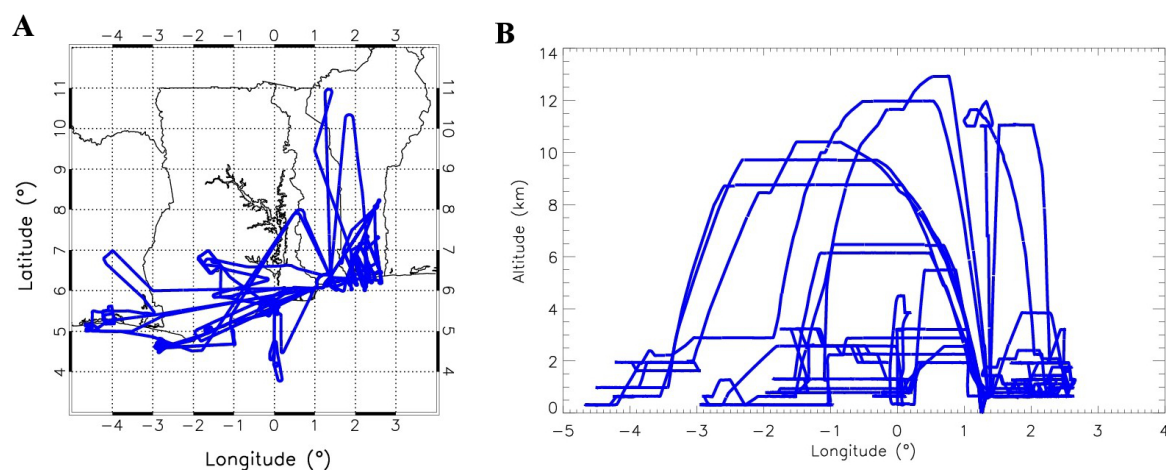


Figure 4.2 — Trajectoire des 12 vols effectués par le Falcon-20 durant la campagne A) selon l'étendue géographique B) selon l'altitude et la longitude.

au total la Côte d'Ivoire, le Ghana, le Togo, le Bénin, le Nigéria et le Cameroun, environ 30% vivent sur le littoral (Scheren et al., 2002). 60 à 80% de la production industrielle est concentrée dans les centres urbains du golfe (Scheren et al., 2002). En plus de la production de base (agro-alimentaire, textile, etc), l'activité industrielle s'appuie sur le traitement des matières premières exploitées dans la région comme le pétrole en Côte d'Ivoire et au Ghana

Instrument	Paramètre	Institut
Espèces chimiques gazeuses		
Absorption UV	O ₃	DLR
Spectromètre IR (SPIRIT)	CO, NO ₂ , N ₂ O, CH ₄	LPC2E
Fluorescence	SO ₂	DLR
Tubes de prélèvement + DT-CG-SM	CH ₄ et $\delta^{13}C$	DLR
Aérosols/Nuages		
CPC	Noyaux de condensation (>14 nm)	DLR
OPC (Grimm)	Taille et nombre des particules (0,2-2 µm)	DLR
AMS	Composition chimique des aérosols	MPI-C
UHSAS-A	Taille des particules et concentration (60 nm-1 µm)	DLR
CAS-DPOL	Taille des particules et concentration (0,5-50 µm) Contenu en eau liquide	DLR
2D-S	Image des particules et concentration (10-1280 µm)	DLR
Paramètres météorologiques		
Sondes P et T	Pression, température	DLR
Sonde 5 trous	Vent vertical et horizontal	DLR
Spectromètre IR	H ₂ O	DLR

Tableau 4.2 — Liste de la charge utile à bord du Falcon-20 et des paramètres et espèces atmosphériques mesurés lors de la campagne DACCIWA. Les initiales DT, CG et SM sont pour désorption thermique, chromatographie en phase gazeuse et spectrométrie de masse, respectivement.

ou l'aluminium au Ghana (Scheren et al., 2002). À ces activités urbaines s'ajoutent le trafic constitué principalement de voitures et de deux-roues utilisant une essence peu raffinée, parfois issue de contrebande, et donc très polluante (Liousse et al., 2014) et la combustion de biomasse pour le chauffage et la cuisson, source de particules. L'augmentation des concentrations de polluants dans les centres urbains du fait des émissions industrielles, des rejets du trafic et de la combustion domestique est un problème majeur pour les pays d'Afrique de l'Ouest (Mari et al., 2011).

Les pays du golfe étant sur une zone littorale, seul le trafic maritime permet de relier les principaux ports de la côte et les exploitations pétrolières offshore. L'enjeu du golfe de Guinée réside dans le fait qu'un développement économique majeur de l'espace maritime africain est attendu dans les années à venir (voir section 4.1.4). Si l'on considère qu'environ 70% des émissions par les bateaux se situent dans un rayon de 400 km des terres (Corbett et al., 1999), on peut s'attendre à ce que les effets de la pollution maritime touchent, selon le sens du vent, les ports et les villes côtières le long des routes commerciales (Endresen et al., 2003). En effet, les émissions par les bateaux peuvent être transportées sur plusieurs centaines de kilomètres (Eyring et al., 2010), impactant la qualité de l'air local et régional. De plus, l'Afrique, avec le Moyen-Orient, sont les principales régions d'exportation de pétrole brut par pétroliers (Dalsøren et al., 2009). La figure 4.3 donne une vision des principales routes le long du golfe de Guinée avec les principaux ports (à Abidjan, Accra et Lomé) impactés.

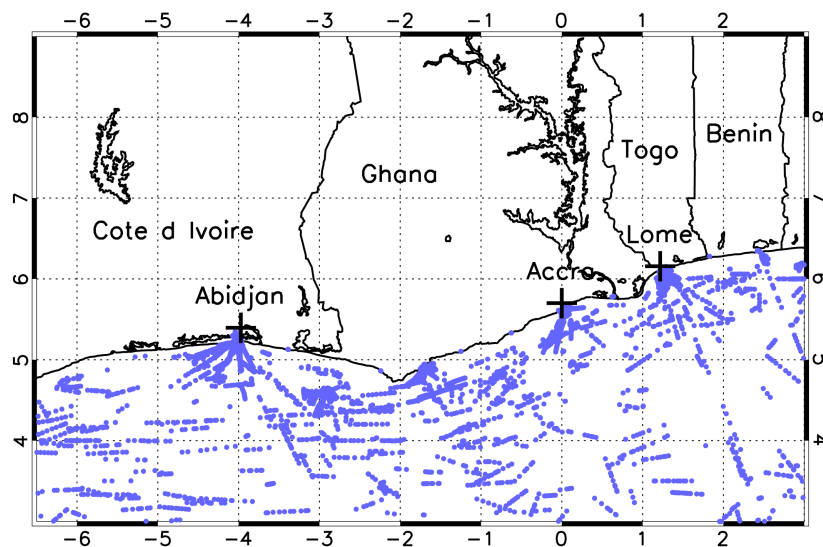


Figure 4.3 — Représentation des principales routes maritimes (en bleu) et des ports (croix noires) le long du golfe de Guinée pour le 1, 7, 10, 11 et 14 juillet 2016 (données Marine Traffic, <https://www.marinetraffic.com/>).

Les bateaux servent aussi à faire la navette jusqu'aux installations pétrolières offshore. Un rapide développement des activités pétrolières est attendu au niveau continental (Liousse et al., 2014). Aujourd'hui, le Nigeria possède la plus grande production pétrolière de l'Afrique de l'Ouest. Pour des raisons de sécurité mais aussi pratiques (transit Togo-Delta du Niger trop

long en avion pour une campagne), aucun vol n'a été effectué dans cette zone. Cependant, d'autres pays du golfe tels que la Côte d'Ivoire ou le Ghana possèdent aussi des exploitations représentées sur la carte 4.4.

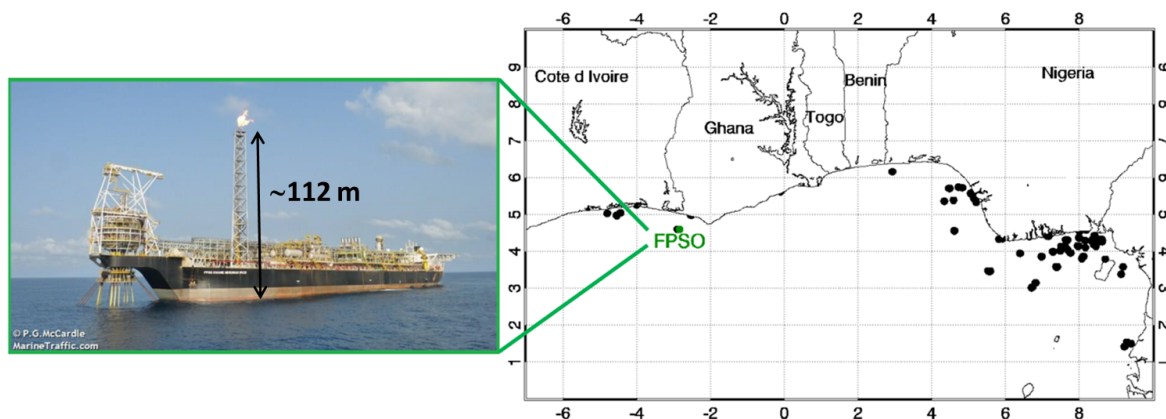


Figure 4.4 — Localisation des plateformes pétrolières (points noirs) au large du golfe de Guinée par détection des torchères à l'aide du satellite VIIRS (https://ngdc.noaa.gov/eog/viirs/download_viirs_flares_only.html). Le point vert montre l'emplacement de la plateforme FPSO, représentée dans l'encadré vert, que nous allons étudier plus en détail dans la partie 4.1.5.2.

La plateforme qui va plus particulièrement nous intéresser est une unité de production, de stockage et de déchargement (Floating Production Storage and Offloading - FPSO ; figure 4.4). Les premiers systèmes FPSO ont été installés en Indonésie en 1974. Comme le montre la figure 4.5, depuis 1974, leur nombre n'a cessé d'augmenter, d'abord progressivement puis de manière plus rapide à partir des années 1990. Cette augmentation dans l'utilisation des systèmes FPSO est liée à la profondeur des eaux dans lesquelles les FPSO sont utilisées. En effet, le concept de ces plateformes basées sur des navires rend possible le développement des champs pétrolifères de petite taille et/ou dans des eaux plus profondes (Shimamura, 2002).

Les plateformes FPSO possèdent d'autres avantages (Shimamura, 2002) : plus rapides à construire que d'autres structures flottantes, capacité de stockage intégrée au système permettant de ne plus construire de pipeline, elles sont mobiles et facilement implantables sur un autre champ pétrolifère et sont donc amenées à continuer à se développer. Dans ces complexes offshore, différentes techniques sont utilisées pour éliminer le gaz associé à l'extraction du pétrole brut. La première, le torchage (ou flaring), souvent associée au Nigéria (Fawole et al., 2016a), consiste à brûler le gaz naturel à feu ouvert par l'intermédiaire de hautes cheminées, tandis que la seconde technique, l'évent (ou venting en anglais), consiste à relarguer directement le gaz naturel dans l'atmosphère. Dans tous les cas, un mélange de gaz et/ou d'aérosols est émis de ces processus (voir section 1.4) et, si les conditions météorologiques sont réunies, ces polluants peuvent être transportés jusque dans la troposphère libre (Fawole et al., 2016b) et au niveau des villes côtières les plus proches. À ce jour, seul le Nigéria a fait l'objet d'études concernant l'impact environnemental des émissions par les plateformes (par exemple, Anomohanran, 2012, Hassan and Kouhy, 2013, Asuoha and Osu Charles, 2015,

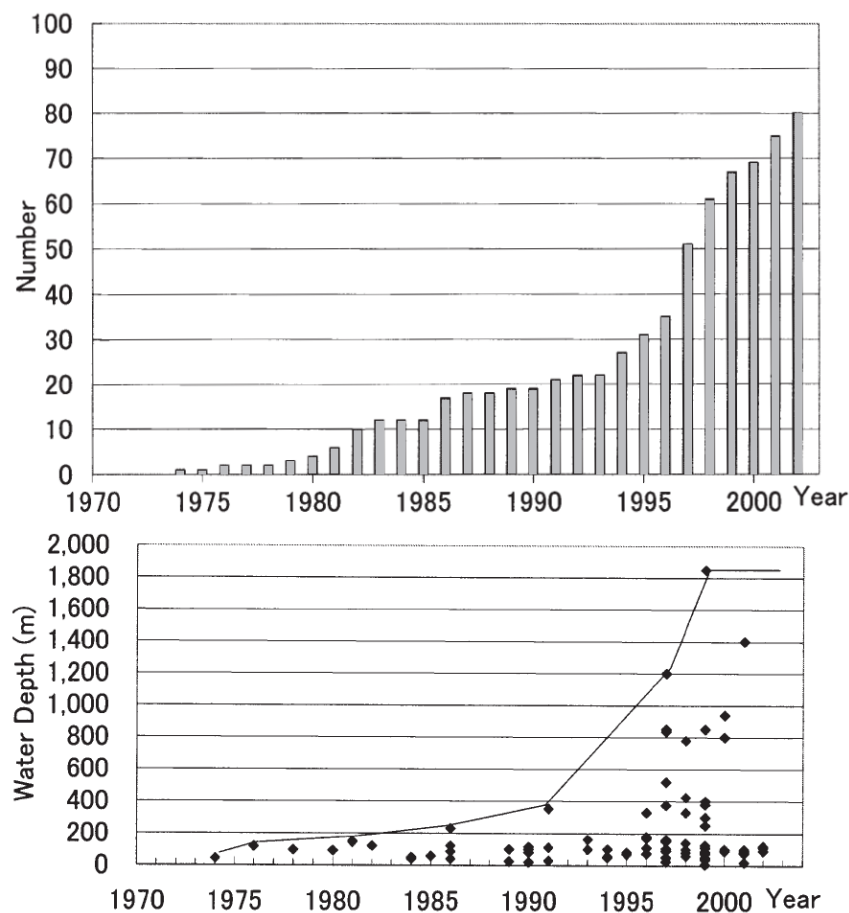


Figure 4.5 — (En haut) Représentation de l'augmentation du nombre de système FPSO utilisé. (En bas) Évolution des changements dans la profondeur des eaux où les plateformes FPSO sont déployées (d'après [Shimamura, 2002](#)).

[Fawole et al., 2016a](#)). Les pays du golfe de Guinée, bien qu'ayant une activité pétrolière moins intense, restent néanmoins touchés par le problème. Ainsi, la plateforme étudiée par la suite est la plateforme FPSO Kwame Nkrumah. Elle est implantée depuis 2010 sur le champ pétrolifère Jubilee, au large du Ghana ($4^{\circ}35'47.04$ N, $2^{\circ}53'21.11$ W). La plateforme mesure 330 m de long pour 65 m de large et avec une hauteur jusqu'en haut de la cheminée estimée à 112 m.

L'Afrique est située pour sa grande partie dans la zone intertropicale et possède plusieurs climats distincts selon la distance à l'équateur. La végétation sur le continent est donc conditionnée par le type de climat. En Afrique du nord, dans la région du Sahel, la savane semi-aride domine le paysage. Au niveau des pays du golfe du Guinée, le climat équatorial se caractérise par la prédominance de forêts. En Afrique, la première cause de feux de biomasse est du fait des activités humaines ([Mari et al., 2008](#)). Au niveau du Sahel, des feux de biomasse liés à des pratiques agricoles ont lieu chaque année durant l'automne et l'hiver. Les feux sont alors déclenchés pour éliminer les broussailles, pour brûler le chaume des cultures et renouveler les herbes de pâturage. Plus au sud, ils sont aussi utilisés comme

procédé de déforestation des forêts équatoriales (Delmas et al., 1999, Mari et al., 2008) et dans la restauration et gestion des sols (Crutzen and Andreae, 1990). Durant la saison sèche de l'hémisphère nord (décembre, janvier, février), des couches de pollution ont été mesurées entre 750-700 hPa (environ 2,5-3 km) (Sauvage et al., 2005). La fréquence des feux de forêt suit un cycle saisonnier. Cette saisonnalité est représentée en figure 4.6. Dans l'hémisphère nord, les feux ont lieu durant la saison sèche (figure 4.6 A) entre novembre et mars tandis que dans l'hémisphère sud (figure 4.6 B), ils apparaissent entre les mois de juillet et d'octobre (Marenco et al., 1990, Palacios-Orueta et al., 2004, Giglio et al., 2006, Ito et al., 2007).

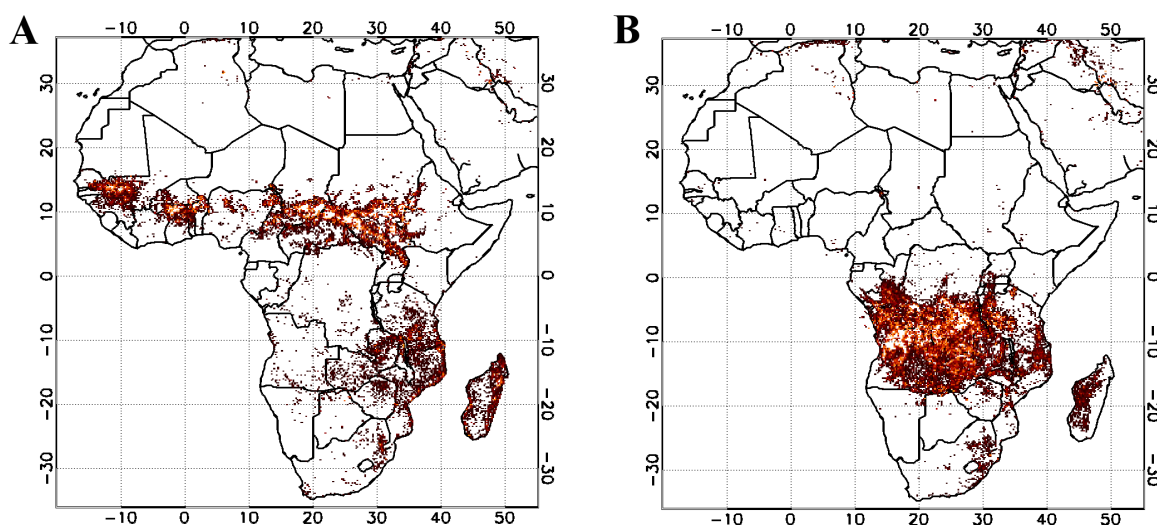


Figure 4.6 — Localisation et densité des feux détectés par MODIS montrant la saisonnalité des feux de biomasse sur le continent africain A) de novembre à mars 2016 et B) de juillet à octobre 2016. La couleur varie du rouge où la densité de feux est faible au beige pour une densité de feux importante.

Mais l'intensité et la fréquence de ces feux sont dépendantes des conditions météorologiques et notamment, pour les régions équatoriales, de la température et de la durée de la saison sèche (Palacios-Orueta et al., 2004). La campagne AMMA (Real et al., 2010, Mari et al., 2011) a permis de confirmer et mettre en évidence ce que Sauvage et al. (2005) avaient proposé quelques années auparavant, à savoir que l'Afrique de l'Ouest est influencée par des intrusions de panaches de feux en provenance de l'hémisphère sud dans la moyenne et basse troposphère (600-700 hPa) pendant la saison humide. Cette variabilité intra saisonnière des feux du golfe de Guinée est contrôlée par la position et la force du Jet d'Est Africain (JEA) de l'hémisphère sud (Mari et al., 2008). Ainsi, dans la phase active du JEA, les polluants émis par les feux dans la moyenne troposphère sont advectés vers l'ouest jusqu'au niveau de l'océan Atlantique (Mari et al., 2008). Des concentrations élevées d'O₃ ont d'ailleurs été relevées entre 1 et 4 km d'altitude sur l'Atlantique (Jonquière et al., 1998, Martin et al., 2002, Edwards et al., 2003, Jourdain et al., 2007, Sauvage et al., 2007, Real et al., 2010). Durant cette phase active, des concentrations élevées de CO ont aussi été observées par l'instrument MOPITT au-dessus du golfe de Guinée à 700 hPa (environ 3 km) (Mari et al., 2008). Le

transport inter-hémisphérique étant lent (voir section 1.3.3), plus de 8 jours sont nécessaires pour que les masses d'air polluées par les feux en Afrique centrale atteignent le golfe de Guinée (Sauvage et al., 2005). Durant la phase moins active du JEA (phase de rupture), il y a suppression de l'advection vers l'ouest entraînant un piégeage et une accumulation des polluants au-dessus du continent (Mari et al., 2008). Durant cette phase, les données de l'instrument MOPITT donnent un minimum de CO au-dessus du golfe de Guinée, comme attendu (Mari et al., 2008). Cette circulation au-dessus du continent favoriserait une élévation des panaches de feux dans la haute troposphère (12 km) par le biais des zones de convection (Mari et al., 2008).

Conditions météorologiques

En été, au niveau de l'Afrique de l'Ouest, l'atmosphère est influencée par des processus pouvant interagir entre eux de façon complexe (Redelsperger et al., 2006, Lafore et al., 2010). L'un de ces processus dominant est la mousson Ouest Africaine, principalement déclenchée par le contraste entre la pression de surface entre les eaux froides de l'océan Atlantique et la dépression thermique saharienne (Knippertz et al., 2017). Cette dépression thermique est une zone de convection sèche correspondant à un maximum de température et un minimum de pression en surface. Ainsi, durant l'été boréal, le continent africain se réchauffe jusqu'à atteindre des températures supérieures aux eaux de l'océan Atlantique du golfe de Guinée créant un contraste thermique entre les deux surfaces. Ce contraste est à l'origine de la mise en place d'une circulation atmosphérique qui va entraîner le flux d'air frais et humide (qui s'est chargé au-dessus du golfe de Guinée) plus au nord où il va entrer en contact avec le flux d'air sec et chaud venant du Sahara, entraînant la formation des systèmes orageux et des pluies de mousson. Ces systèmes vont se déplacer d'est en ouest jusqu'à aboutir sur l'Atlantique sur une période allant de juin à septembre. La ZCIT constitue la frontière entre les masses d'air humide et l'air continental sec et gouverne donc la circulation atmosphérique régionale. On associe la circulation de la mousson ouest africaine à 4 champs de vents selon leur localisation spatiale : le flux de sud-ouest se situe dans les basses couches, le Jet d'Est Africain (JEA) dans la troposphère moyenne (600-700 hPa) aux alentours de 15°N, le Jet d'Est Tropical (JET) est situé dans la haute troposphère (200 hPa) entre 5°N et 10°N et le Jet d'Ouest Subtropical (JOST) entre 30°N et 35°N. La plus grande source d'aérosols mondiale provient du désert du Sahara. Le transport de ces poussières désertiques vers le sud constitue une source importante d'aérosols pour l'Afrique du sud-ouest (par exemple Shao et al., 2011). D'après Mari et al. (2011), dans cette région d'Afrique, la composition atmosphérique est un mélange entre le transport de masses d'air apportant des poussières désertiques ou des aérosols issus de feux de biomasse et la pollution anthropique locale. Ainsi, le golfe de Guinée, influencé par le régime de mousson africaine, connaît deux saisons distinctes de pollution naturelle. Durant la saison sèche (hiver boréal), des vents du nord ramènent des poussières désertiques du Sahara auxquelles s'ajoutent les polluants issus des feux de biomasse. Pendant la saison humide (de mai à septembre), les pluies de la mousson,

en bloquant les vents du nord, favorisent l'apport des émissions par les feux de biomasse de l'Afrique centrale. Pendant DACCWA, différentes situations météorologiques ont été rencontrées et notamment le début de la mousson. Le détail des systèmes météorologiques affectant la région d'étude est présenté dans [Knippertz et al. \(2017\)](#) ainsi que les variations synoptiques influençant la composition atmosphérique de la région. Ainsi, les processus dynamiques propres à la période de mousson couplés au transport à longue distance de polluants et aux émissions locales font de l'Afrique de l'Ouest une région complexe en termes de composition atmosphérique.

Finalement, la figure 4.7 résume les principales sources d'émission des gaz traces et aérosols au niveau de l'Afrique de l'Ouest. En plus des sources évoquées ci-dessus, d'autres sources telles que les émissions par la végétation, par les océans ou encore les éclairs (que nous n'aborderons pas ici) ont un impact sur la chimie atmosphérique. Ainsi, la diversité des sources qui caractérisent la région, associée à son développement nécessite une attention particulière pour cette zone sujette à l'altération de son climat régional et à une augmentation de la pollution de l'air.

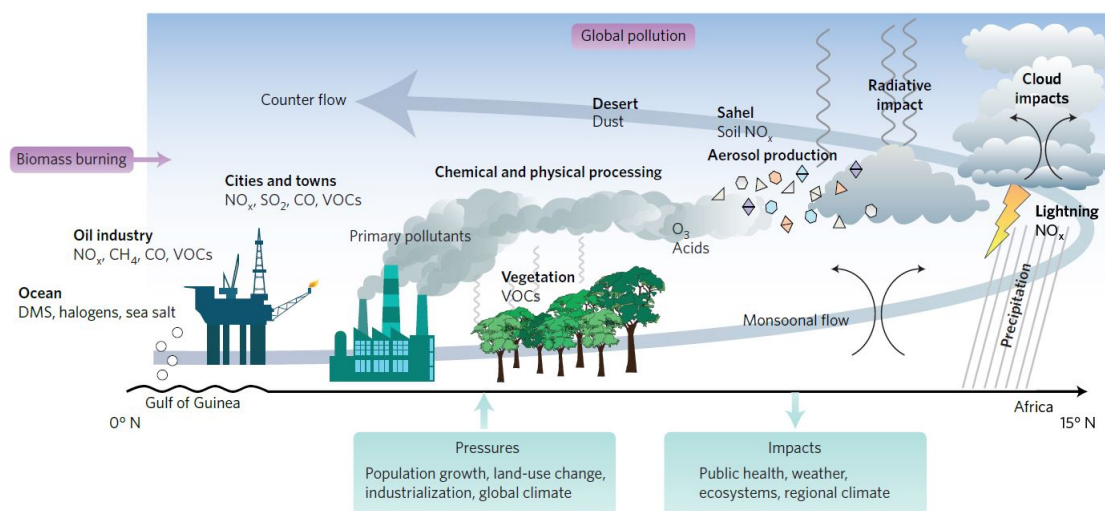


Figure 4.7 — Sources principales d'émission de gaz traces et d'aérosols en Afrique de l'Ouest. Les boîtes violettes symbolisent les émissions issues du transport longue distance tandis que les boîtes vertes (sous le diagramme) montrent les différentes pressions que subit la région et leur impact potentiel à l'échelle régionale (d'après [Knippertz et al., 2015b](#)).

4.1.4.3 Validation des mesures de SPIRIT

Durant DACCWA, la présence de bouteilles étalons a permis d'étalonner l'instrument SPIRIT et donc de valider les mesures de CO, CH₄ et NO₂ faites pendant les vols. Pour cela, nous avons accès à deux bouteilles standard ICOS (the European Integrated Carbon Observation System) pour CO et CH₄ et une bouteille étalon fournie par le British Antarctic

Survey (BAS) pour NO_2 et CH_4 . L'un des avantages de la campagne DACCIWA était le retour au même aéroport après chaque vol. Cela a permis d'emmener des bouteilles témoins (« target ») de CO et CH_4 utilisées pour vérifier l'état de fonctionnement correct de SPIRIT avant et après la plupart des vols et ainsi avoir confiance dans les mesures. Ces bouteilles ont été remplies en amont de la campagne, en prélevant de l'air ambiant du LPC2E. Les concentrations au sein de ces bouteilles correspondent donc à un air pollué et non pas à un standard atmosphérique. Les résultats des mesures de CO avec ces bouteilles sont donnés dans le tableau 4.3.

	CO avant vol $\pm 1\sigma$		CO après vol $\pm 1\sigma$	ΔCO
29-juin	478,5 $\pm$ 0,7 ppbv		477,6 $\pm$ 0,8 ppbv	0,9 ppbv
30-juin	479,1 $\pm$ 0,6 ppbv		482,9 $\pm$ 0,6 ppbv	3,8 ppbv
01-juil	478,8 $\pm$ 0,7 ppbv		-	-
05-juil	462,6 $\pm$ 4,6 ppbv		-	_*
06-juil	474 $\pm$ 0,7 ppbv		471 $\pm$ 0,8 ppbv	3 ppbv
07-juil	481,6 $\pm$ 0,7 ppbv		480 $\pm$ 0,8 ppbv	1,6 ppbv
08-juil	475,4 $\pm$ 0,6 ppbv		480,7 $\pm$ 0,5 ppbv	5,3 ppbv
10-juil	482,1 $\pm$ 0,5 ppbv		481,3 $\pm$ 0,6 ppbv	0,8 ppbv
11-juil	477,9 $\pm$ 0,6 ppbv		479,7 $\pm$ 0,7 ppbv	1,8 ppbv
12-juil	481,2 $\pm$ 0,7 ppbv		-	-
13-juil	484,5 $\pm$ 1,1 ppbv		475,2 $\pm$ 0,7 ppbv	9,3 ppbv*
14-juil	479,4 $\pm$ 0,5 ppbv		-	-
Moyenne avant	479,3 ppbv	Moyenne après	478,6 ppbv	0,7 ppbv
Moyenne CO	478,6 $\pm$ 3,8 ppbv			

Tableau 4.3 — Mesures par SPIRIT des concentrations en CO d'une bouteille target avant et après chaque vol. Les * désignent les mesures peu fiables.

Dans ce tableau, pour chaque jour sont fournies les mesures du CO à $\pm 1\sigma$, les moyennes avant et après le vol ainsi que les écarts entre les mesures. Les mesures suivies d'un astérisque sont des mesures qui ne sont pas considérées comme fiables (par exemple, mesures trop tôt durant la stabilisation thermique de l'instrument ou trop courtes). Après certains atterrissages, il n'a pas été possible de faire des mesures au sol avec les bouteilles target, dû à l'impossibilité de l'accès à l'avion (maintenance, remplissage des réservoirs de carburant, ...), ce qui explique l'absence de données. La moyenne de CO est aussi calculée pour tous les vols en excluant les mesures peu fiables. Ainsi, la plupart des vols de la campagne sont validés par ces bouteilles. Il reste néanmoins que les conditions de la campagne étaient extrêmes

(température pouvant atteindre 45°C à l'intérieur de la cabine) et l'écart entre les mesures avant et après vol est donc à nuancer vis-à-vis de la valeur donnée dans le tableau 2.2 dans des conditions plus standards.

D'autre part, la figure 4.8 montre la comparaison entre les mesures de CO par SPIRIT et la valeur de l'étalon ICOS pour des mesures avant et après le vol du 7 juillet et uniquement avant le vol du 11 juillet. Dans tous les cas, les mesures montrent un excellent accord avec la valeur de l'étalon, à 0,9 ppbv près au maximum alors que l'incertitude totale sur SPIRIT est de 4,7 ppbv.

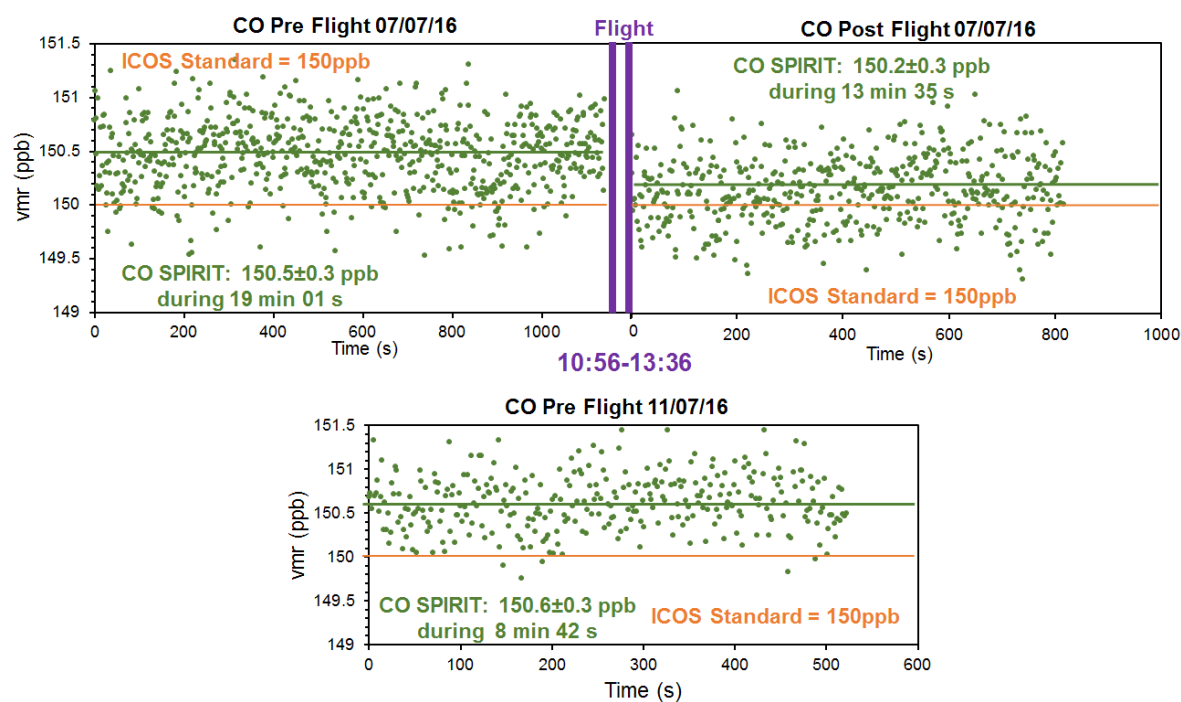


Figure 4.8 — Résultats des mesures de CO avec SPIRIT (en bleu) comparées à la bouteille étalon ICOS (en rouge) avant et après le vol le 7 juillet et avant le vol le 11 juillet.

Le même exercice de comparaison entre les mesures SPIRIT et des bouteilles a été effectué pour CH₄. Les résultats de la comparaison avec les bouteilles « target » sont synthétisés dans le tableau 4.4. L'écart entre les mesures avant et après le vol est dans la gamme de l'incertitude totale donnée dans le tableau 2.2, soit 27 ppbv, pour 6 vols. Lorsque cet écart est dépassé ou lorsque la différence avec la valeur moyenne est supérieure à cette valeur, les résultats des mesures de CH₄ par SPIRIT seront sujets à caution (annotés par un astérisque dans le tableau).

Des comparaisons avec les bouteilles étalons ICOS et BAS pour CH₄ ont également été réalisées les 6 et 7 juillet (figure 4.9). On note un excellent accord à moins de 7 ppbv près pour la bouteille ICOS et moins de 3 ppbv pour la bouteille BAS, montrant le fonctionnement correct de SPIRIT au sol.

Durant la campagne, il a été possible d'utiliser la bouteille BAS afin de valider les mesures

	CH ₄ avant vol $\pm 1\sigma$		CH ₄ après vol $\pm 1\sigma$	ΔCH_4
29-juin	2405,9 $\pm$ 9,2 ppbv		2415,1 $\pm$ 7,4 ppbv	9,2 ppbv
30-juin	2417 $\pm$ 4,5 ppbv		2410 $\pm$ 7,3 ppbv	7 ppbv
01-juil	2421 $\pm$ 8,1 ppbv		-	-
05-juil	2562,6 $\pm$ 6,9 ppbv		-	_*
06-juil	2413,2 $\pm$ 8,4 ppbv		2328,4 $\pm$ 8,7 ppbv	84,8 ppbv*
07-juil	2383,7 $\pm$ 7,8 ppbv		2363,5 $\pm$ 8,5 ppbv	20,2 ppbv
08-juil	2404,5 $\pm$ 4,4 ppbv		2402 $\pm$ 6 ppbv	2,5 ppbv
10-juil	2388,4 $\pm$ 7,2 ppbv		2409,1 $\pm$ 8,8 ppbv	20,7 ppbv
11-juil	2380,5 $\pm$ 6,5 ppbv		2409,8 $\pm$ 7,8 ppbv	29,3 ppbv*
12-juil	2470 $\pm$ 5,3 ppbv		-	_*
13-juil	2463,2 $\pm$ 8,5 ppbv		2401,3 $\pm$ 8,1 ppbv	61,9 ppbv*
14-juil	2395,6 $\pm$ 8,5 ppbv		-	-
Moyenne avant	2401,1 ppbv	Moyenne après	2401,5 ppbv	0,4 ppbv
Moyenne CH ₄	2401,3 $\pm$ 25,6 ppbv			

Tableau 4.4 — Idem au tableau 4.3 mais pour CH₄.

de NO₂ par SPIRIT (figure 4.10). La bouteille de NO₂ est donnée avec une concentration de 107,3 $\pm$ 1,1 ppbv. Lors du passage du gaz dans le SPIRIT le 29 juin 2016, les mesures se sont trouvées être en accord à 5% près (102,1 ppbv) avec la bouteille du BAS, une fois encore en accord avec les résultats du tableau général 2.2 des performances de SPIRIT.

Bien que certaines données de CH₄ aient été validées par les bouteilles « target » et étalons, elles ne seront pas utilisées par la suite, tout comme les mesures de N₂O. En effet, ces deux espèces ayant des durées de vie longues (environ 10 et 130 ans respectivement), leur concentration de fond est généralement trop importante devant les variations dues aux émissions. Les faibles variations relatives de concentrations de CH₄ et N₂O sont donc difficilement exploitables à l'heure actuelle. Des perspectives d'amélioration du SPIRIT pourraient néanmoins permettre de les exploiter pour de futures campagnes.

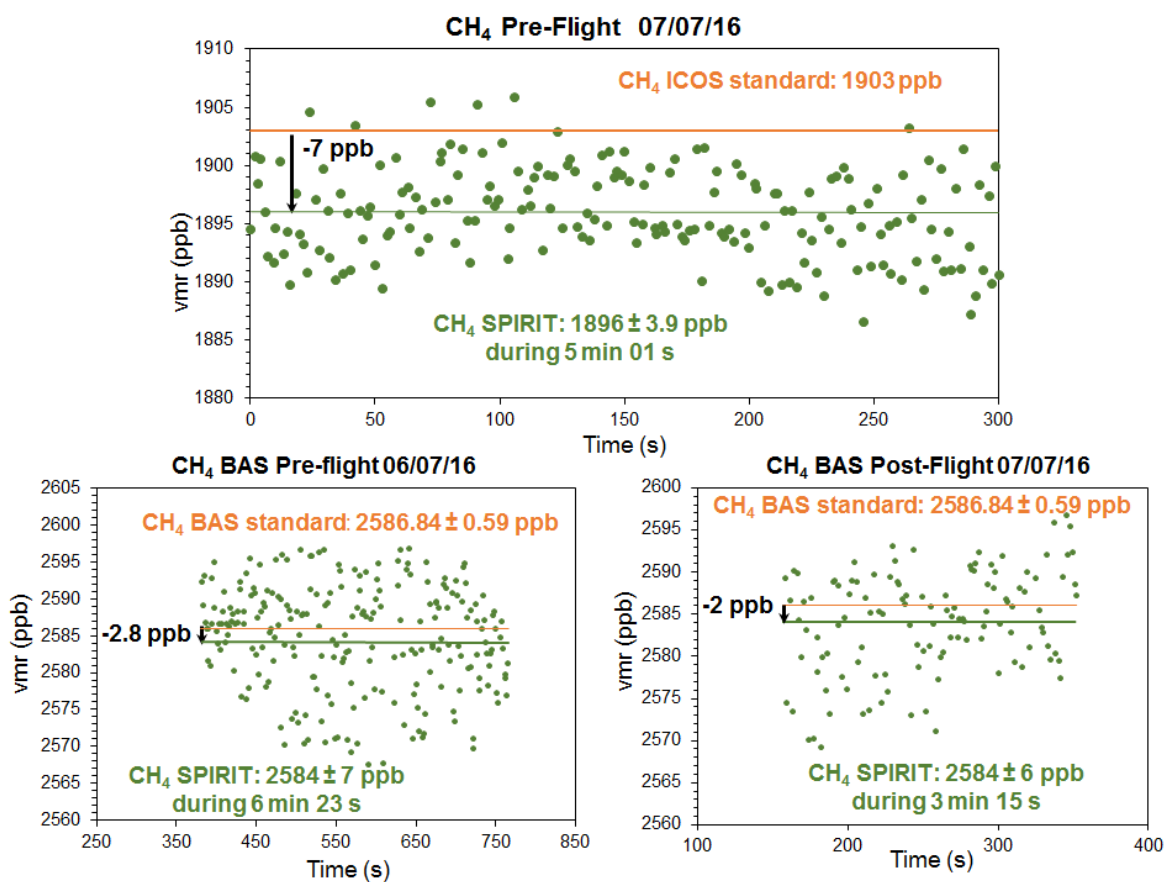


Figure 4.9 — Résultats des mesures de CH_4 avec SPIRIT (en bleu) comparées à la bouteille étalon ICOS (en rouge) le 7 juillet avant le vol, et comparées à la bouteille étalon BAS (en rouge) les 6 et 7 juillet, avant et après le vol, respectivement.

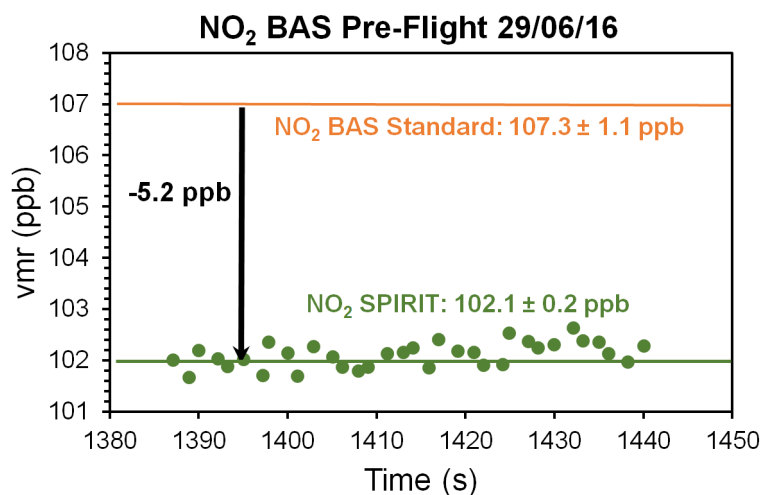


Figure 4.10 — Résultats des mesures de NO_2 avec SPIRIT (en bleu) comparées à la bouteille étalon du BAS (en rouge).

4.1.5 Pollution de la couche limite due au trafic maritime et à l'exploitation d'une plateforme pétrolière

4.1.5.1 Couloir maritime du golfe de Guinée

L'un des objectifs de la campagne APSOWA était la mesure des émissions par le trafic maritime. Comme expliqué dans la section 4.1.4, les émissions des bateaux ont un réel impact sur la qualité de l'air et le golfe de Guinée ne fait pas encore partie de ces zones où les émissions sont régulées. Afin de planifier la trajectoire des vols pour la campagne, il était nécessaire de connaître les couloirs maritimes majeurs de la zone. L'inventaire MACCity, décrit en section 2.4.1, fournit, entre autres, les émissions de CO, SO₂, NO_x et BC pour le trafic maritime. La figure 4.11 représente, pour SO₂, les émissions par MACCity moyennées sur mai, juin et juillet 2016.

Sur la figure 4.11, deux couloirs maritimes sont clairement visibles. Le premier longe l'extrémité ouest de l'Afrique pour ensuite descendre vers l'Afrique du Sud tandis que le second longe les côtes du golfe de Guinée aux environs de 4°N. Avec les couloirs identifiés sur cette carte, il était donc possible de planifier des vols pour passer au travers du second couloir. Une fois sur place, au Togo, beaucoup d'imposants bateaux étaient visibles depuis la plage (figure 4.12), tous les jours, laissant à penser qu'il existe bien un couloir menant aux pays du golfe. La figure 4.11 (encadré noir) représente les émissions de MACCity pour juillet 2016 pour SO₂ pour le trafic maritime. Sur la carte sont représentées les trajectoires des trois vols (7, 10 et 14 juillet 2016) qui ont permis de mesurer les émissions de cette voie maritime. Ces mêmes cartes pour les émissions de CO, NO_x et BC sont disponibles en annexe A. Le vol du 7 juillet a permis de traverser plusieurs fois le couloir alors que les vols du 10 et 14 l'ont longé. Les mesures et la trajectoire du vol en fonction de l'altitude du 7 juillet sont données comme exemple en figure 4.13 et 4.14, respectivement. Les mesures et les trajectoires pour les 10 et 14 juillet sont fournies en annexe A. Sur ces graphes de mesures, les parties encadrées en bleu correspondent aux parties bleu foncé de la trajectoire de l'avion (altitude la plus basse). La traversée d'un couloir maritime laisserait supposer une augmentation de fond des espèces mesurées. En effet, le renouvellement de l'air aux abords des sillages de bateaux est estimé, en moyenne, à 18 h (± 11 h), avec des temps de vie pouvant aller jusqu'à 60 h (Schreier et al., 2010). Un couloir fréquenté est donc régulièrement enrichi en émissions. Or, pour les trois jours présentés, aucune augmentation de fond n'est détectée par les instruments ce qui laisse à penser que MACCity surestime les émissions. Néanmoins, au cours de la campagne, des augmentations de la concentration des gaz traces et aérosols ont pu être observées le 7 (figure 4.13) et 14 juillet (annexe A). La proximité de bateaux (détectés par MarineTraffic) laisse à penser que ces vols ont permis la mesure d'émission de polluants liés au trafic maritime pour des sources individuelles.

MACCity considère un secteur d'émission appelé « navigation internationale ». Plus de détails sur les données (géographiques, prise en compte des émissions dans les ports, types et

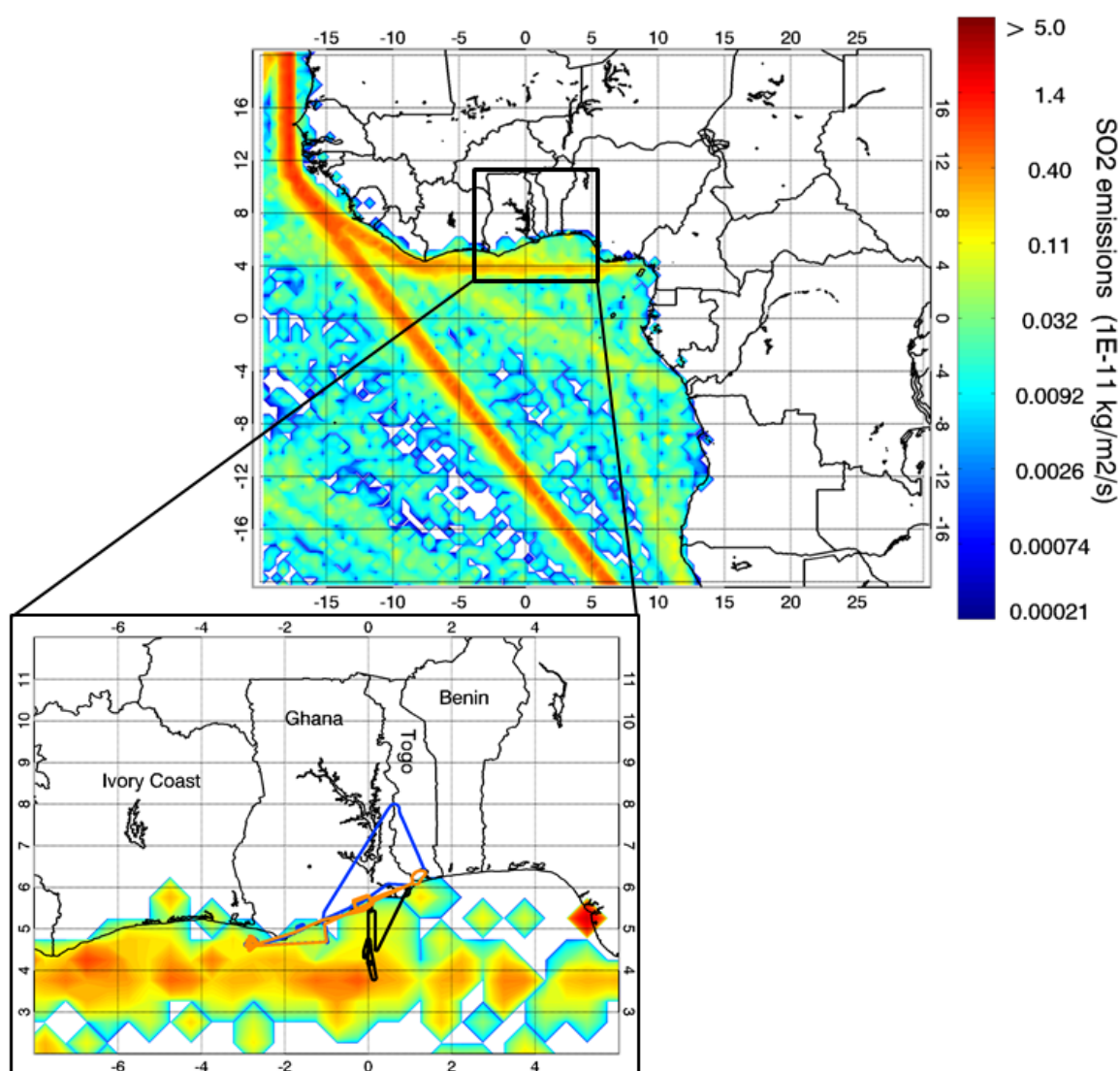


Figure 4.11 — Émissions de SO_2 par les bateaux de l'inventaire MACCity moyennées sur mai, juin et juillet 2016. Dans l'encadré noir, superposées aux émissions de juillet de SO_2 zoomées sur le Golfe de Guinée, sont représentées les trajectoires des vols du 7 juillet (en noir), 10 juillet (en bleu) et 14 juillet (en orange).

caractéristiques des bateaux considérés etc) sont nécessaires pour comprendre les émissions du secteur. De plus, comme discuté dans [Klimont et al. \(2007\)](#), la qualité des inventaires d'émission pour les pays en développement est généralement faible du fait, notamment, d'un manque de mesures d'émission actuelles et d'observations intensives. Comme l'écrivait déjà [Dalsøren et al. \(2009\)](#), de façon générale, cela suggère que plus d'observations et plus de données sont nécessaires pour mieux prendre en compte les émissions des bateaux à intégrer dans les modèles, particulièrement en Afrique de l'Ouest, décrite comme une région émergente ([Mengqiao et al., 2015](#)).



Figure 4.12 — Photo prise depuis la plage, au Togo, montrant des bateaux en stationnement.

4.1.5.2 Simulations des émissions par une plateforme pétrolière : de la mesure au modèle

Le torchage des gaz (flaring) sur les sites de production de pétrole ou les raffineries est un procédé utilisé, soit afin d'éliminer les vapeurs de gaz nocives et inflammables en des composés moins réactifs, soit afin de combler des lacunes dans les infrastructures de transport. Quelle que soit la raison nécessitant l'utilisation de ce procédé, le résultat final est l'émission de polluants et gaz à effet de serre dans l'atmosphère et donc une contribution au réchauffement climatique mondial. Le développement des techniques d'observation par télédétection rend possible la détection du torchage (par exemple [Elvidge et al., 2013](#)). C'est d'ailleurs sur ces observations que sont basés les inventaires d'émission du flaring.

Durant la campagne APSOWA, deux vols ont été planifiés afin de mesurer les émissions par la plateforme FPSO (voir section [4.1.4.2](#) pour plus d'informations sur cette plateforme). La prévision de l'extension géographique et de la dilution des concentrations au cœur du panache depuis la plateforme a été préalablement effectuée par le DLR avec le modèle HYSPLIT de la NOAA. Ainsi, les deux vols ont permis d'effectuer des transects autour de la plateforme et dans le sens du vent. Lors du premier vol, le 10 juillet 2016, le panache de la plateforme a été traversé plusieurs fois donnant lieu à 4 pics de NO_2 dans le sens du vent (données ECMWF avec une résolution de $0,125^\circ \times 0,125^\circ$) vers 300 m d'altitude (figure [4.15 A](#)). Ces quatre pics sont corrélés à des pics d'aérosols entre 12,55h et 12,75h (figure [4.15 A'](#)). Aucun pic de CO ou SO_2 n'a été détecté dans le panache de la plateforme pour ce vol. Les concentrations massiques des cinq espèces de base (ammonium, nitrate, sulfate, chlore et composés organiques) mesurées par l'AMS (Aerosol Mass Spectrometer) ont été exploitées mais ne présentent aucun pic en corrélation avec ceux du NO_2 . Lors du deuxième vol, le 14 juillet 2016, 3 pics de NO_2 ont été mesurés durant les premiers transects, entre 10,8h et 11h, vers 300 m d'altitude (figure [4.15 B](#)). Ces pics se trouvent corrélés à des pics d'aérosols et de CO mais aucun pic de SO_2 n'a été mesuré (figure [4.15 B'](#)). De même que pour le vol précédent, les données de l'AMS ne présente aucun pic en corrélation avec ceux du NO_2 . La suite de cette partie décrit le travail entrepris afin de reproduire les émissions de la plateforme FPSO avec FLEXPART. Pour cela, différents paramètres tels que la hauteur d'injection du panache ou encore le flux

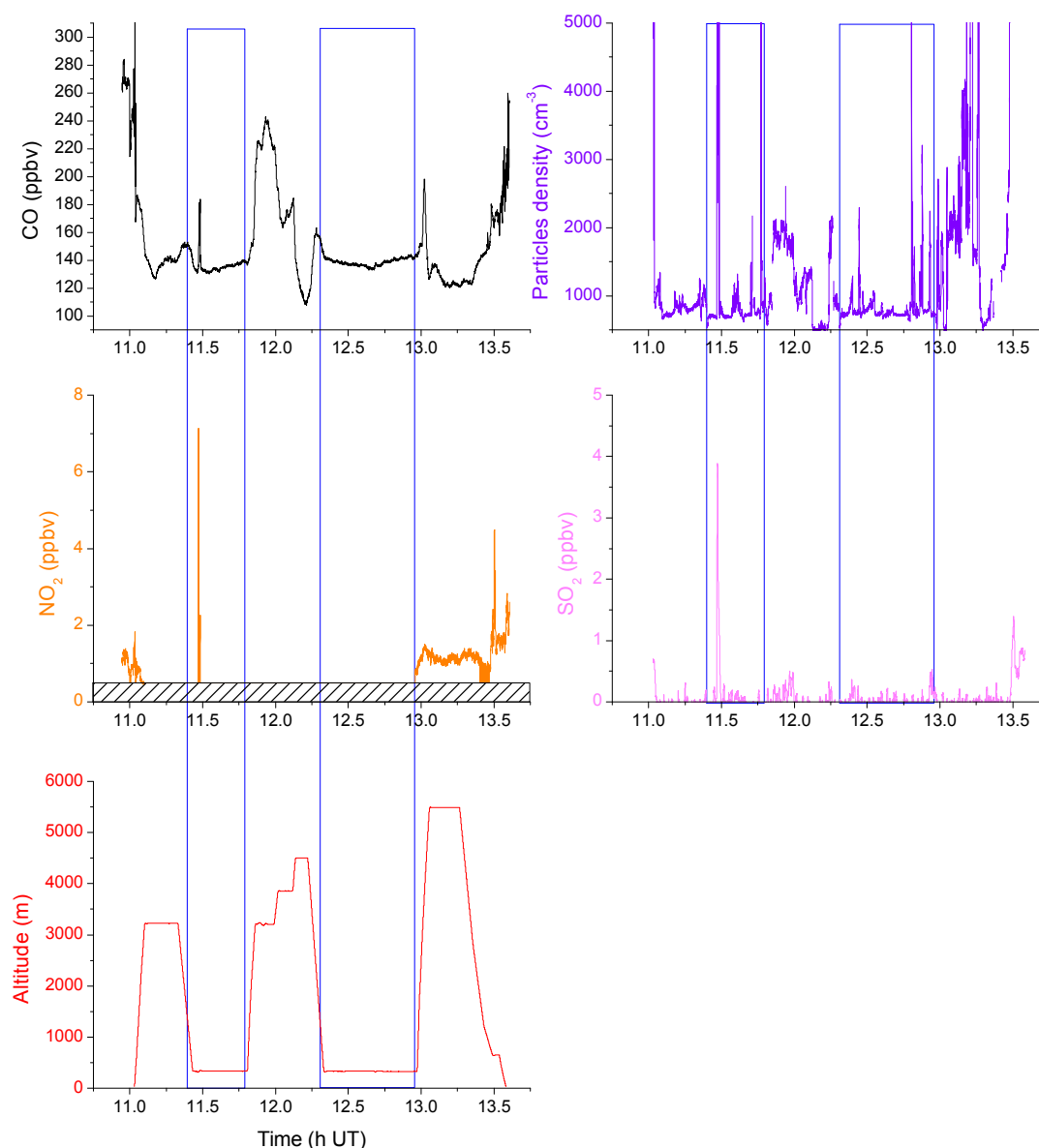


Figure 4.13 — Mesures de CO (en noir), aérosols (en violet), NO₂ (en orange), SO₂ (en rose) et altitude (en rouge) en fonction du temps le 07/07/2016. Les deux encadrés bleus correspondent aux altitudes les plus basses de la trajectoire de l'avion en figure 4.14, là où l'avion a traversé le couloir maritime. La partie hachurée indique la limite de détection de l'instrument SPIRIT pour le NO₂.

d'émission de la plateforme sont à calculer au préalable.

Estimation de la hauteur d'injection du panache

La détermination de la hauteur d'injection du panache est décrite de façon théorique en section 1.3.2. Les émissions anthropiques issues des cheminées industrielles et des plateformes d'extraction pétrolière sont à des températures généralement supérieures à l'atmosphère environnante. Le fait que ces émissions soient plus chaudes en sortie de cheminée rend leur

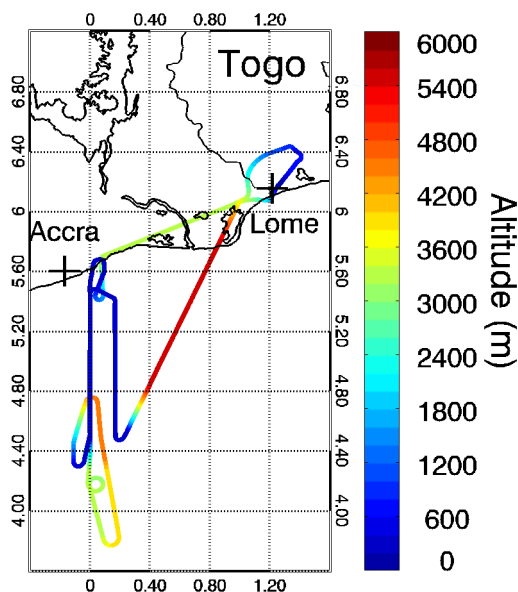


Figure 4.14 — Représentation de la trajectoire de l'avion le 7 juillet en fonction de l'altitude.

flottabilité plus importante. Les effets de la flottabilité, non pris en compte dans FLEXPART, et de la dynamique des émissions en sortie de cheminée font s'élever le panache au-dessus de sa hauteur d'injection initiale, pouvant augmenter la hauteur effective de la source jusqu'à plusieurs fois la hauteur réelle de la cheminée (Arya, 1999).

Le calcul de l'élévation d'un panache dépend des conditions de vent et de stabilité de l'atmosphère (voir tableau 1.1). Aussi bien pour le 10 que le 14 juillet, l'atmosphère est dite stable en remplissant le critère de stabilité donné en figure 1.7, soit $\frac{dT}{dz} > \frac{-9.8^\circ C}{1km}$, donc l'air est freiné durant son ascension et il est alors possible de calculer la hauteur finale du panache. Une fois la condition de stabilité établie, il reste à établir les conditions de vent. Les champs de vent sont fournis par ECMWF avec une résolution de $0,125^\circ \times 0,125^\circ$ pour le mois de juillet 2016. La vitesse moyenne du vent dans la couche limite autour de la plateforme FPSO est de 8,7 m/s pour le 10 juillet et 8,4 m/s pour le 14 juillet. La hauteur de la couche limite a elle-même été déterminée grâce au paramètre « planetary boundary layer height » du Global Forecast System (GFS, NCEP, 2000) avec une résolution de $1^\circ \times 1^\circ$, pour chaque jour. En prenant le maximum du vent zonal de ECMWF pour chaque jour afin de confirmer la hauteur donnée par GFS, il apparaît que les jeux de données sont cohérents entre eux et donnent une hauteur de couche limite à environ 940 hPa pour le 10 juillet et 950 hPa pour le 14 juillet. De manière générale, en météorologie, on commence à parler de vent aux alentours de 4-5 m/s (communication personnelle, J. Guth, CNRM/GMGEC/COMETS). En réunissant les conditions de stabilité et de vent, le calcul de l'élévation ΔH du panache dépend donc des conditions « stable, windy » du tableau 1.1. Dans le cas de panache à haute température (provenant d'une source à environ 1600 K pour la plateforme FPSO), seul l'effet de flottabilité (F_b , équation 1.13) peut être considéré du fait que l'élévation est principalement causée par

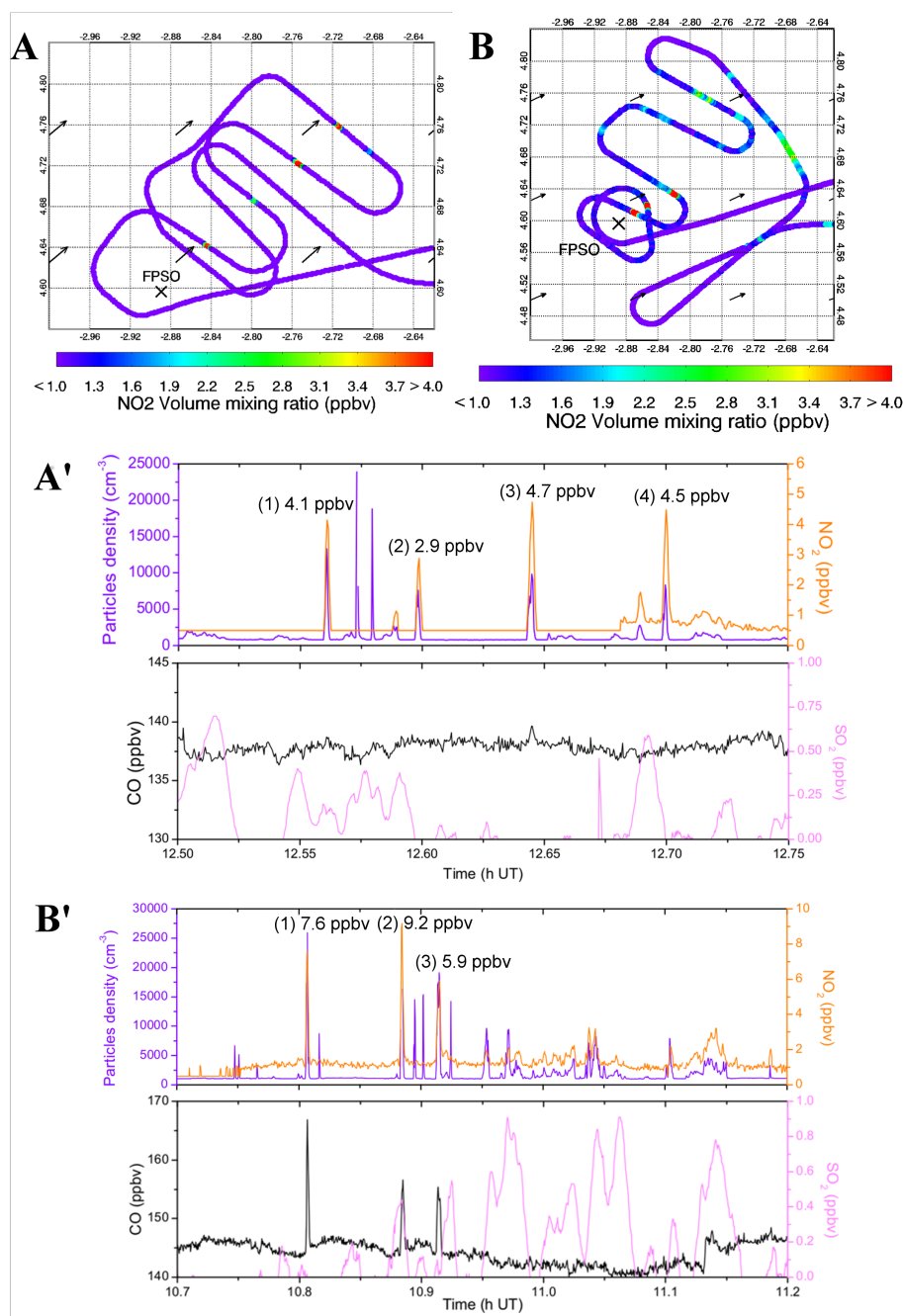


Figure 4.15 — (A) Concentrations de NO₂ en fonction de la trajectoire de l'avion et hors panache de la plateforme FPSO pour le 10 juillet. Les flèches noires indiquent la direction du vent. (A') Profils temporels de mesures de NO₂, aérosols, CO et SO₂ zoomées sur la partie du vol de la trajectoire en (A). Les pics étudiés par la suite sont identifiés par un numéro (de 1 à 4) avec la concentration maximale mesurée de NO₂. (B) et (B') identiques à (A) et (A') pour le 14 juillet.

la chaleur (Briggs, 1965). Dans cette formule, la température en sortie de cheminée ainsi que le débit sont fournis par l'inventaire de Deetz and Vogel (2017). Ainsi, dans des conditions d'atmosphère stable et de vent, la hauteur d'élévation du panache est de 27 et 25 m pour le 10 et 14 juillet, respectivement.

Deux autres méthodes de calcul ont été testées pour déterminer la hauteur du panache. La première méthode est celle utilisée dans le modèle COSMO-ART (Vogel et al., 2009). Dans cette méthode, la détermination de l'élévation dépend du rapport entre le flux de chaleur et la vitesse du vent en haut de la cheminée (communication personnelle, K. Deetz, KIT). Le flux de chaleur M en mégawatts (équation 4.1) est lui-même défini comme l'équation (1) dans Deetz and Vogel (2017) :

$$M = F c_p (T_S - T_A) \quad (4.1)$$

avec c_p la capacité calorifique spécifique moyenne des émissions ($c_p = 1,36 \times 10^{-3}$ MW.s.m⁻³.K⁻¹, fournie par le rapport technique VDI (1985)), F le débit fourni par l'inventaire de Deetz and Vogel (2017), T_A la température ambiante (fixée à 298 K, Deetz and Vogel, 2017) et T_S la température de la source aussi fournie dans l'inventaire.

Pour un flux de chaleur $M > 6$ MW (cas des deux jours étudiés), le flux de chaleur est recalculé selon l'équation 4.2 :

$$M = 102 \times M^{0,6} \quad (4.2)$$

L'élévation du panache se calcule alors comme le rapport entre ce flux de chaleur et la vitesse du vent en haut de la cheminée. En utilisant les vitesses de vent données ci-dessus, on obtient une élévation de panache de 39 et 40 m pour le 10 et 14 juillet, respectivement.

La deuxième méthode de calcul repose sur le rapport technique VDI (1985). Dans cette méthode, pour une atmosphère stable et un flux de chaleur $M > 6$ MW, la valeur finale d'élévation du panache est déterminée par l'équation 4.3 :

$$\Delta H = 74,4 \times M^{0,333} \times u^{-0,333} \quad (4.3)$$

avec u la vitesse du vent. L'élévation obtenue par ce calcul est de 79 et 80 m pour le 10 et 14 juillet, respectivement.

Estimation du flux d'émission

Afin de pouvoir simuler les émissions par la plateforme FPSO avec FLEXPART, il est aussi nécessaire de donner le flux d'émission de cette plateforme en entrée du modèle. Deux méthodes sont testées pour estimer le flux d'émission. La première consiste à calculer le flux F directement depuis les mesures faites depuis l'avion. Le calcul (équation 4.4) repose sur l'équation donnée dans Ryerson et al. (1998) :

$$F = v \cos(\alpha) \int_0^z n(z) dz \int_{-y}^y X_m(y) dy \quad (4.4)$$

avec v la vitesse du vent supposée constante, α l'angle entre la trajectoire de l'avion et la normale à la direction du vent, n la densité de l'atmosphère (concentration de molécules par unité de volume), X_m l'augmentation du rapport de mélange de l'espèce m retranchée de la valeur de fond de cette espèce, z la coordonnée verticale et y les coordonnées le long de la trajectoire de l'avion. Il est donc théoriquement possible, à partir de cette formule, de calculer le flux horizontal pour chaque traversée du panache par l'avion. Cependant, cette formule s'applique lorsque les concentrations des pics mesurées diminuent avec la distance à la source qui augmente afin qu'une relation linéaire du flux calculé pour chaque transect permette de remonter au flux de la source. Cela n'a pas été le cas pour la campagne laissant à penser que le vol n'a pas été effectué au cœur du panache, là où l'on aurait pu constater cette diminution des concentrations en fonction de la distance à la plateforme. Aucun flux ne sera donc déterminé à partir des mesures avec cette formule.

La deuxième méthode consiste à se baser sur les inventaires d'émission créés dans le cadre du projet DACCIWA. Malheureusement, dans le cas de l'inventaire « DACCIWA » décrit en section 2.4.1, la plateforme FPSO n'est pas référencée et donc aucun flux n'a pu être déduit. En revanche, la plateforme est référencée dans l'inventaire de [Deetz and Vogel \(2017\)](#). L'inventaire IV « E_com-year » semble le plus approprié pour notre étude (communication personnelle, K. Deetz, KIT). Le calcul des émissions par le torchage repose sur des données instantanées journalières de chaleur radiative et une moyenne mensuelle de la température de la source. Pour les torchères non observées car masquées par les nuages mais supposées actives, une moyenne annuelle des émissions spécifiques au brûlage par torchage est prise. Au final, le flux d'émission pour les deux jours étudiés est de 0,07 kg/s.

Simulation du panache avec FLEXPART

Une fois l'élévation du panache et le flux estimés, il est possible de simuler les émissions de la plateforme FPSO avec FLEXPART. Pour cela, FLEXPART utilise les champs de vent ECMWF avec une résolution de $0,5^\circ \times 0,5^\circ$. La résolution de la grille de sortie est fixée à $0,01^\circ \times 0,01^\circ$ (soit environ $1\text{km} \times 1\text{km}$). Un spin-up de 5h est fixé pour permettre au modèle de s'équilibrer afin de ne plus dépendre des conditions initiales et avoir ainsi la meilleure homogénéisation possible du panache. Le flux est relargué de façon constante pendant 7h. Le tableau 4.5 récapitule les différentes simulations en fonction de la hauteur d'injection et du flux. La constante de vitesse à 298 K avec les concentrations simulées par FLEXPART induisent un temps de vie de NO_2 d'environ 3h suite à la réaction avec OH.

Les résultats de ces premières simulations sont fournis dans le tableau 4.6. Pour le 10 juillet et pour un flux de 0,07 kg/s, en regardant l'écart-moyen et en tenant compte de la précision du NO_2 de 0,3 ppbv pour ce vol, il n'est pas possible de conclure sur l'effet de la hauteur d'injection sur nos simulations. Il n'est pas non plus possible de conclure en regardant individuellement chaque pic du fait qu'aucune tendance ne se dégage permettant d'établir un lien entre l'écart moyen et la hauteur d'injection. Pour le 14 juillet, l'écart moyen minimum

Hauteur d'injection	Méthode utilisée	Flux
27 m (10 juillet)	Briggs (1965)	0,07 kg/s
25 m (14 juillet)	Stable, windy conditions	Deetz and Vogel (2017)
40 m	COSMO-ART communication personnelle K. Deetz	0,07 kg/s Deetz and Vogel (2017)
80 m	VDI (1985) Stable condition	0,07 kg/s Deetz and Vogel (2017)

Tableau 4.5 — Récapitulatif des simulations FLEXPART en fonction de la hauteur d'injection (avec la méthode de calcul associée) et du flux.

($\Delta_{\text{moyen}}=3,61$ ppbv) entre les concentrations mesurées et simulées correspond à une hauteur d'injection de 80 m et l'écart moyen maximal ($\Delta_{\text{moyen}}=4,30$ ppbv) à une hauteur d'injection de 25 m. Ce premier résultat indique donc que pour un flux identique, l'écart entre simulation et mesure diminue pour une hauteur d'injection croissante. Mais pour ces mêmes hauteurs d'injection, quelle est l'influence du flux d'émission ? Un réajustement de ce flux est alors proposé. Pour cela, un coefficient permettant d'ajuster la concentration maximale simulée avec la concentration maximale mesurée est estimé pour chaque pic. Puis une moyenne de tous les coefficients est effectuée pour obtenir le flux réajusté. Un flux moyen de 0,10 kg/s réajusté pour l'ensemble des pics est utilisé pour le 10 juillet et un flux moyen de 0,14 kg/s est réajusté de la même façon pour le 14 juillet. Toutes les simulations du tableau 4.5 sont donc refaites avec ces nouveaux flux et les résultats sont présentés dans le tableau 4.6.

Cette deuxième série de tests donne des résultats similaires pour le 10 et le 14 juillet. L'écart moyen entre mesures et simulations est toujours le plus faible pour la hauteur d'injection la plus élevée (80 m). Contrairement aux résultats avec le flux de [Deetz and Vogel \(2017\)](#), l'écart moyen le plus important correspond à la hauteur d'injection intermédiaire (40 m) uniquement pour le 10 juillet. En comparant les deux séries de tests, il apparaît que, pour une même hauteur d'injection, le flux réajusté donne toujours un Δ_{moyen} plus faible. Ce résultat est particulièrement vrai pour la hauteur d'injection fixée à 80 m où l'on passe d'un écart moyen de 1,70 à 0,81 ppbv pour le 10 juillet et de 3,61 à 0,14 ppbv pour le 14 juillet. Pour conclure ces tests, la simulation retenue afin de reproduire au mieux le panache de la plateforme a une hauteur d'injection fixée à 80 m et un flux à 0,10 kg/s le 10 juillet et 0,14 kg/s le 14 juillet (figure 4.16). Les flux de l'inventaire de [Deetz and Vogel \(2017\)](#) paraissent donc sous-estimés. Le panache simulé avec FLEXPART (figure 4.16) pour les deux jours montre que les points de mesure se situent sur la partie haute du panache, éloignés des concentrations les plus fortes. L'étude menée est donc aussi limitée par les trajectoires des vols eux-mêmes, trop éloignés en altitude et en distance de la source. Les conditions opérationnelles pendant le vol étaient délicates en direct pour les pilotes et des questions de

Hauteur d'injection	Flux de Deetz and Vogel (2017)					Flux réajusté				
	$\Delta(\text{SPIRIT-flexpart})$ (ppbv)				Δmoyen (ppbv)	$\Delta(\text{SPIRIT-flexpart})$ (ppbv)				Δmoyen (ppbv)
	(1)	(2)	(3)	(4)		(1)	(2)	(3)	(4)	
$F_{10/27m}$	0,69	0,47	3,47	2,43	1,77	-0,08	0,12	2,89	1,74	1,17
	16,6%	16,4%	73,4%	54,1%	40,1%	-1,9%	4,2%	61,1%	38,7%	25,5%
$F_{10/40m}$	0,87	0,98	2,28	2,74	1,72	0,84	-0,04	2,74	2,03	1,39
	21%	34,1%	48,2%	61%	41,1%	20,2%	-1,4%	58%	45,2%	30,5%
$F_{10/80m}$	0,75	0,25	2,94	2,87	1,70	-0,74	-0,30	2,04	2,25	0,81
	18,1%	8,7%	62,2%	64%	38,3%	-17,8%	-10,4%	43,1%	50,1%	16,3%
$F_{14/25m}$	4,38	6,42	2,10	-	4,30	2,80	4,32	0,22	-	2,45
	57,6%	70,0%	35,4%	-	54,3%	36,8%	47,1%	3,7%	-	29,2%
$F_{14/40m}$	3,42	5,10	3,11	-	3,88	-0,55	4,30	-0,11	-	1,82
	44,9%	55,6%	52,4%	-	51%	-7,2%	46,9%	-1,8%	-	12,6%
$F_{14/80m}$	3,06	5,20	2,57	-	3,61	-1,33	3,34	-1,58	-	0,14
	40,2%	56,7%	43,3%	-	46,7%	-17,5%	36,4%	-26,6%	-	-2,6%

Tableau 4.6 — Écarts en ppbv et % entre mesures SPIRIT et simulations FLEXPART pour la concentration de NO_2 le 10 juillet (F_{10}) et 14 juillet (F_{14}), en fonction de la hauteur d'injection (HI) ($F_{\text{jour}/HI}$) et du flux choisis. Les numéros de 1 à 4 correspondent au numéro donné à chaque pic en figure 4.15.

sécurité nous ont contraints à respecter une altitude de vol minimal (300 m) et une distance minimale d'éloignement.

Discussion

Cette partie décrit les premiers tests effectués avec FLEXPART afin de reproduire les émissions de la plateforme. Les résultats montrent que certains pics sont bien reproduits tandis que d'autres sont sous-estimés. Une première amélioration consisterait à mieux reproduire les conditions de couche limite en utilisant par exemple le modèle FLEXPART couplé aux données météorologiques de WRF (FLEXPART-WRF; Brioude et al., 2013) avec une grille plus fine. De plus, il existe de nombreuses incertitudes dans les paramètres utilisés. Tout d'abord, une première hypothèse est faite sur la hauteur d'injection. En effet, comme le torchage se trouve être un procédé à haute température, l'on suppose que seule la force de flottabilité entre en jeu dans l'élévation du panache. Or, une étude plus poussée quant à l'effet de l'impulsion du flux d'air permettrait peut-être d'affiner le calcul de l'élévation de ce panache. De plus, le panache, dans le cas des plateformes, ne se situe pas directement en sortie des torchères. En effet, le premier élément sortant de la torchère est la flamme. Or, aucune estimation de hauteur de flamme n'est donnée du fait d'un manque d'information sur le sujet. Un travail plus poussé sur la combustion propre à ces flammes de diffusion serait donc utile. De plus, les incertitudes vis-à-vis du flux de l'inventaire de Deetz and Vogel (2017) sont importantes et son ajustement de 40% (à 0,10 kg/s) pour minimiser l'écart avec

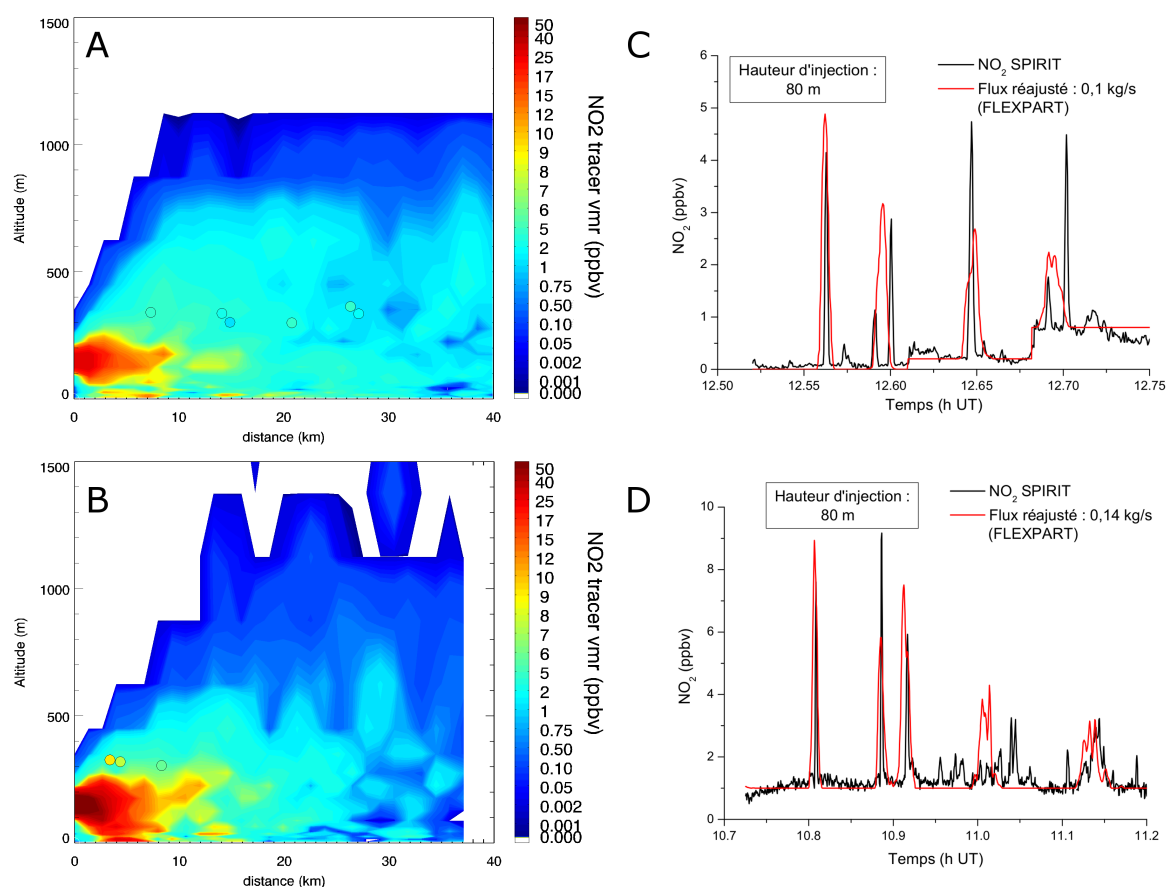


Figure 4.16 — (A) Représentation du panache de la plateforme FPSO selon la concentration en NO₂ simulée avec FLEXPART en fonction de la distance à la source et de l'altitude, pour le 10 juillet. Les ronds colorés correspondent aux pics de mesure de SPIRIT. (C) Concentration de NO₂ en fonction du temps, avec une hauteur d'injection de 80 m, pour les mesures SPIRIT (en noir) et pour FLEXPART avec un flux réajusté (en rouge). (B) et (D) Idem à (A) et (B) pour le 14 juillet.

les mesures est donc un résultat convenable. Finalement, il semble que ce type de vols soit à remettre en cause puisque l'on a volé trop haut et trop loin de la plateforme FPSO. En effet, les simulations FLEXPART montrent que nous n'avons pas mesuré les fortes concentrations au centre du panache mais les concentrations plus diluées autour.

L'étude en est à ses premiers tests mais sera poursuivie pour être consolidée en vue d'une publication. Elle suggère que pour des vols planifiés au plus fort des concentrations d'un panache, il serait possible de lier les observations de torchage par satellite avec les émissions déduites des mesures des instruments dans l'avion. Si cette relation est possible, elle pourrait servir de relation de référence entre émissions et chaleur radiative et permettrait alors d'estimer les émissions de tous les autres processus de torchage observés par satellite.

4.1.6 Étude du transport longue distance d'une masse d'air polluée par les feux de biomasse d'Afrique centrale

Durant la campagne DACCIWA, plusieurs vols ont été impactés par des augmentations de CO corrélées à des augmentations d'O₃, d'aérosols (mesures uniquement du CPC)¹, de CH₄ et des diminutions de l'humidité relative. Les mesures individuelles de chaque vol sont présentées en annexe B. En combinant l'ensemble des profils verticaux des six vols impactés, on obtient une valeur moyenne des concentrations de CO et O₃ (figure 4.17). Ces moyennes montrent clairement une augmentation des concentrations entre 2 et 4,5 km, avec des valeurs moyennes de CO allant jusqu'à 200 ppbv et jusqu'à 60 ppbv pour O₃.

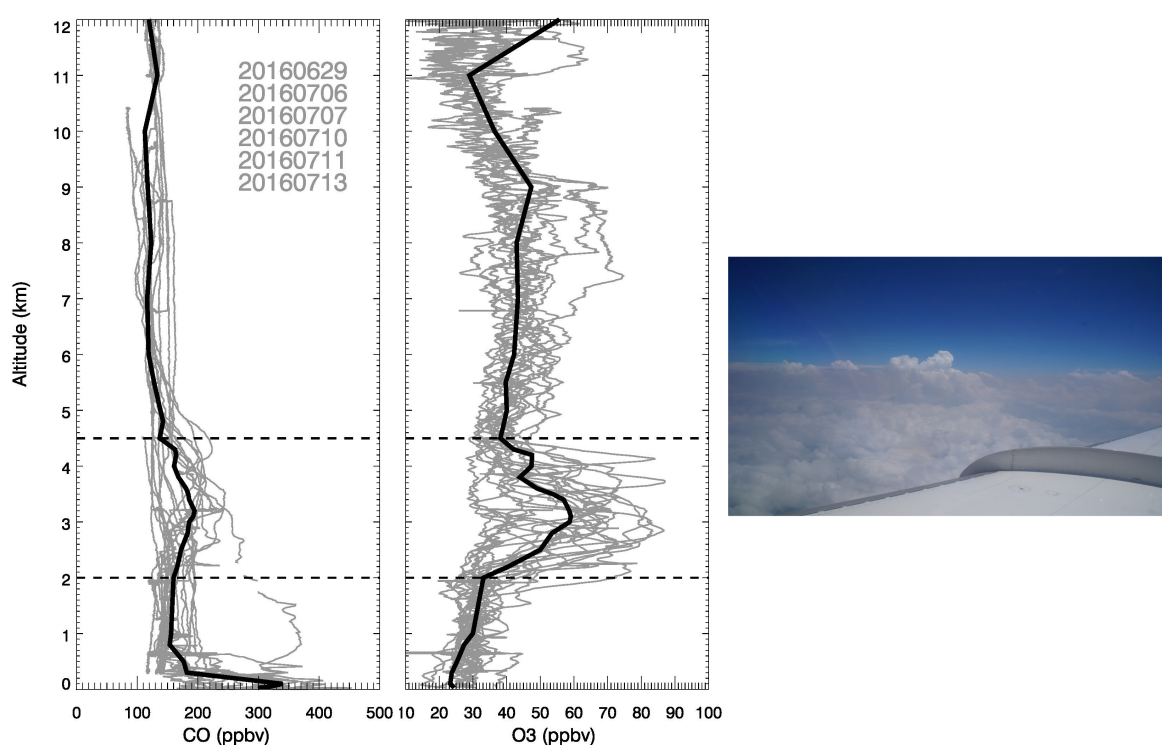


Figure 4.17 — (À gauche) Profils verticaux des mesures de CO et O₃ (en gris) pour 6 vols de la campagne DACCIWA. Le profil vertical moyen de ces 6 vols est représenté en noir. (À droite) Photo d'une couche sombre de particules prise depuis le Falcon-20 le 10 juillet 2016.

Cette couche présente tout le long de la campagne qui s'étend sur 2,5 km d'altitude s'étend aussi en longitude et a été mesurée au-dessus du Bénin, du Togo, du Ghana et de la Côte d'Ivoire (figure 4.18). Les photos prises durant ces vols depuis le hublot de l'avion montre que l'on a traversé une couche sombre de particules due à des feux de biomasse (figure 4.17).

Afin de connaître l'origine de ces feux, des simulations avec FLEXPART en mode backward (voir section 2.4.3) ont été effectuées pour les six vols impactés. Chaque rétro-trajectoire

1. Les mesures du compteur de particules OPC (Optical Particle Counter) de la société GRIMM présentent aussi des corrélations avec les autres mesures. Ces corrélations ont été mises en évidence lors de la dernière réunion d'avancement du projet DACCIWA, fin octobre. Le délai de finalisation du manuscrit n'a pas permis de les inclure.

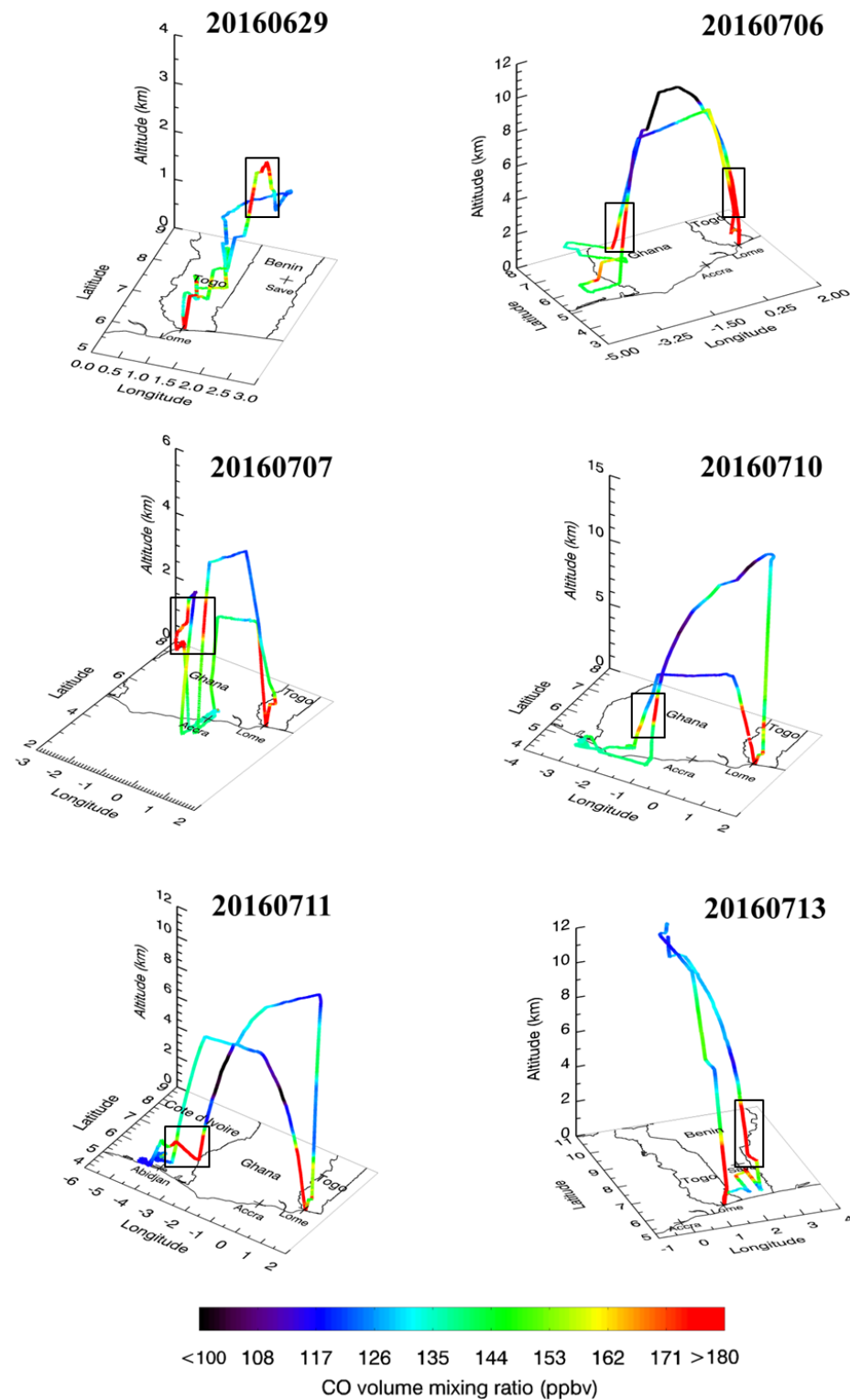


Figure 4.18 — Représentation 3D de la trajectoire du Falcon en fonction des vmr (volume mixing ratio) de CO. Les encadrés noirs permettent de mettre en évidence les mesures de CO de la couche étudiée.

est simulée pendant 20 jours en arrière à partir du jour du vol. Les champs de vent ECMWF sont à la résolution $0,5^\circ \times 0,5^\circ$. Les particules sont relarguées tout le long de la trajectoire de l'avion mais les cartes de rétro-trajectoires sont sélectionnées de façon à correspondre au moment du pic de pollution (voir mesures en annexe B). Afin de définir quelle zone contribue le plus à chaque pic, ces rétro-trajectoires sont couplées aux inventaires EDGAR et DACCIWA afin de voir la contribution des sources anthropiques (sans feu de biomasse) et à l'inventaire GFAS pour la contribution des feux de biomasse. La hauteur d'injection pour les feux est fixée à 3 km (Labonne et al., 2007). Cette hauteur a été estimée à partir des mesures lidar du satellite CALIPSO d'une couche d'aérosols durant la saison où l'intensité des feux est maximale en Afrique, soit juillet et août.

La tableau 4.7 résume les résultats des contributions pour chaque vol et chaque pic tandis que l'ensemble des cartes de rétro-trajectoires et de contribution sont fournies en annexe C. Globalement, pour les six vols, les rétro-trajectoires révèlent que les masses d'air sont passées au-dessus de l'Atlantique et de l'Afrique centrale entre environ -20°N et 5°N . Pour certains vols, les masses d'air forment une deuxième branche venant de l'Afrique du Nord et le Proche-Orient. Pour les six vols et chaque pic considéré, la contribution du CO des feux de biomasse la plus importante provient toujours de la même zone : l'Afrique centrale. Pour les émissions anthropiques, les contributions les plus importantes proviennent d'Afrique (majoritairement Afrique centrale et pays du golfe de Guinée). Comme les émissions d'EDGAR datent de 2008 et que les contributions les plus fortes viennent d'Afrique, il est possible d'affiner les résultats en utilisant un inventaire plus récent uniquement centré sur l'Afrique. Ainsi, les rétro-trajectoires sont ensuite couplées avec l'inventaire DACCIWA centré sur le continent africain pour l'année 2015 (annexe B). Les contributions avec l'inventaire DACCIWA sont dans tous les cas plus fortes que celles de l'inventaire EDGAR mais les zones d'origine des émissions anthropiques restent les mêmes (tableau 4.7). Les résultats montrent que la contribution des feux de biomasse est toujours supérieure à la contribution des émissions anthropiques. Ainsi, la couche traversée pendant ces six vols est principalement due à des émissions de feux auxquelles se sont mélangées des émissions anthropiques.

Ces simulations sont un travail préliminaire et donc aucune simulation n'a été optimisée dans le but de minimiser l'écart entre les mesures et les résultats de FLEXPART. Elles ont pour but principal d'avoir une vue d'ensemble sur l'origine des masses d'air pour cette couche et donc l'origine de cette pollution. De ce fait, certaines contributions comme la contribution des feux par GFAS le 29 juin semblent élevées. Cette forte contribution pourrait s'expliquer par une surestimation des feux n'induisant pas de pyroconvection (c'est-à-dire des feux de plus petite envergure) et dont la hauteur d'injection fixée à 3 km n'est pas justifiée. Une idée d'amélioration des simulations serait donc d'étudier plus en détail la hauteur à laquelle les émissions sont injectées. Un développement possible du postprocessing de FLEXPART serait alors de combiner les données de hauteur d'injection de GFAS sur la grille FLEXPART et ainsi obtenir une hauteur d'injection individuelle pour chaque point de grille.

D'après la section 4.1.4.2, la présence de cette couche de feux de biomasse venant d'Afrique

Date	Contribution feux GFAS ⁽¹⁾ (ppbv)	Contribution anthropique		SPIRIT (ppbv)	
		DACCIWA ⁽²⁾ (ppbv)	EDGAR ⁽³⁾ (ppbv)		
Origine					
20160629	217,67	18,61	10,99	Afrique centrale	100,16
20160706	66,46	13,63	8,68	Afrique centrale	63,72
	34,72	8,61	6,86	Afrique centrale & Asie occidentale	73,69
20160707	62,53	22,28	13,74	Afrique centrale	112,78
	28,77	18,46	13,19	Afrique centrale	68,21
20160710	14,77	10,03	6,52	Afrique subsaharienne & Europe centrale	30,29
	31,35	11,86	7,58	Afrique centrale & Europe centrale	65,62
20160711	67,39	7,66	4,72	Afrique centrale	96,63
20160713	37,07	12,41	7,70	Golfe de Guinée	122,31

Tableau 4.7 — Tableau récapitulatif des contributions anthropiques hors feux de biomasse (EDGAR et DACCIWA) et des feux de biomasse (GFAS) aux pics de CO (retranchés de la valeur de fond de CO) mesurés par l'instrument SPIRIT (annexe B) pour chaque vol. L'origine des masses d'air influencées par les feux est indiquée sur les cartes de l'Annexe C ; l'origine de celles influencées par les activités anthropiques est indiquée avec l'inventaire EDGAR dans la colonne « Origine ». (1) Origine des masses d'air : Afrique centrale, (2) inventaire centré sur l'Afrique uniquement, (3) inventaire global.

centrale n'est pas surprenante. Dans le cadre de la préparation de la campagne DACCIWA, il a été montré, à l'aide des modèles régionaux WRF et CHIMERE, que les feux de végétation d'Afrique Centrale en 2014 induisent une augmentation des concentrations de surface de CO, O₃ et PM₁₀ pour les villes côtières du golfe de Guinée (Menut et al., 2017). De plus, grâce à des simulations de traceurs, Menut et al. (2017) montrent que, quelle que soit la localisation des émissions d'Afrique centrale, les feux de biomasse impactent toujours les concentrations de surface de ces villes côtières. L'été 2016 étant relativement plus sec par rapport à 2014 (Menut et al., 2017), l'impact de ces feux d'Afrique centrale est d'autant plus important.

4.2 Étude au niveau du Pacifique : le projet SHIVA

4.2.1 Contexte scientifique

Le projet européen SHIVA (Stratospheric ozone : Halogen Impacts in a Varying Atmosphere; shiva.iup.uni-heidelberg.de) avait pour but de réduire les incertitudes sur la quantité d'espèces halogénées à très courte durée de vie (VSLs - Very Short-Lives Sub-

tances) qui atteignent la stratosphère et conduisant, par exemple, à la diminution de l'ozone stratosphérique. Une campagne de mesures intensives a été planifiée incluant des mesures au sol, par bateau, par satellites et par avion au niveau de la mer de Chine du sud et le long des côtes de la péninsule malaisienne continentale et de l'île de Bornéo pendant les mois de novembre et décembre 2011.

Lors des différentes sorties de l'avion, des pics de pollution de CO , NO_2 et SO_2 ont été mesurés dans la couche limite et la troposphère libre. Bien que la campagne n'ait pas été dédiée à ce type d'étude, il est intéressant de tirer profit des mesures faites afin de regarder l'origine de cette pollution. La suite du travail porte donc sur des études de cas ciblant des types de pollution spécifique.

4.2.2 La campagne aéroportée de mesures SHIVA

4.2.2.1 Description de la campagne

Durant la campagne, un total de 16 vols a été effectué par le Falcon-20 du DLR (figure 4.19) entre la période du 16 novembre au 11 décembre 2011. Ces vols se sont étalés le long de la côte de la partie malaisienne de l'île de Bornéo en remontant jusqu'à la péninsule malaisienne, au niveau de Singapour. Pour répondre aux objectifs du projet, les avions ont décrit des trajectoires allant de la basse à la haute troposphère (> 12 km d'altitude).

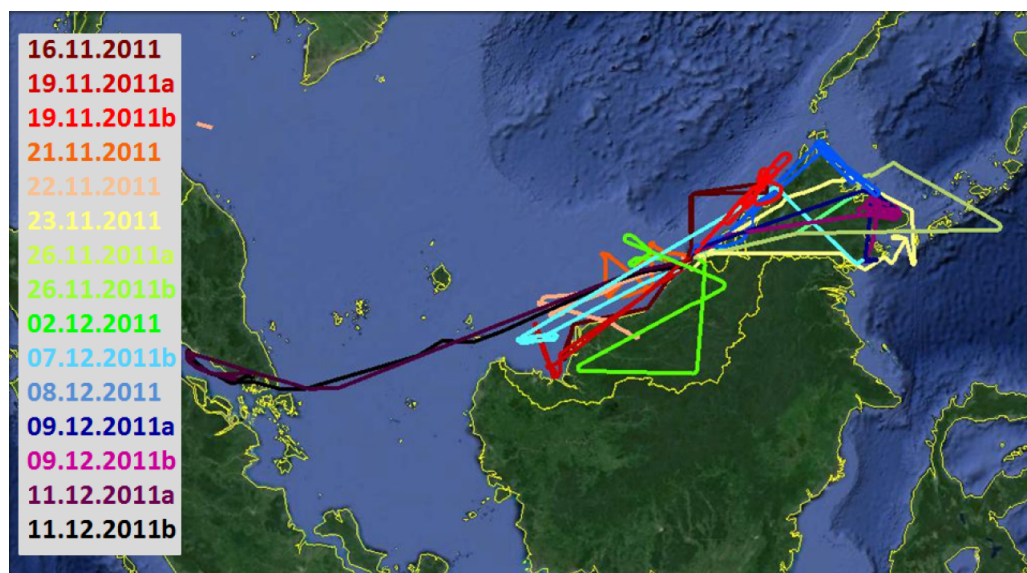


Figure 4.19 — Présentation des 16 vols de la campagne SHIVA (d'après Grossmann, 2014). Lorsque deux sorties du Falcon ont lieu le même jour, la première sortie est suivie de « a » et la deuxième de « b ». Du fait d'un problème d'enregistrement des données, le vol du 07.12.2011a est manquant.

L'instrument SPIRIT a été déployé pour la première fois après son développement (financé partiellement par ce projet européen) lors de cette campagne et a permis d'effectuer des

mesures de N_2O , CO , CO_2 et CH_4 . Les conditions expérimentales de la campagne étaient les mêmes que celles de la campagne GLAM, à l'exception de la voie du CO_2 , tombée en panne au premier vol suite à la défection de la climatisation de l'avion. Seules les deux voies restantes sont donc exploitables.

4.2.2.2 Caractéristiques régionales et conditions météorologiques

Caractéristiques régionales

Troisième plus grande île dans le monde, Bornéo est partagée entre trois pays : l'Indonésie, la Malaisie et Brunei, avec la majeure partie de l'île se trouvant en Indonésie (figure 4.20).



Figure 4.20 — Carte de l'île de Bornéo (d'après Grossmann, 2014).

Bornéo possède l'une des plus anciennes forêts équatoriales humides au monde. Cependant, on observe une forte déforestation du fait du développement de l'industrie de l'huile de palme (Pyle et al., 2011) avec une expansion rapide des plantations en Malaisie entre 1975 et 2010 (Miettinen et al., 2012). La figure 4.21 montre l'étendue des plantations de palmiers à huile sur les tourbières en Asie du sud-est pour 1990 et 2010.

Les feux sont un moyen efficace, rapide et bon marché pour nettoyer et préparer la terre pour des développements agricoles et pour des plantations (Simorangkir, 2007) mais ont un impact sur la qualité de l'air. Cet impact ne se réduit pas aux régions émettrices et des panaches de feux en Indonésie peuvent être transportés dans l'atmosphère et affecter des villes telles que Singapour (Hyer and Chew, 2010, Atwood et al., 2013, Reddington et al., 2014, Kim et al., 2015). Les plantations de palmiers à huile sont considérées comme contribuant au réchauffement climatique à court terme. En plus d'être à l'origine des émissions de COV, le défrichage des terres pour les plantations de palmiers à huile nécessite de brûler la forêt équatoriale entraînant l'émission de produits de combustion. De plus, les émissions de CH_4 ont été assez peu étudiées lors du développement de la production d'huile de palme, bien que

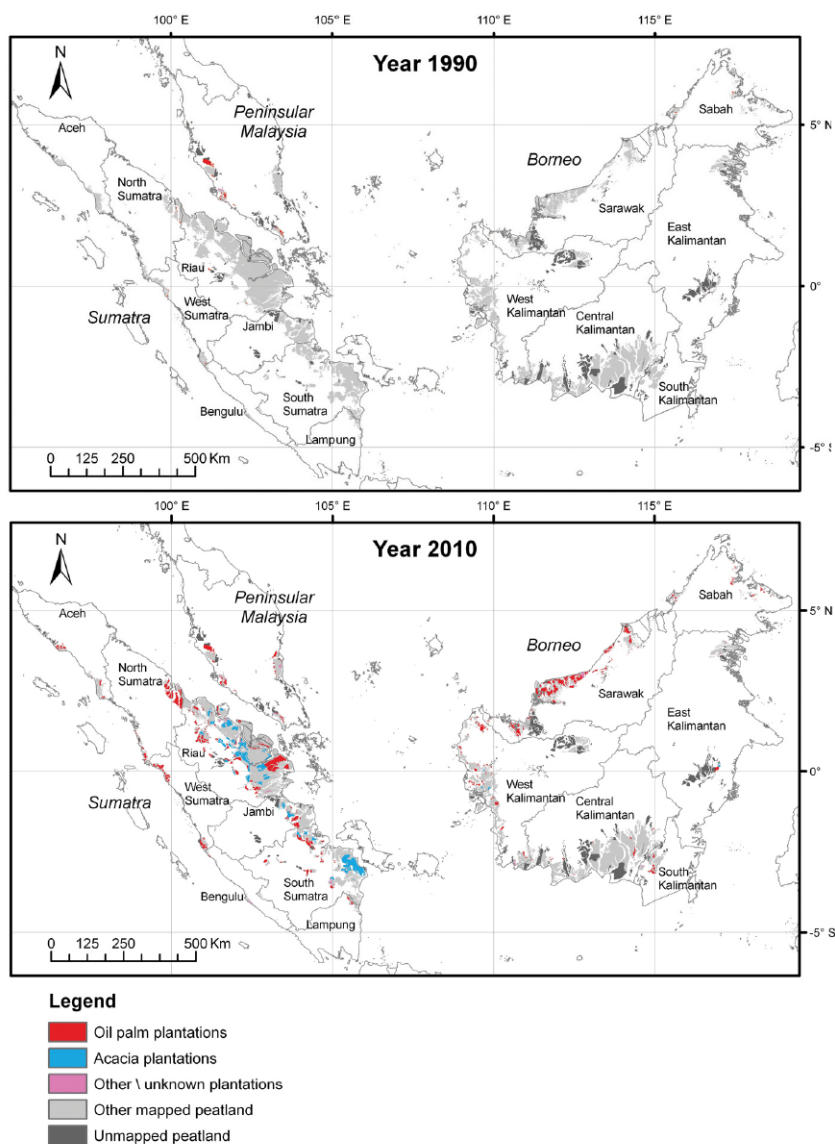


Figure 4.21 — Distribution des plantations d’huile de palme sur les tourbières en Asie du sud-est en 1990 et 2010 (adapté de [Miettinen et al. \(2012\)](#)).

celui-ci soit un gaz à effet de serre important. Les forêts équatoriales sont un puits majeur de CH_4 ([Macdonald et al., 1999](#)) et la déforestation entraîne une diminution de ce puits. L’huile de palme est aussi émettrice d’isoprène, connu pour réagir avec le radical hydroxyle et l’éliminer. Des études ([Guenther, 2008](#), [Lelieveld et al., 2008](#)) ont montré que, dans une atmosphère à teneur faible en NO_x , l’oxydation des isoprènes permet le recyclage de OH. Dans une atmosphère polluée, ce recyclage est stoppé, conduisant à l’accumulation d’oxydants, ce qui favorise le développement d’un smog photochimique ([Lelieveld et al., 2008](#)). De ce fait, les plantations de palmiers à huile se trouvant à proximité de zones urbaines ou industrielles peuvent favoriser le développement de tels brouillards de pollution, avec des conséquences sur l’environnement et la population. Des questions se posent aussi quant aux impacts en-

vironnementaux liés à la production d'O₃ par les émissions des plantations elles-mêmes et par les feux de ces plantations. Les émissions naturelles de ces plantations, de même que les émissions induites par la combustion nécessitent d'être mieux mesurées. En effet, [Heil et al. \(2007\)](#) et [Kim et al. \(2015\)](#) ont montré que l'exposition de la population au panache de fumée dépend de la localisation spatiale des émissions et de l'étendue du feu mais les problèmes liés à la qualité de l'air restent peu quantifiés ([Kim et al., 2015](#)), notamment la dégradation de la qualité de l'air au niveau régional du fait de l'augmentation des concentrations en particules fines ([Marlier et al., 2015](#)).

La figure 4.22 représente les feux détectés par MODIS pendant la campagne SHIVA (du 26 novembre au 11 décembre 2011). Le code couleur représente le nombre de feux détectés dans une grille de résolution 0,75°×0,75°. Deux zones dans la région du Mékong (Vietnam, Cambodge et Thaïlande) et dans le nord de l'Australie comptent plus de 50 feux durant la campagne. Les feux de forêt et le brûlage des résidus de culture de riz dominent la région du Mékong ([Bonnet and Garivait, 2011](#)) tandis que dans le nord de l'Australie, les feux sont principalement déclenchés de façon naturelle par les éclairs entraînant des feux de savane ([Olson et al., 1999](#)). Plusieurs feux ont été détectés en Malaisie, en Indonésie et aux Philippines mais ils ont été de courte durée (feux de 1 ou 2 jours).

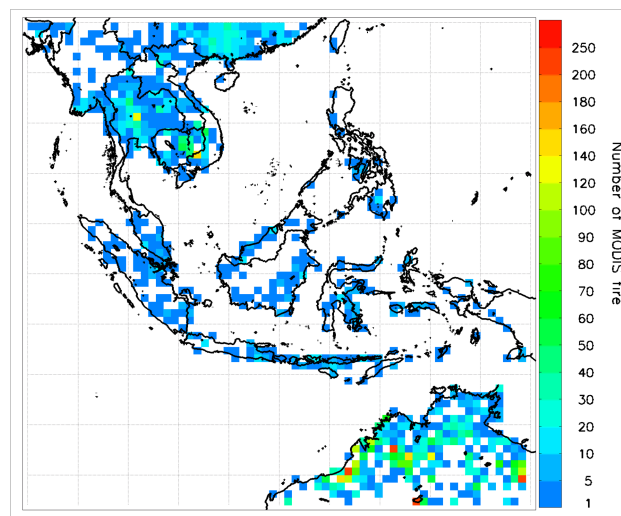


Figure 4.22 — Nombre de pixels de feux actifs détectés par MODIS dans chaque cellule de grille de 0,75°×0,75° entre le 16 novembre et le 11 décembre 2011.

De nombreuses plateformes offshore se situent le long des côtes de Sarawak, près de Miri et de Brunei, ajoutant aux émissions de feux de biomasse des émissions pétrolières et gazières et des émissions provenant des raffineries. Le transit entre ces plateformes et entre les îles rend le trafic maritime de la région dense (figure 4.23).

Le détroit de Malacca et la mer de Chine du Sud sont d'ailleurs reconnus comme étant la voie maritime principale pour la circulation des marchandises et du carburant vers et depuis la région ([Streets et al., 1997](#)). Les émissions de SO₂ des bateaux constituent une source majeure au niveau de la mer de Chine du Sud, avec des zones terrestres telles que Singapour



Figure 4.23 — Densité du trafic maritime autour de l'île de Bornéo pour l'année 2012 (adapté d'après <https://www.shipmap.org>).

fortement impactées par ces émissions (Streets et al., 1997, Streets et al., 2000).

Conditions météorologiques

La campagne s'est déroulée au niveau de l'équateur, proche de l'ITCZ. Cette région est connue pour la convection profonde qui s'y déroule, principalement durant la saison humide. Cette région a été choisie du fait que la convection est intense au-dessus du Pacifique ouest. En effet, la convection profonde tropicale est l'un des principaux mécanismes permettant le transport des gaz traces et des aérosols de la surface jusqu'à l'UTLS (par exemple, Fueglistaler et al., 2009, Rex et al., 2014). De ce fait, l'Asie du sud-est est la voie principale pour que les halocarbures émis naturellement et à très courte durée de vie (VSLS) atteignent la stratosphère (par exemple Krüger et al., 2008, Fueglistaler et al., 2009). La météorologie particulière à cette région est donc un élément clé pouvant permettre à une quantité significative de VSLS d'atteindre la stratosphère.

4.2.3 Caractérisation d'un pic de concentrations de polluants

Présentation des mesures

Selon le type de campagne, remonter aux sources de pollution ne relève pas des mêmes difficultés. En effet, pour des campagnes ciblées et donc bien planifiées il n'existe pas d'incertitude quant à l'origine des pics de pollution. La partie suivante présente au contraire une campagne non planifiée pour l'étude de la pollution anthropique dans laquelle il est nécessaire de remonter à la source d'émission à l'aide d'un modèle pour pouvoir conclure sur les mesures.

Lors de la campagne SHIVA, des pics de CO, SO₂ et NO₂ corrélés entre eux ont été mesurés le 23 novembre 2011, à 99 m au-dessus de la mer, par l'instrument SPIRIT, un CI-ITMS et un mini-DOAS respectivement (figure 4.24). Le rapport de mélange de CO atteint ~ 182 ppbv, ~ 2 ppbv pour SO₂ et ~ 1 ppbv pour NO₂.

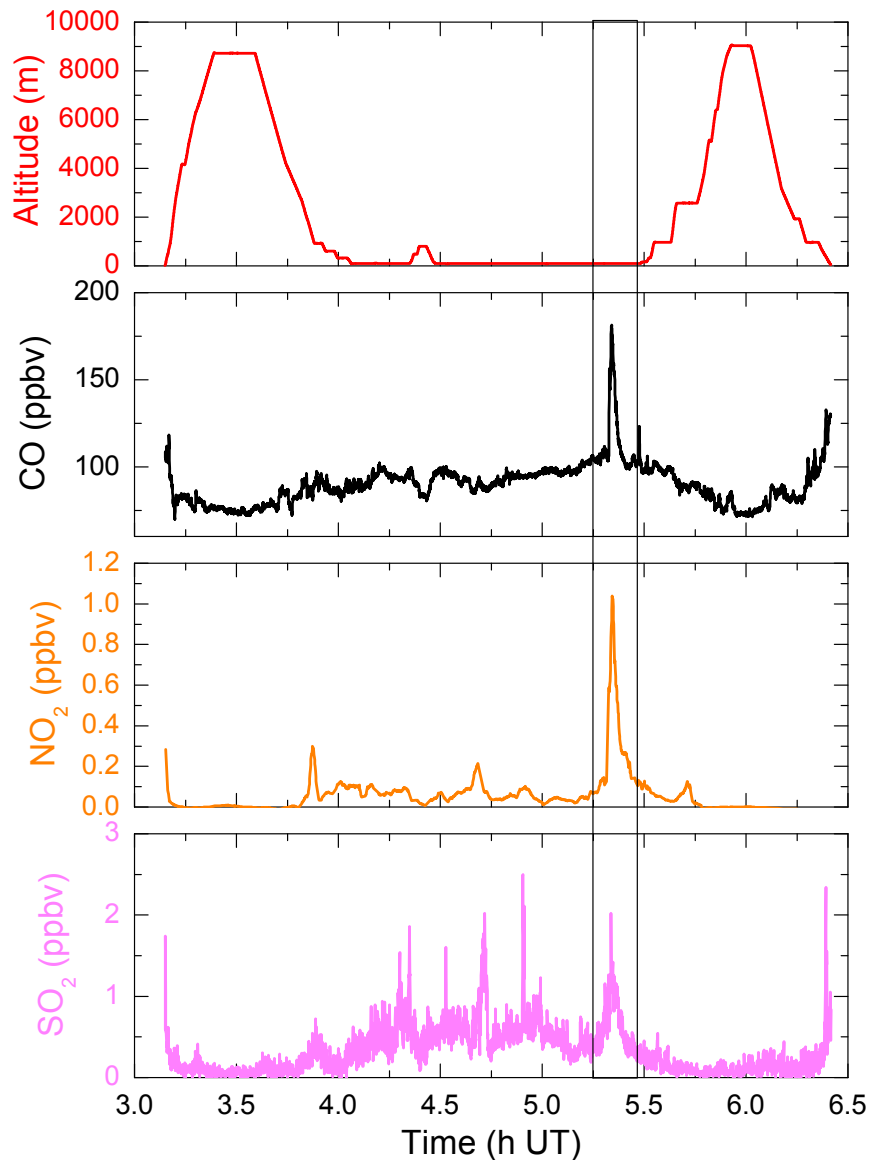


Figure 4.24 — Mesures de CO (noir), NO₂ (orange), SO₂ (rose) et altitude (rouge) en fonction du temps le 23 novembre 2011. L'encadré noir met en évidence le pic de pollution étudié.

La corrélation entre ces trois polluants indique une source de pollution de nature anthropique (voir section 1.4). Au vu des caractéristiques de la région, plusieurs hypothèses sont envisageables : émission urbaines, émissions du trafic maritime ou émissions par des plateformes pétrolières. Dans la suite de cette section, chaque hypothèse sera envisagée afin de pouvoir conclure sur l'origine de la source.

Détermination de l'origine des masses d'air

Des simulations en mode backward sont utilisées afin de déterminer l'origine des masses d'air. Les simulations sont effectuées jusqu'à 7 jours en arrière avec les champs de vent ECMWF ayant une résolution de $0,5^\circ \times 0,5^\circ$. La grille de sortie de FLEXPART a une résolution de $0,25^\circ \times 0,25^\circ$. La simulation de ces rétro-trajectoires (figure 4.25) montre que les masses d'air se trouvaient au niveau des Philippines 1 jour avant la mesure, soit le 22 novembre. Une première hypothèse pour expliquer ce pic est donc un apport de pollution venant des Philippines. En effet, la figure 4.25 montre que les émissions anthropiques de CO, venant de l'inventaire EDGAR pour l'année 2008, sont importantes aux Philippines et la zone traversée par la masse d'air correspond à une zone urbaine. Cependant, la littérature précise que le temps de vie de NO_2 n'est que de quelques heures dans la couche limite (Zien et al., 2014) rendant son transport jusqu'à l'île de Bornéo un jour plus tard peu probable. Afin de confirmer cela, il est possible d'avoir accès au temps de vie de NO_2 calculé dans FLEXPART du fait que la réaction avec OH soit activée. Selon l'altitude, le temps de vie de NO_2 varie entre 4 et 8h, en accord avec le temps de vie calculé pour les NO_x dans Marelle et al. (2016) de 5 et 12h. Nous écartons donc l'hypothèse d'émissions urbaines et cherchons une source située entre les Philippines et l'île de Bornéo, suffisamment proche de la localisation de l'avion.

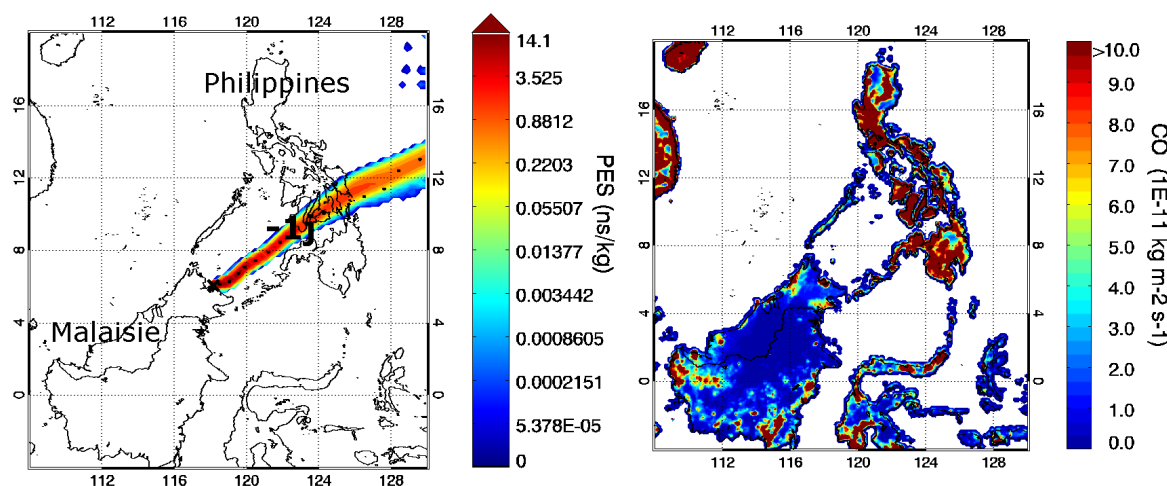


Figure 4.25 — (À gauche) Carte zoomée sur les 2 premiers jours de rétro-trajectoire (sur un total de 7 jours) simulée avec FLEXPART à partir du jour du pic, le 23 novembre 2011. Les points noirs sont espacés régulièrement toutes les 3 heures. La localisation des masses d'air 1 jour avant le vol est indiquée sur la carte. (À droite) Représentation des émissions anthropiques de CO venant de l'inventaire EDGAR pour l'année 2008.

Recherche d'une source d'émission compatible

Une fois les émissions des Philippines écartées, deux autres choix s'offrent alors : la présence d'une plateforme pétrolière ou d'un bateau, proche de l'avion. La figure 4.26 donne la localisation des plateformes pétrolières pour l'année 2011 grâce au logiciel de navigation

marine Polar Navy (courtoisie de K. Grossmann, JIFRESSE). Il apparait clairement que le pic ne peut être dû à une plateforme du fait qu'aucune n'est présente dans la zone ciblée ($5-9^{\circ}\text{N}$, $118-122^{\circ}\text{E}$), ce qui est confirmé dans Liu et al. (2016).

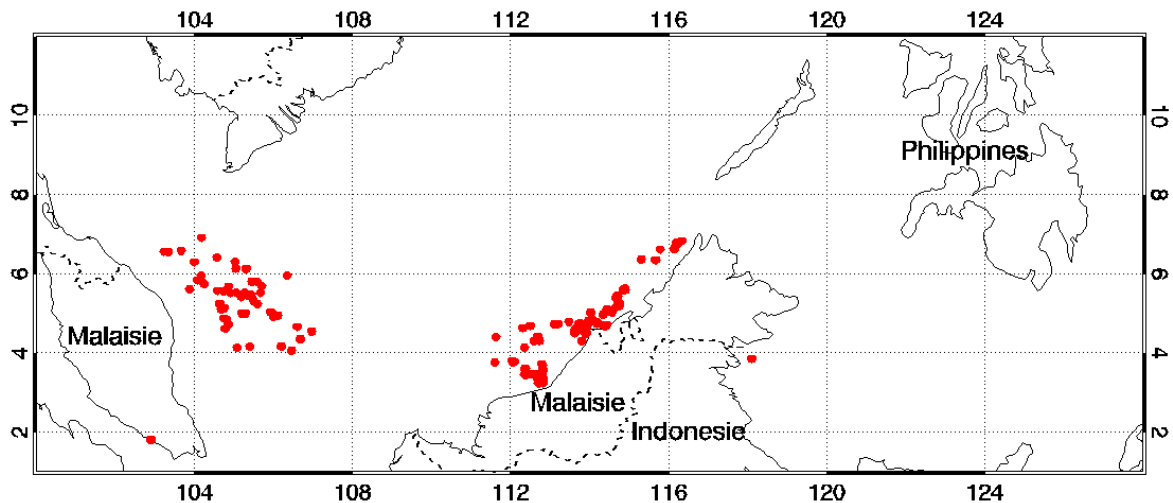


Figure 4.26 — Localisation des plateformes pétrolières, par le logiciel Polar Navy, en mer de Chine du sud en novembre 2011.

Des données quant au trafic maritime peuvent être fournies par Marine Traffic (<https://www.marinetraffic.com>) grâce au système d'identification automatique (Automatic Identification System, AIS). Ce système permet l'échange d'informations de navigation entre les bateaux et les gares maritimes et a été initialement conçu pour éviter les collisions entre bateaux en prêtant assistance aux autorités portuaires pour contrôler le trafic maritime. Les données fournies sont de différents types : immatriculation du bateau, statut, vitesse, coordonnées GPS, direction vers laquelle le bateau avance, date et heure auxquelles sont fournies ces données. La figure 4.27 est une représentation des données AIS de Marine Traffic. Sur cette carte, la trajectoire bordeaux représente la trajectoire de l'avion et le rond plein correspond à l'endroit où le pic a été mesuré. De plus, sur la figure chaque croix représente un bateau identifié par son immatriculation à un temps donné. Connaissant la direction de chaque bateau ainsi que sa vitesse, une estimation de la trajectoire du bateau 2 heures avant et 2 heures après la position fournie par AIS est possible. Les estimations de la trajectoire sont représentées par les lignes droites. D'après cette carte, il est évident que le trafic maritime est dense dans cette zone et avoir mesuré des émissions venant d'un bateau semble donc être une hypothèse valable. De plus, les immatriculations fournies correspondent pour la plupart à des bateaux de grosse envergure type cargo ou pétrolier.

Les données AIS ne permettent cependant pas d'identifier clairement ce bateau du fait d'une non concordance entre l'heure du pic et l'heure exacte fournie par ces données. En effet, la fréquence des données est dépendante de la distance du bateau à la côte. Ainsi, lorsqu'un bateau est proche des côtes, il peut envoyer régulièrement ces données GPS à une fréquence moyenne de 2-5 min. Mais si celui-ci est hors de portée des stations terrestres alors

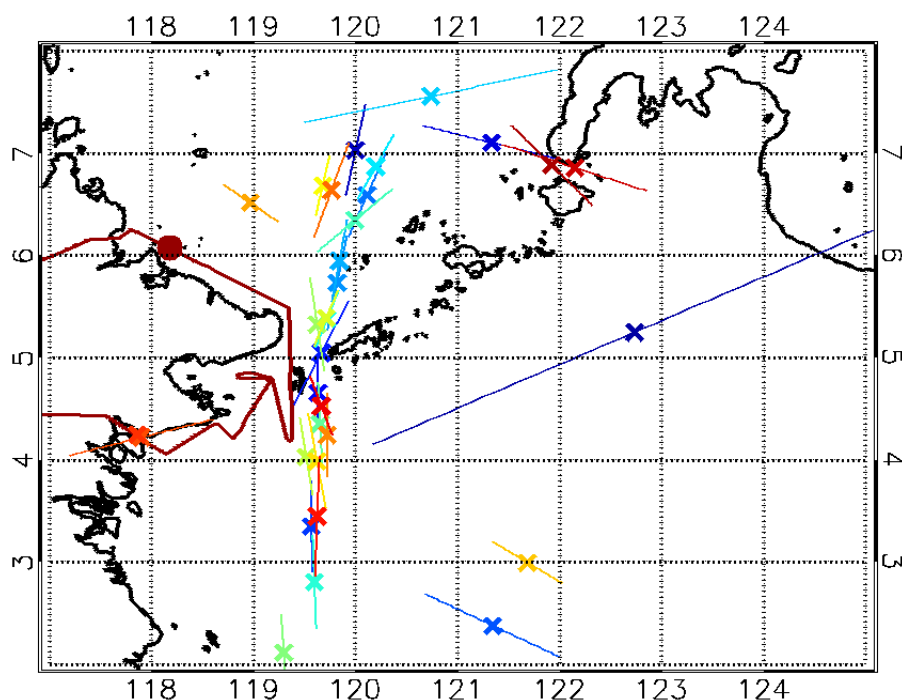


Figure 4.27 — Données AIS fournies par Marine Traffic donnant la position des bateaux (croix) le 23 novembre 2011. Une estimation de la trajectoire de chaque bateau 2h avant et 2h après la position donnée est représentée par les lignes continues. La trajectoire bordeaux représente la trajectoire de l'avion et le point bordeaux l'emplacement où le pic a été mesuré.

la fréquence est plus faible (2-8 heures) du fait que les données proviennent alors du satellite passant au-dessus de la zone. Ainsi, tous les bateaux ne sont pas répertoriés dans Marine Traffic.

Recherche d'un point d'émission par modélisation

Afin de confirmer l'hypothèse émise, des simulations avec FLEXPART en mode forward sont effectuées. Ces simulations s'appuient sur les champs de vent ECMWF avec une résolution de $0,5^\circ \times 0,5^\circ$. La grille de sortie possède une résolution de $0,01^\circ \times 0,01^\circ$. En se basant sur des bateaux de type cargo, on estime la hauteur d'injection des particules entre 50 et 115 m (Marelle et al., 2016). La localisation des points de relargage des particules (RP) est donnée en figure 4.28 avec la distance de chacun de ces points à l'avion. Les simulations forward nécessitent d'avoir un flux comme donnée d'entrée pour pouvoir calculer des concentrations. Pour estimer ce flux, nous nous basons sur les émissions de gaz de Dalsøren et al. (2009).

Une simulation avec un flux de CO de 9589 kg libérée de façon constante pendant 2h (soit 42 kT/an pour la catégorie « other activities » dans Dalsøren et al. (2009)) est effectuée. Les concentrations obtenues pour le sixième RP, soit à une distance d'environ 22 km de l'avion, sont proches du pic mesuré (figure 4.29 A). Pour les RP les plus près de l'avion (RP1 à RP5), les concentrations sont bien trop élevées tandis que le point le plus éloigné, RP7, semble trop

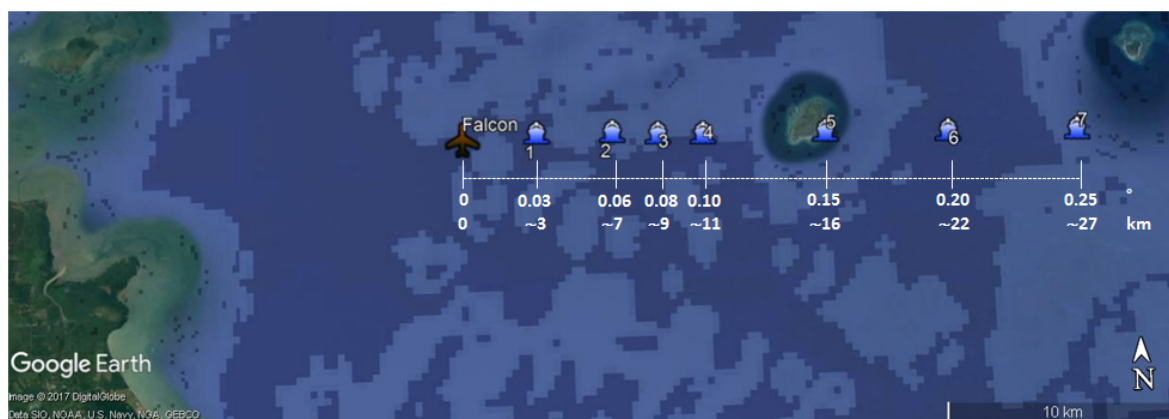


Figure 4.28 — Schéma représentant les distances, en degrés et km, entre l'avion et les différents points de relargage des particules (RP) numérotés de 1 à 7.

loin pour avoir impacté nos mesures avec ce flux. Cette simulation donnant des résultats proches des mesures pour le CO, le même exercice est appliqué au NO₂ et SO₂. Il apparaît cependant que, pour ces deux espèces, pour la même distance à l'avion et pour des flux venant de la même catégorie dans [Dalsøren et al. \(2009\)](#) (soit 111 kT/an pour NO₂ et 56 kT/an pour SO₂), les concentrations sont bien trop élevées (d'un facteur 10 à la fois pour NO₂ et SO₂) par rapport aux mesures. Cette catégorie « other activities » faisant partie de celles donnant les flux les plus faibles, il est évident que le bateau devrait se situer à une distance encore plus importante de l'avion pour que les autres catégories puissent être testées. Ne pouvant aller plus loin vis-à-vis des flux proposés dans [Dalsøren et al. \(2009\)](#), la continuité de l'exercice consiste à estimer quel devrait être le flux pour qu'un bateau situé au niveau du RP6 puisse avoir impacté nos mesures. Les premiers résultats obtenus donnent un flux de NO₂ à 0,7 kT/an et un flux de SO₂ à 1,53 kT/an. Les simulations de ces deux espèces pour ces nouveaux flux sont données en figure 4.29 B et C.

Ces flux paraissent bien faibles au vu de ceux donnés dans [Dalsøren et al. \(2009\)](#). Cependant, différents éléments sont à prendre en compte afin d'expliquer un tel écart. En effet, les simulations de NO₂ et SO₂ s'appuient sur celle de CO. Or, il est possible que d'autres ajustements soient apportés pour améliorer la simulation du CO, notamment concernant la distance à l'avion ou la hauteur d'injection des particules. De plus, dans la catégorie des cargos existe encore un total de 11 sous-catégories de bateaux classés selon leur utilité et disponibles dans [Dalsøren et al. \(2009\)](#). Avec FLEXPART, trois sous-catégories, considérées comme les plus pertinentes pour la région, sur les 11, ont été testées. Par conséquent, sans connaître le type de bateau, les simulations des trois espèces étudiées nécessiteraient de tester différentes hauteurs d'injection ainsi que différentes distances au bateau, le tout pour les 11 catégories fournies. Ce travail est aussi basé sur l'hypothèse que le bateau serait de la catégorie des cargos d'après Marine Traffic. Or, pour aller au bout de l'étude, la même étude devrait être effectuée pour les bateaux ne faisant pas partie de cette catégorie. Ainsi, le résultat des simulations dépend de la combinaison entre trois facteurs (hauteur d'injection, distance avion-bateau, type de

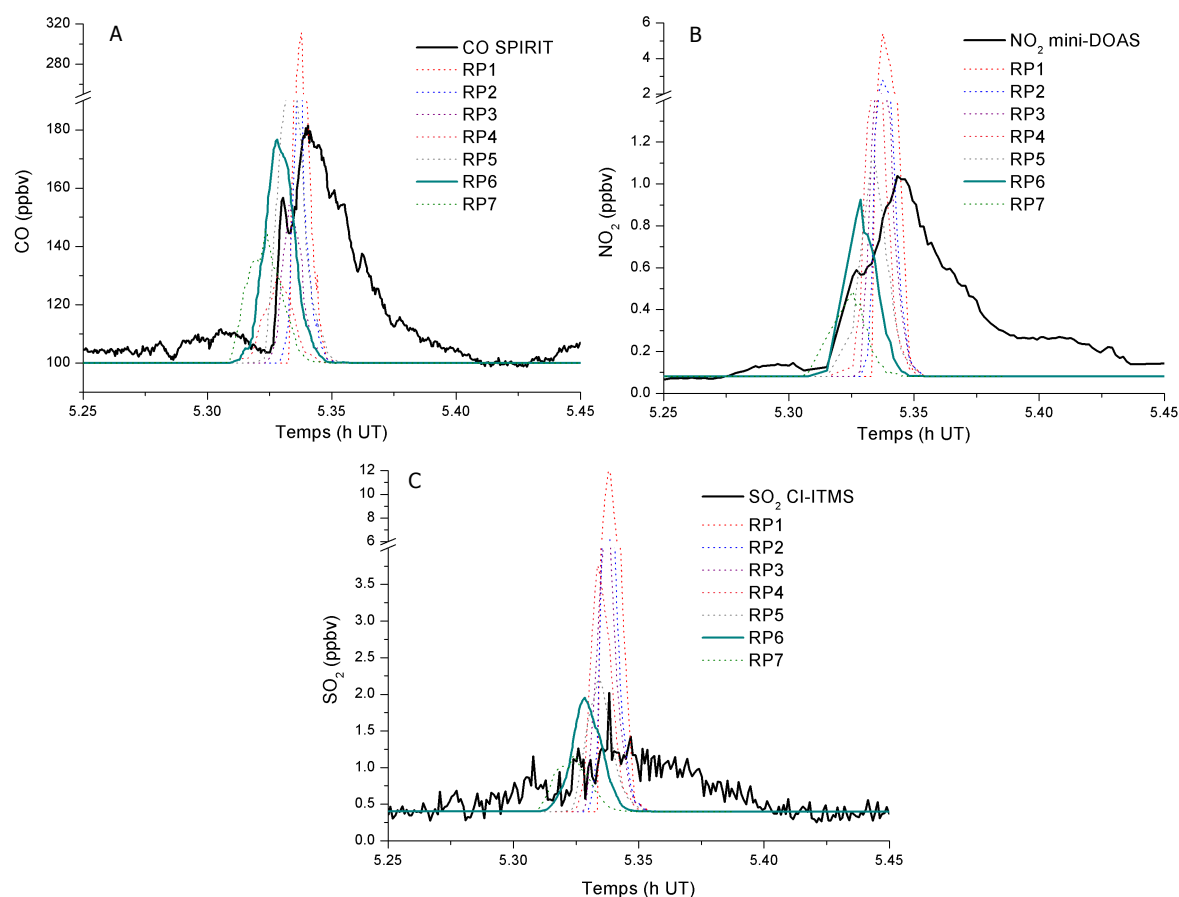


Figure 4.29 — Comparaison des mesures de (A) CO avec SPIRIT, (B) NO₂ avec le mini-DOAS et (C) SO₂ avec le CI-ITMS avec les simulations FLEXPART pour un flux de CO de 42 kT/an, 0,7 kT/an pour NO₂ (flux réajusté) et 1,53 kT/an pour SO₂ (flux réajusté) et pour les 7 points de relargage des particules (RP).

bateau). La combinaison montrée dans cette partie fonctionne donc pour CO mais d'autres combinaisons seraient envisageables pour SO₂ et NO₂. Finalement, cet important travail n'a pas pu être achevé durant cette thèse mais une ébauche des premiers résultats est présentée ici.

Cette étude reste limitée du fait que la campagne n'était pas ciblée pour un tel travail et se base donc sur trop d'hypothèses. Elle permet néanmoins de confirmer une pollution par un bateau bien que des incertitudes existent sur la hauteur d'injection, la distance avion-bateau et les flux d'émission. D'autres vols de la campagne SHIVA présentent des pics laissant aussi penser à une pollution par bateau mais qui ne seront malheureusement pas étudiés plus en détail à cause de ces mêmes limitations. Une idée permettant d'exploiter au maximum les données d'une campagne non ciblée serait de calculer les rapports d'émission de secteur spécifique (comme le secteur maritime). Un rapport d'émission permet de comparer l'émission d'une espèce d'intérêt X à une espèce de référence Y, CO et CO₂ étant couramment utilisés (Andreae and Merlet, 2001). Pour cela, ces rapports sont obtenus en divisant la concentration en excès de X par la concentration en excès de Y, l'excès étant la différence entre la valeur

mesurée dans le panache et la valeur ambiante. Ces rapports d'émission auraient été obtenus au préalable à partir des mesures d'une campagne ciblée. La comparaison des rapports d'émission permettrait alors d'aider à la discrimination des pics des campagnes non ciblées.

4.2.4 Observation au cœur d'un panache de pollution de feux de biomasse

L'étude préliminaire menée dans le cadre du projet DACCIWA montre l'importance du transport à longue distance de feux de biomasse de large ampleur sur la qualité de l'air au niveau régional. L'étude qui suit a pour but de montrer l'observation d'un feu de biomasse dit « local ».

Nous avons vu en section 4.2.2.2 que le plus grand nombre de feux détectés durant la campagne SHIVA était dans la région du Mékong et au nord de l'Australie. Durant plusieurs vols, des pics de CO ont pu être mesurés laissant penser à une pollution par des feux de biomasse. L'identification de ces feux influençant les mesures de la campagne est possible en utilisant une combinaison entre les observations et les simulations du modèle FLEXPART. De plus, des simulations de rétro-trajectoires par FLEXPART ont été effectuées afin de déterminer les régions d'origine des masses d'air le long de la trajectoire des vols et de calculer les contributions de SO₂, CO et NO₂ (voir niflheim.nilu.no/SabinePY/SHIVA_post.py). Ces simulations, fournies par le Norwegian Institute for Air Research au cours du projet SHIVA, utilisent les champs de vent du centre européen ECMWF avec une résolution de 1°×1°. Nous utilisons, pour la suite, uniquement les simulations pour les feux de biomasse. Les émissions de CO par les feux de biomasse ont été obtenues en combinant différents paramètres (Stohl et al., 2007). Tout d'abord, les points chauds des mesures de MODIS sont localisés et les émissions sont calculées en supposant une aire brûlée de 180 ha par détection de feu. Le calcul des émissions dépend ensuite d'une paramétrisation basée sur la biomasse disponible, la fraction de biomasse réellement brûlée, les facteurs d'émissions et le type de végétation. La résolution de la grille de sortie FLEXPART pour le domaine global est de 1°×1° et de 0,5°×0,5° pour la grille imbriquée centrée sur la zone d'intérêt. Le tableau 4.8 regroupe, pour tous les vols de la campagne, les mesures du CO par l'instrument SPIRIT et le calcul de la contribution du CO par les feux de biomasse calculée avec FLEXPART (voir section 4.2.2.1). Pour chaque vol, l'origine des feux et l'âge des émissions sont également donnés.

Le tableau 4.8 montre que, pendant toute la campagne, les feux d'Australie ont contribué à hauteur de 3-10 ppbv de CO pour les vols du 26 novembre et du 11 décembre et à hauteur de 25 ppbv de CO pour le vol du 19 novembre (vol a). Les feux du Vietnam ont contribué à hauteur de 2 ppbv au CO total mesuré. La contribution la plus forte est due aux feux locaux de l'île de Bornéo.

Le feu situé près de Miri (nord de l'île de Bornéo, 4°S, 114°E) qui a débuté le 21 novembre a affecté plusieurs vols (21, 22, 23 novembre et 7 et 9 décembre a et b) avec une contribution de CO allant de 12 à 140 ppbv, d'après les simulations FLEXPART. La figure 4.30 montre deux photos prises à travers le hublot du Falcon durant l'atterrissage le 21 novembre et le 7

Date	Origine	Age des émissions	Contribution des feux au CO (FLEXPART)	Vmr CO (SPIRIT)
16/11	Nord de Bornéo	7 jours	10-14 ppbv	84 ppbv
19/11 a	Nord de Bornéo Nord de l'Australie	<10 jours	19-25 ppbv	88-95 ppbv
19/11 b	Nord de Bornéo, Philippines	1-8 jours	>2 ppbv	70-100 ppbv
21/11	Nord de Bornéo	0-3 jours	35 ppbv	198-1970 ppbv
22/11	Nord de Bornéo	0-3 jours	12-95 ppbv	93-148 ppbv
23/11	Nord de Bornéo	0-1 jours	70 ppbv	107 ppbv
26/11 a	Nord de l'Australie Celebes (Indonésie)	<6 jours	>6 ppbv	82 ppbv
26/11 b	Nord de l'Australie Celebes (Indonésie)	<6 jours	>6 ppbv	85 ppbv
02/12	Bornéo, Indonésie	<5 jours	>2 ppbv	75 ppbv
07/12 a	Nord de Bornéo	0-1 jour	140 ppbv	205 ppbv
07/12 b	Nord de Bornéo	0-3 jours	22-43 ppbv	134-220 ppbv
08/12	—	<3 jours	>2 ppbv	145 ppbv
09/12 a	Nord de Bornéo Viêt Nam, Chine	2-3 jours <8 jours	5-16 ppbv >2 ppbv	130 ppbv
09/12 b	Nord de Bornéo Viêt Nam, Chine	2-3 jours <8 jours	5-16 ppbv >2 ppbv	130 ppbv
11/12 a	Nord de l'Australie	<8 jours	3-10 ppbv	104-155 ppbv
11/12 b	Nord de l'Australie	<8 jours	3-10 ppbv	104-155 ppbv

Tableau 4.8 — Liste des vols avec la contribution des émissions de feux et leur origine, déduites par FLEXPART, à comparer aux pics de mesures de CO par SPIRIT.

décembre. Les photos laissent à penser que le feu près de Miri affectant les mesures est dû à la déforestation ou à des pratiques agricoles. En effet, en reliant ces photos avec la figure 4.21, il apparaît que ce feu se situe proche d'une zone de plantations de palmiers à huile, bien que des forêts équatoriales se situent aussi à proximité.

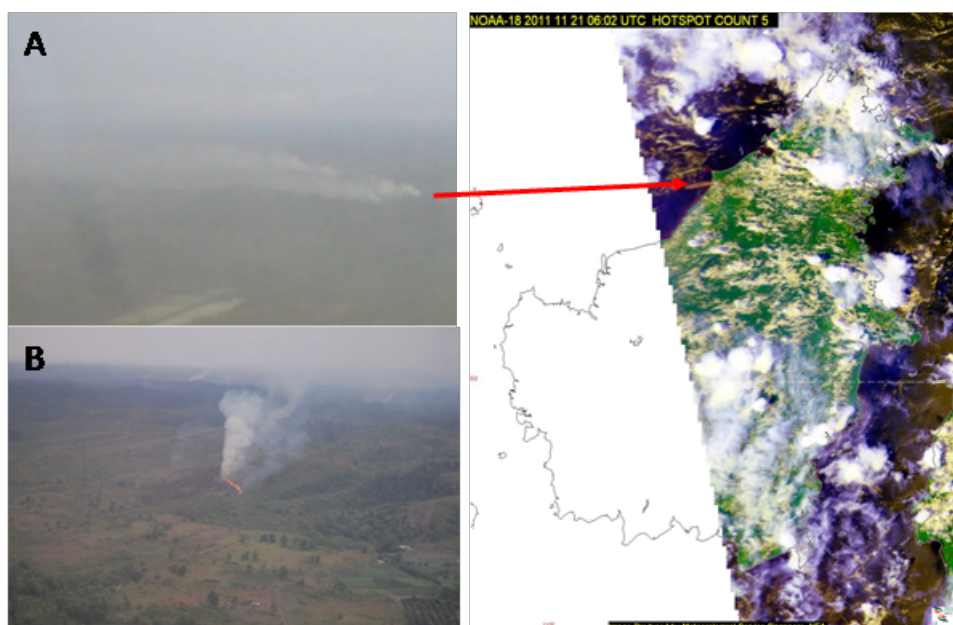


Figure 4.30 — Photo du feu du 21 novembre 2011 (A) et du 7 décembre (B) à travers le hublot du Falcon et point chaud du satellite de la NOAA détecté le 21 novembre.

Au niveau des résultats de la campagne aéroportée, ce feu a affecté les mesures de plusieurs décollages et atterrissages de l'avion tels que les vols des 21, 22 et 23 novembre et les 7 et 9 décembre 2011. Au niveau du 21 novembre 2011, des concentrations particulièrement élevées de CO, CH₄ et O₃ (figure 4.31) ont été mesurées correspondant à un sondage direct du panache du feu de Miri. Il n'a pas été possible d'avoir des mesures de NO₂ et de HCHO ce jour-là du fait d'une panne de l'instrument. Les mesures de SO₂ ne présentent aucun pic. Les mesures de CO montrent 3 zones d'augmentation de CO. Le 1^{er} pic et le 3^{ème} pic, se situant respectivement entre 10,13h UTC et 10,22h UTC et entre 10,27h UTC et 10,32h UTC, montrent des augmentations de CO entre 100 ppbv et 200 ppbv par rapport à la valeur de fond de 90 ppbv. Le 2^{ème} pic, entre 10,23h UTC et 10,27h UTC, montre des augmentations beaucoup plus spectaculaire de CO allant jusqu'à 1,9 ppmv par rapport à la valeur de fond. Comme le montre la figure 4.31, tous les pics de CO sont directement corrélés avec des augmentations de la valeur de fond de l'ozone. Ces résultats montrent la production d'ozone au sein du panache du feu de biomasse. Ainsi, pour un panache proche de la source, donc datant de moins de 1h, le ratio $\Delta O_3 / \Delta CO$ varie entre 0,07 et 0,01 selon le pic considéré. Il est démontré que ce ratio augmente avec l'âge du panache (Jaffe and Wigder, 2012) et principalement dans la première heure d'émission (Yokelson et al., 2009). Des ratios similaires ont été mesurés pour des panaches jeunes (moins de 1h) au niveau du sud du Mexique pour

des feux de déforestation et de résidus de culture (Yokelson et al., 2009).

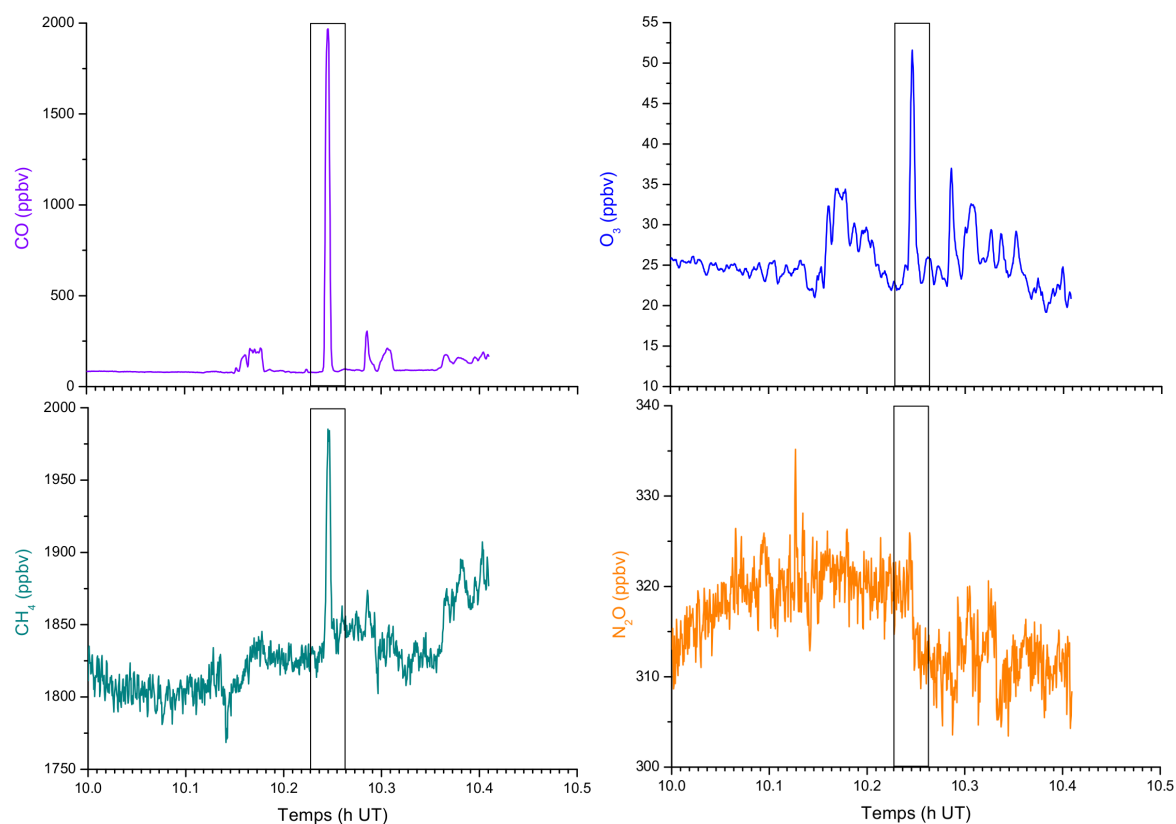


Figure 4.31 — Mesures d'O₃ par l'instrument UV-O₃ et mesures de N₂O, CO et CH₄ par l'instrument SPIRIT le 21 novembre 2011, deuxième partie du vol.

Ce feu ayant impacté beaucoup de vols, le travail concernant les rapports $\Delta O_3 / \Delta CO$ suivant l'âge du panache va être poursuivi afin de compléter la littérature existante sur ces rapports pour les feux. Ainsi, le premier travail va consister à déterminer l'âge du panache avec FLEXPART pour ensuite pouvoir calculer ce rapport.

4.3 Conclusions

En s'appuyant à la fois sur les mesures et sur la modélisation, il a été montré que les émissions par bateau peuvent être détectées par des mesures rapides en avion pour les deux zones d'étude. Bien que ces émissions restent ponctuelles, notamment au niveau du golfe de Guinée où aucune augmentation de fond des polluants due à un couloir maritime n'a été mesurée, elles sont néanmoins susceptibles d'atteindre les côtes et donc s'ajoutent aux émissions anthropiques locales. L'étude menée spécifiquement sur les plateformes pétrolières a montré que le flux d'émission de l'inventaire choisi était sous-estimé. Un flux réajusté a été nécessaire afin de minimiser l'écart entre les mesures et les simulations. Mais le flux n'est pas le seul paramètre à prendre en compte, l'estimation de la hauteur d'injection des émissions

est un paramètre tout aussi important pour déterminer la dispersion d'un panache. L'étude est limitée par le modèle, les mesures et les incertitudes sur les calculs de flux et de hauteurs d'injection et montre que plus d'informations sont nécessaires afin de limiter les incertitudes dans les inventaires et ainsi mieux quantifier l'impact des émissions des plateformes. Enfin, chacune de ces deux campagnes s'est vue impactée par des émissions dues à des feux de biomasse. Pour le cas de l'Afrique de l'Ouest, six vols ont permis de mesurer des augmentations de polluants dans la troposphère libre. Les simulations de rétro-trajectoires ont mis en évidence le transport des émissions de feux de biomasse d'Afrique centrale jusqu'aux pays du golfe. Tandis que pour la Malaisie, la plupart des vols impactés l'ont été par des feux locaux. L'ensemble de ces résultats confirme la diversité des émissions de ces pays émergents. Enfin, il est évident que l'étude de la qualité de l'air dans ces zones ne se limite pas à l'étude des émissions locales mais doit aussi prendre en compte l'apport des émissions plus lointaines par le transport.

Les travaux préliminaires présentés dans ce chapitre vont être poursuivis et feront l'objet de futures publications. Des mesures de rapports d'émission en fonction du type de combustion sont nécessaires afin de construire les inventaires régionaux bottom-up permettant d'estimer l'impact des émissions anthropiques sur le climat et la santé. L'approche bottom-up consiste à intégrer des mesures d'émission locales dans un modèle pour les extrapoler à l'échelle globale. Un rapport d'émission permet de comparer l'émission d'une espèce d'intérêt à une espèce de référence, CO dans notre cas. Ainsi, la caractérisation des sources telles que les feux de biomasse, le trafic maritime ou le processus de torchage des plateformes permettra d'enrichir les bases de données des rapports d'émission. De même, pour les feux mesurés lors des deux campagnes, la détermination de l'âge des panaches va permettre d'enrichir la littérature sur le rapport $\Delta\text{O}_3/\Delta\text{CO}$. Au niveau de la modélisation, certaines améliorations peuvent être apportées. Pour les feux, l'utilisation de la hauteur d'injection fournie par GFAS pourrait être couplée aux sorties de FLEXPART afin d'estimer une hauteur en chaque point de grille et éviter ainsi une surestimation des émissions. Pour le torchage, l'utilisation du modèle FLEXPART-WRF pourrait permettre une meilleure représentation des conditions de la couche limite et ainsi améliorer la simulation des pics.

**
*

Conclusion et perspectives

Conclusion générale

Ce travail de thèse a été consacré à la caractérisation des sources de pollution gazeuse dans le bassin méditerranéen, au large de l'Afrique de l'Ouest et en mer de Chine du sud en se basant sur des mesures en avion et sur la modélisation. La majeure partie des mesures utilisées est basée sur un instrument commun aux trois campagnes, le spectromètre infrarouge SPIRIT. L'instrument a été développé au LPC2E pour mesurer les gaz à effet de serre et polluants se trouvant à l'état de traces dans l'atmosphère. Le premier déploiement du SPIRIT a eu lieu lors de la campagne SHIVA en 2011 et a permis la mesure de CO, CO₂, CH₄ et N₂O. Il a de nouveau été utilisé lors de la campagne GLAM en 2014 pour mesurer les mêmes espèces. Sa dernière utilisation en campagne de terrain s'est déroulée lors de DACCIWA. Il a permis la mesure de CO, NO₂, CH₄ et N₂O. Le traitement des données de la campagne GLAM a mis en évidence la nécessité de changer de laser pour CH₄ et N₂O afin d'obtenir des absorptions plus fortes. La mesure de NO₂ a été privilégiée sur celle de CO₂ durant DACCIWA. En effet, NO₂ est une espèce intéressante à mesurer lorsque l'on sait que les vols sont planifiés pour mesurer des émissions de bateaux et plateformes pétrolières. De plus, un instrument PICARRO à bord de l'avion devait mesurer CO₂. Il était donc intéressant de diversifier les mesures. Malheureusement, le PICARRO n'a pas été en état de fonctionner durant toute la campagne et aucune mesure de CO₂ n'est donc disponible.

Ce travail de thèse a été également l'occasion de mettre en place le modèle de transport lagrangien FLEXPART (FLEXible PARTicle) au LPC2E et de tester son intérêt pour l'interprétation des mesures en avion. Des simulations ont ainsi permis d'analyser le transport des masses d'air et de déterminer leur origine géographique afin de caractériser les sources de pollution. Nous avons commencé par utiliser ce modèle en nous appuyant sur les données météorologiques du centre européen de prévisions à moyen terme ECMWF. Il est aussi couplé avec des inventaires d'émission afin de simuler la contribution d'un type d'émission (feux de biomasse, anthropique) d'une espèce aux mesures. Au fil des campagnes, FLEXPART a montré sa capacité à reproduire des événements spécifiques.

La région méditerranéenne constitue une sorte de laboratoire naturel en étant soumise à différentes sortes de pollution naturelle et anthropique et en étant à la transition de différents climats. Il s'agit donc d'une région vulnérable aux changements climatiques, propice aux études sur la caractérisation des sources gazeuses. Durant la campagne GLAM, deux vols ont été particulièrement impactés par des augmentations des polluants CO et O₃ corrélés à une augmentation du nombre de particules et une diminution de l'humidité relative dans la moyenne et haute troposphère. Les simulations à l'aide de FLEXPART ont été nécessaires pour retracer l'origine de cette pollution et calculer la contribution aux CO et BC des feux de biomasse. L'origine des masses d'air polluées a été attribuée, dans un cas au continent nord-américain, et dans l'autre cas à la Sibérie avec transport et nouvel apport en polluants au niveau du Canada. Après ajustement de paramètres propres au modèle ou aux inventaires d'émission, il a été montré que la pollution mesurée dans le bassin méditerranéen (BM) était due à des émissions de feux de biomasse au niveau des régions sources. Le transport transatlantique d'émission de feux depuis le continent nord-américain vers le BM avait été évoqué dans des études précédentes, impactant aussi la troposphère ailleurs en Europe. Ces études montrent des panaches mesurés depuis la basse jusqu'à la haute troposphère, où l'on situe le pic de notre étude de cas mesuré à 9,7 km. Cela montre que le transport d'émission depuis le continent nord-américain peut affecter différents niveaux de la troposphère au-dessus du BM. Le transport depuis la Sibérie vers le BM en passant par le Canada est moins documenté. Une fois encore, le transport intercontinental, long de 12 jours, incluant du transport transpacifique puis transatlantique avec rechargement en émission de feux de la masse d'air au-dessus du Canada, est à l'origine d'une augmentation des concentrations sur le BM. Ce résultat montre jusqu'à quel point l'atmosphère du BM peut être affectée par le transport à longue distance de polluants. Ces feux étant récurrents en été à la fois en Sibérie et au niveau du nord de l'Amérique, il serait intéressant, dans le futur, de quantifier la fréquence d'occurrence de ces événements et d'étudier avec un modèle de chimie transport l'impact de ces feux sur les concentrations d'ozone du BM.

Le dernier chapitre présente les premiers résultats des campagnes SHIVA et APSOWA. La campagne DACCWA, initialement prévue en 2015, a été décalée à 2016 pour des raisons de sécurité sanitaire du fait du virus Ebola qui a sévi en Afrique, repoussant d'autant le début de l'étude. Les mesures de la campagne SHIVA ont donc été étudiées pour préparer APSOWA et prendre en main les outils qui allaient être nécessaires pour l'étude des mesures de APSOWA (prise en main du SPIRIT, prise en main de FLEXPART, aperçu des inventaires à disposition pour l'étude, amélioration du rendu des sorties FLEXPART, ...). Les mesures de la campagne SHIVA se sont avérées intéressantes puisqu'elles présentaient des pics bien marqués de pollution. Bien que la campagne n'était pas dédiée initialement à l'étude des émissions anthropiques de la Malaisie et que les vols du Falcon n'étaient donc pas ciblés, rendant le travail plus difficile, les mesures ont tout de même permis de mettre en évidence

des sources d'émission. La campagne SHIVA s'est donc révélée être une bonne préparation à APSOWA du fait des méthodes employées et résultats similaires. Tout cela explique aussi que ces deux études, toujours en cours, ne sont pas encore complètement abouties et feront l'objet de deux publications pour 2018 : une sur les émissions par les plateformes pétrolières au large des côtes des pays du golfe de Guinée et l'autre sur l'impact des émissions de feux dues à des pratiques agricoles sur des zones de plantation de palmiers à huile. Plus de détails sur la poursuite de l'étude de ces deux campagnes sont donnés dans les perspectives.

Dans ce chapitre 4, deux zones différentes sont étudiées, l'Afrique de l'Ouest et la Malaisie mais des similitudes permettent de les rapprocher. En effet, ces régions se trouvent toutes deux aux latitudes équatoriales, elles possèdent un mélange de sources d'émission aussi bien naturelles (par exemple les émissions océaniques et biogéniques, les feux de végétation) qu'anthropiques (villes, trafics routier et maritime, plateforme pétrolière, etc.) et sont toutes deux des régions émergentes. Plusieurs sources de pollution ont pu être caractérisées pour les deux campagnes. Tout d'abord, le trafic maritime. La densité du trafic maritime en mer de Chine du sud est connue pour être importante (Streets et al., 1997). Lors de la campagne SHIVA, un pic de pollution mesuré par les instruments à bord de l'avion laissait penser à des émissions par un bateau. Après avoir éliminé d'éventuelles autres sources de pollution, ce pic a pu être simulé avec le modèle FLEXPART après plusieurs tests d'ajustement du flux d'émission et de la distance avion-bateau. Cette étude a permis de montrer que, pour des campagnes non ciblées, le travail pour remonter à la source d'émission est difficile et nécessite de faire beaucoup d'hypothèses. Des campagnes de mesures ciblées sont donc nécessaires pour définir les rapports d'émission (i.e. la variation de la concentration d'une espèce par rapport à une espèce de référence, ici CO), notamment du trafic maritime, qui pourront ensuite être calculés et comparés aux mesures des campagnes non ciblées. En Afrique de l'Ouest, des vols ont été planifiés afin de mesurer les émissions par les bateaux. Cette planification s'appuyait sur les émissions des inventaires qui suggèrent la présence d'un couloir maritime le long de la côte autour de 4°N. Un résultat de la campagne a été de montrer que ce couloir ne semble pas être aussi important que les inventaires l'indiquent. En effet, les mesures des vols dédiés montrent quelques pics ponctuels probablement dus aux émissions d'un bateau mais aucune augmentation de fond des différentes espèces n'a été mesurée proche de ce couloir. Cependant, beaucoup de bateaux sont visibles depuis la plage, au Togo. Leur présence si proche de la ville signale clairement que les émissions par les bateaux restent néanmoins une source d'émission pouvant impacter localement la qualité de l'air. Les plateformes pétrolières émettent aussi des polluants, lors du processus de torchage, dans l'atmosphère. L'étude menée sur la plateforme FPSO, au large du Ghana, a montré que la simulation d'un panache de plateforme nécessite de connaître la hauteur d'injection des émissions et le flux des émissions. Différentes méthodes ont été testées afin de réduire au minimum l'écart entre les mesures et les simulations. Il en résulte que le flux de l'inventaire utilisé (Deetz and Vogel, 2017) sous-estime les émissions et que l'écart diminue pour la hauteur d'injection la plus élevée, calculée selon les paramètres météorologiques. De nombreuses incertitudes sont à prendre en compte dans les

calculs et l'inventaire, et l'étude est limitée à la fois par la reproduction de la couche limite par le modèle et par les mesures effectuées trop loin et trop haut de la plateforme FPSO. Une poursuite du travail est donc nécessaire afin de réduire les incertitudes liées à l'étude et pouvoir mieux quantifier l'impact de ces émissions.

Enfin, aussi bien en Malaisie qu'en Afrique de l'Ouest, plusieurs vols ayant eu lieu dans la troposphère libre ont été impactés par des émissions de feux. En Afrique, cette couche de pollution due aux feux de biomasse avait déjà été détectée (Savauge et al., 2005). Les simulations à l'aide de FLEXPART ont permis de confirmer que cette couche mesurée entre 2 et 4,5 km d'altitude était due aux émissions des feux d'Afrique centrale, phénomène bien connu à cette époque de l'année, qui sont ensuite transportées jusqu'au golfe de Guinée. Pour les pays du golfe, cette couche de pollution venant des feux d'Afrique centrale n'est pas une nouveauté, mais cette étude montre qu'il est nécessaire de prendre en compte le transport de ces émissions afin de comprendre la pollution atmosphérique locale dans les zones urbaines du golfe. En Malaisie, les simulations FLEXPART ont montré que la contribution la plus forte peut provenir des feux locaux sur l'île de Bornéo, dont un feu important mesuré dans une zone de plantation de palmiers à huile. Bien que locales dans le cas de la campagne SHIVA, les émissions de feux peuvent être transportées et affecter d'autres régions et la dégradation de la qualité de l'air au niveau régional reste peu quantifiée.

L'apport des mesures in situ d'une campagne aéroportée est donc important. L'objectif final de DACCIWA ne se limite pas à utiliser les résultats uniquement dans la communauté scientifique mais bien à diffuser et communiquer ces résultats de façon ciblée. Une évaluation scientifique complète de la région permettra d'orienter la planification et l'élaboration de politiques durables pour l'Afrique de l'Ouest et pour d'autres régions concernées par les mêmes enjeux (Knippertz et al., 2015a). Plus globalement, les résultats de ces campagnes dans des zones choisies en fonction de leur spécificité (mousson, présence de plateformes pétrolières, feux de végétation, ...) sont applicables à d'autres régions présentant les mêmes caractéristiques (autres régions impactées par la mousson par exemple). L'étude des processus d'interactions physiques et chimiques induits par une grande diversité de sources d'émission naturelles et anthropiques va permettre d'améliorer les prévisions des modèles climatiques.

Perspectives

Une grande partie des mesures présentées dans ce manuscrit provient de l'instrument SPIRIT. SPIRIT a déjà été déployé avec succès dans différentes campagnes aéroportées. Grâce à l'utilisation d'une cellule optique multi-passage, il s'agit d'un instrument robuste et polyvalent. En fonction des objectifs scientifiques, les lasers sont facilement modifiables selon les espèces à mesurer. Cependant, des améliorations sont possibles pour augmenter la qualité des mesures. Pour des espèces très réactives ou collantes, il faudrait réduire le temps de résidence dans la cellule et les tuyaux de passage du gaz. Pour cela, l'orifice de la soupape de régulation de pression pourrait être augmenté afin que le gaz circule plus rapidement.

Le temps de résidence du gaz dans l'instrument serait donc réduit sans pour autant réduire la qualité de la régulation de pression (toujours aussi stable et précisément mesurée). Un autre aspect est d'améliorer la compatibilité des matériaux en contact avec les gaz. Certains traitements de surface comme les revêtements en silicone amorphe semblent être en mesure d'assurer une inertie chimique et de réduire considérablement l'adsorption. Chauffer les tuyaux de passage du gaz pourrait aussi être une solution du fait que l'adsorption est hautement dépendante de la température des parois. Une dernière amélioration consisterait à thermostatier le SPIRIT, c'est-à-dire réguler en température la cellule de mesure, voire tout le banc optique. Bien que cela n'améliorerait pas la limite de détection, cela devrait néanmoins considérablement améliorer la précision à long terme et donc permettrait d'étudier des phénomènes ayant une faible variabilité spatiale et temporelle. En particulier, cela permettrait d'exploiter les faibles variations relatives de concentrations, devant la concentration de fond élevée, de CH_4 et N_2O , difficiles à cerner en l'état actuel de l'instrument.

Le chapitre 4 de ce manuscrit ne présente pas des études complètement abouties du fait du report d'un an de la campagne aéroportée DACCIWA. Cependant, le travail ne s'arrête pas là et la poursuite de l'étude fera l'objet d'une publication en 2018. L'objectif de cette publication est d'accentuer le travail sur les émissions par le torchage des plateformes pétrolières. La première étape consistera à utiliser des champs de vent du modèle WRF plutôt que ECMWF afin d'avoir plus de niveaux d'altitude dans la couche limite. La trajectoire de l'avion autour de la plateforme montre que le panache a été traversé plusieurs fois. Mais sur les mesures, chaque intersection panache-trajectoire n'est pas à l'origine d'un pic selon les variations d'altitude de l'avion. L'objectif est de tester le modèle FLEXPART-WRF afin que sa dynamique puisse reproduire les pics uniquement sur les transects voulus. Une meilleure connaissance de la combustion de ces processus de torchage permettra aussi d'aller plus loin dans l'étude des pics mesurés. Dans un deuxième temps, une étude similaire à celle de la plateforme sera appliquée à une raffinerie se trouvant au Ghana. Une estimation du flux d'émission sera calculée en partant des mesures. Ce flux servira ensuite comme donnée d'entrée au modèle afin de pouvoir simuler le panache de la raffinerie.

Une publication dédiée à l'étude des feux en Malaisie est aussi prévue sur la campagne SHIVA en 2018. Grâce aux mesures effectuées, il est possible de calculer le rapport d'émission d'un panache récent de feux tropicaux et de le comparer avec ceux disponibles dans la littérature. Les mesures ont montré que le feu localisé près de Miri (Bornéo) avait impacté localement plusieurs décollages et atterrissages de l'avion mais aussi certains vols beaucoup plus loin de la ville de Miri. Ainsi, une deuxième partie de l'article consistera en la détermination de l'âge du panache grâce à FLEXPART. Puis, grâce à l'utilisation d'un modèle régional de chimie-transport, la chimie au sein du panache sera étudiée et validée dans le modèle grâce à la comparaison mesures/simulations.

Bibliographie

- Alföldy, B., Lööv, J. B., Lagler, F., Mellqvist, J., Berg, N., Beecken, J., Weststrate, H., Duyzer, J., Bencs, L., Horemans, B., Cavalli, F., Putaud, J.-P., Janssens-Maenhout, G., Csordás, A. P., Van Grieken, R., Borowiak, A., and Hjorth, J. (2013). Measurements of air pollution emission factors for marine transportation in SECA. *Atmos. Meas. Tech.*, 6(7) :1777–1791.
- Alpert, P., Baldi, M., Ilani, R., Krichak, S., Price, C., Rodó, X., Saaroni, H., Ziv, B., Kishcha, P., Barkan, J., Mariotti, A., and Xoplaki, E. (2006). Chapter 2 Relations between climate variability in the Mediterranean region and the tropics : ENSO, South Asian and African monsoons, hurricanes and Saharan dust. *Developments in Earth and Environmental Sciences*, 4 :149–177.
- Ancellet, G., Pelon, J., Totems, J., Chazette, P., Bazureau, A., Sicard, M., Di Iorio, T., Dulac, F., and Mallet, M. (2016). Long-range transport and mixing of aerosol sources during the 2013 North American biomass burning episode : analysis of multiple lidar observations in the western Mediterranean basin. *Atmos. Chem. Phys.*, 16(7) :4725–4742.
- Andreae, M. O., Anderson, B. E., Blake, D. R., Bradshaw, J. D., Collins, J. E., Gregory, G. L., Sachse, G. W., and Shipham, M. C. (1994). Influence of plumes from biomass burning on atmospheric chemistry over the equatorial and tropical South Atlantic during CITE 3. *J. Geophys. Res.*, 99(D6) :12793–12808.
- Andreae, M. O. and Merlet, P. (2001). Emission of trace gases and aerosols from biomass burning. *Global Biogeochem. Cycles*, 15(4) :955–966.
- Anejionu, O. C. D., Blackburn, G. A., and Whyatt, J. D. (2014). Satellite survey of gas flares : development and application of a Landsat-based technique in the Niger Delta. *International Journal of Remote Sensing*, 35(5) :1900–1925.
- Anomohanran, O. (2012). Determination of greenhouse gas emission resulting from gas flaring activities in Nigeria. *Energy Policy*, 45 :666–670.
- Arya, S. (1988). *Introduction to Micrometeorology*. International geophysics series. Academic Press.
- Arya, S. P. (1999). *Air Pollution Meteorology and Dispersion*. Oxford University Press.

- Asuoha, A. N. and Osu Charles, I. (2015). Seasonal variation of meteorological factors on air parameters and the impact of gas flaring on air quality of some cities in Niger Delta (Ibeno and its environs). *AJEST*, 9(3) :218–227.
- Atkinson, R., Baulch, D. L., Cox, R. A., Crowley, J. N., Hampson, R. F., Hynes, R. G., Jenkin, M. E., Rossi, M. J., and Troe, J. (2004). Evaluated kinetic and photochemical data for atmospheric chemistry : Volume I - gas phase reactions of Ox, HOx, NOx and SOx species. *Atmos. Chem. Phys.*, 4(6) :1461–1738.
- Atwood, S. A., Reid, J. S., Kreidenweis, S. M., Yu, L. E., Salinas, S. V., Chew, B. N., and Balasubramanian, R. (2013). Analysis of source regions for smoke events in Singapore for the 2009 El Nino burning season. *Atmospheric Environment*, 78 :219–230.
- Bechtold, P., Bazile, E., Guichard, F., Mascart, P., and Richard, E. (2001). A mass-flux convection scheme for regional and global models. *Q.J.R. Meteorol. Soc.*, 127(573) :869–886.
- Beecken, J., Mellqvist, J., Salo, K., Ekholm, J., and Jalkanen, J.-P. (2014). Airborne emission measurements of SO₂, NO_x and particles from individual ships using a sniffer technique. *Atmos. Meas. Tech.*, 7(7) :1957–1968.
- Bergamaschi, P., Hein, R., Heimann, M., and Crutzen, P. J. (2000). Inverse modeling of the global CO cycle : 1. Inversion of CO mixing ratios. *J. Geophys. Res.*, 105(D2) :1909–1927.
- Bertschi, I. T. and Jaffe, D. A. (2005). Long-range transport of ozone, carbon monoxide, and aerosols to the NE Pacific troposphere during the summer of 2003 : Observations of smoke plumes from Asian boreal fires. *J. Geophys. Res.*, 110(D5) :D05303.
- Bertschi, I. T., Jaffe, D. A., Jaeglé, L., Price, H. U., and Dennison, J. B. (2004). PHOBEA/ITCT 2002 airborne observations of transpacific transport of ozone, CO, volatile organic compounds, and aerosols to the northeast Pacific : Impacts of Asian anthropogenic and Siberian boreal fire emissions. *J. Geophys. Res.*, 109(D23) :D23S12.
- Bey, I., Jacob, D. J., Logan, J. A., and Yantosca, R. M. (2001). Asian chemical outflow to the Pacific in spring : Origins, pathways, and budgets. *J. Geophys. Res.*, 106(D19) :23097–23113.
- Boersma, K. F., Jacob, D. J., Trainic, M., Rudich, Y., DeSmedt, I., Dirksen, R., and Eskes, H. J. (2009). Validation of urban NO₂ concentrations and their diurnal and seasonal variations observed from the SCIAMACHY and OMI sensors using in situ surface measurements in Israeli cities. *Atmos. Chem. Phys.*, 9(12) :3867–3879.
- Bond, T. C., Doherty, S. J., Fahey, D. W., Forster, P. M., Berntsen, T., DeAngelo, B. J., Flanner, M. G., Ghan, S., Kärcher, B., Koch, D., Kinne, S., Kondo, Y., Quinn, P. K., Sarofim, M. C., Schultz, M. G., Schulz, M., Venkataraman, C., Zhang, H., Zhang, S., Bellouin, N., Guttikunda, S. K., Hopke, P. K., Jacobson, M. Z., Kaiser, J. W., Klimont, Z., Lohmann, U., Schwarz, J. P., Shindell, D., Storelvmo, T., Warren, S. G., and Zender, C. S. (2013). Bounding the role of black carbon in the climate system : A scientific assessment. *J. Geophys. Res. Atmos.*, 118(11) :5380–5552.

- Bonnet, S. and Garivait, S. (2011). Seasonal variability of biomass open burning activities in the greater mekong sub-region. *Global Environmental Research*, 15(1) :31–37.
- Bougiatioti, A., Bezantakos, S., Stavroulas, I., Kalivitis, N., Kokkalis, P., Biskos, G., Mihailopoulos, N., Papayannis, A., and Nenes, A. (2016). Biomass-burning impact on CCN number, hygroscopicity and cloud formation during summertime in the eastern Mediterranean. *Atmos. Chem. Phys.*, 16(11) :7389–7409.
- Bouwman, A. F., Lee, D. S., Asman, W. a. H., Dentener, F. J., Van Der Hoek, K. W., and Olivier, J. G. J. (1997). A global high-resolution emission inventory for ammonia. *Global Biogeochem. Cycles*, 11(4) :561–587.
- Bowman, D. M. J. S., Balch, J. K., Artaxo, P., Bond, W. J., Carlson, J. M., Cochrane, M. A., D’Antonio, C. M., DeFries, R. S., Doyle, J. C., Harrison, S. P., Johnston, F. H., Keeley, J. E., Krawchuk, M. A., Kull, C. A., Marston, J. B., Moritz, M. A., Prentice, I. C., Roos, C. I., Scott, A. C., Swetnam, T. W., Werf, G. R. v. d., and Pyne, S. J. (2009). Fire in the Earth System. *Science*, 324(5926) :481–484.
- Briggs, G. A. (1965). A Plume Rise Model Compared with Observations. *Journal of the Air Pollution Control Association*, 15(9) :433–438.
- Brioude, J., Arnold, D., Stohl, A., Cassiani, M., Morton, D., Seibert, P., Angevine, W., Evan, S., Dingwell, A., Fast, J. D., Easter, R. C., Pisso, I., Burkhardt, J., and Wotawa, G. (2013). The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART-WRF version 3.1. *Geosci. Model Dev.*, 6(6) :1889–1904.
- Brocchi, V., Krysztofiak, G., Catoire, V., Guth, J., Marécal, V., El Amraoui, L., Dulac, F., and Ricaud, P. (2017). Intercontinental transport of biomass burning pollutants over the Mediterranean Basin during the summer 2014 ChArMEx-GLAM airborne campaign. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 2017 :1–30.
- Cammas, J.-P., Brioude, J., Chaboureaud, J.-P., Duron, J., Mari, C., Mascart, P., Nédélec, P., Smit, H., Pätz, H.-W., Volz-Thomas, A., Stohl, A., and Fromm, M. (2009). Injection in the lower stratosphere of biomass fire emissions followed by long-range transport : a MOZAIC case study. *Atmos. Chem. Phys.*, 9(15) :5829–5846.
- Cappa, C. D., Williams, E. J., Lack, D. A., Buffaloe, G. M., Coffman, D., Hayden, K. L., Herndon, S. C., Lerner, B. M., Li, S.-M., Massoli, P., McLaren, R., Nuaaman, I., Onasch, T. B., and Quinn, P. K. (2014). A case study into the measurement of ship emissions from plume intercepts of the NOAA ship Miller Freeman. *Atmos. Chem. Phys.*, 14(3) :1337–1352.
- Carpenter, L., Reimann, S., Burkholder, J., Clerbaux, C., Hall, B., Hossaini, R., Laube, J., and Yvon-Lewis, S. (2014). Ozone-Depleting Substances (ODSs) and Other Gases of Interest to the Montreal Protocol, Chapter 1. In *Scientific assessment of Ozone depletion : 2014*, Global Ozone Research and Monitoring Project – Report No. 55. World Meteorological Organization, Geneva, Switzerland.

- Catoire, V., Robert, C., Chartier, M., Jacquet, P., Guimbaud, C., and Krysztofiak, G. (2017). The SPIRIT airborne instrument : a three-channel infrared absorption spectrometer with quantum cascade lasers for in situ atmospheric trace-gas measurements. *Appl. Phys. B*, 123(9) :244.
- Clerbaux, C., Boynard, A., Clarisse, L., George, M., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Hurtmans, D., Pommier, M., Razavi, A., Turquety, S., Wespes, C., and Coheur, P.-F. (2009). Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared IASI/MetOp sounder. *Atmos. Chem. Phys.*, 9(16) :6041–6054.
- Colarco, P. R., Schoeberl, M. R., Doddridge, B. G., Marufu, L. T., Torres, O., and Welton, E. J. (2004). Transport of smoke from Canadian forest fires to the surface near Washington, D.C. : Injection height, entrainment, and optical properties. *J. Geophys. Res.*, 109(D6) :D06203.
- Corbett, J. J. and Fischbeck, P. (1997). Emissions from Ships. *Science*, 278(5339) :823–824.
- Corbett, J. J., Fischbeck, P. S., and Pandis, S. N. (1999). Global nitrogen and sulfur inventories for oceangoing ships. *J. Geophys. Res.*, 104(D3) :3457–3470.
- Corbett, J. J. and Koehler, H. W. (2003). Updated emissions from ocean shipping. *J. Geophys. Res.*, 108(D20) :4650.
- Courtier, P., Freydlér, C., Geleyn, J.-F., Rabier, F., and Rochas, M. (1991). The ARPEGE project at METEO-FRANCE. In *Proc ECMWF Workshop. Numerical methods in atmospheric modelling*, volume 2, pages 193–231, ECMWF, Shinfield Park, Reading, UK.
- Cristofanelli, P., Fierli, F., Marinoni, A., Calzolari, F., Duchi, R., Burkhardt, J., Stohl, A., Maione, M., Arduini, J., and Bonasoni, P. (2013). Influence of biomass burning and anthropogenic emissions on ozone, carbon monoxide and black carbon at the Mt. Cimone GAW-WMO global station (Italy, 2165 m a.s.l.). *Atmos. Chem. Phys.*, 13(1) :15–30.
- Crutzen, P. J. and Andreae, M. O. (1990). Biomass Burning in the Tropics : Impact on Atmospheric Chemistry and Biogeochemical Cycles. *Science*, 250(4988) :1669–1678.
- Dahlkötter, F., Gysel, M., Sauer, D., Minikin, A., Baumann, R., Seifert, P., Ansmann, A., Fromm, M., Voigt, C., and Weinzierl, B. (2014). The Pagami Creek smoke plume after long-range transport to the upper troposphere over Europe – aerosol properties and black carbon mixing state. *Atmos. Chem. Phys.*, 14(12) :6111–6137.
- Dalsøren, S. B., Eide, M. S., Endresen, , Mjelde, A., Gravir, G., and Isaksen, I. S. A. (2009). Update on emissions and environmental impacts from the international fleet of ships : the contribution from major ship types and ports. *Atmos. Chem. Phys.*, 9(6) :2171–2194.
- Damoah, R., Spichtinger, N., Forster, C., James, P., Mattis, I., Wandinger, U., Beirle, S., Wagner, T., and Stohl, A. (2004). Around the world in 17 days - hemispheric-scale transport of forest fire smoke from Russia in May 2003. *Atmos. Chem. Phys.*, 4(5) :1311–1321.

- Damoah, R., Spichtinger, N., Servranckx, R., Fromm, M., Eloranta, E. W., Razenkov, I. A., James, P., Shulski, M., Forster, C., and Stohl, A. (2006). A case study of pyro-convection using transport model and remote sensing data. *Atmos. Chem. Phys.*, 6(1) :173–185.
- de Gouw, J. A., Warneke, C., Stohl, A., Wollny, A. G., Brock, C. A., Cooper, O. R., Holloway, J. S., Trainer, M., Fehsenfeld, F. C., Atlas, E. L., Donnelly, S. G., Stroud, V., and Lueb, A. (2006). Volatile organic compounds composition of merged and aged forest fire plumes from Alaska and western Canada. *J. Geophys. Res.*, 111(D10) :D10303.
- Dee, D. P., Uppala, S. M., Simmons, A. J., Berrisford, P., Poli, P., Kobayashi, S., Andrae, U., Balmaseda, M. A., Balsamo, G., Bauer, P., Bechtold, P., Beljaars, A. C. M., van de Berg, L., Bidlot, J., Bormann, N., Delsol, C., Dragani, R., Fuentes, M., Geer, A. J., Haimberger, L., Healy, S. B., Hersbach, H., Hólm, E. V., Isaksen, I., Kållberg, P., Köhler, M., Matricardi, M., McNally, A. P., Monge-Sanz, B. M., Morcrette, J.-J., Park, B.-K., Peubey, C., de Rosnay, P., Tavolato, C., Thépaut, J.-N., and Vitart, F. (2011). The ERA-Interim reanalysis : configuration and performance of the data assimilation system. *Q.J.R. Meteorol. Soc.*, 137(656) :553–597.
- Deetz, K. and Vogel, B. (2017). Development of a new gas-flaring emission dataset for southern West Africa. *Geosci. Model Dev.*, 10(4) :1607–1620.
- Delmas, R. A., Druilhet, A., Cros, B., Durand, P., Delon, C., Lacaux, J. P., Brustet, J. M., Serça, D., Affre, C., Guenther, A., Greenberg, J., Baugh, W., Harley, P., Klinger, L., Ginoux, P., Brasseur, G., Zimmerman, P. R., Grégoire, J. M., Janodet, E., Tournier, A., Perros, P., Marion, T., Gaudichet, A., Cachier, H., Ruellan, S., Masclet, P., Cautenet, S., Poulet, D., Biona, C. B., Nganga, D., Tathy, J. P., Minga, A., Loemba-Ndembi, J., and Ceccato, P. (1999). Experiment for Regional Sources and Sinks of Oxidants (EXPRESSO) : An overview. *J. Geophys. Res.*, 104(D23) :30609–30624.
- Di Biagio, C., Doppler, L., Gaimoz, C., Grand, N., Ancellet, G., Raut, J.-C., Beekmann, M., Borbon, A., Sartelet, K., Attié, J.-L., Ravetta, F., and Formenti, P. (2015). Continental pollution in the western Mediterranean basin : vertical profiles of aerosol and trace gases measured over the sea during TRAQA 2012 and SAFMED 2013. *Atmos. Chem. Phys.*, 15(16) :9611–9630.
- 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 SO₂ from 1980 to 2010 for hindcast model experiments. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 2012 :24895–24954.
- Doche, C., Dufour, G., Foret, G., Eremenko, M., Cuesta, J., Beekmann, M., and Kalabokas, P. (2014). Summertime tropospheric-ozone variability over the Mediterranean basin observed with IASI. *Atmos. Chem. Phys.*, 14(19) :10589–10600.
- Duncan, B. N., Martin, R. V., Staudt, A. C., Yevich, R., and Logan, J. A. (2003). Inter-annual and seasonal variability of biomass burning emissions constrained by satellite observations. *J. Geophys. Res.*, 108(D2) :4100.

- Duncan, B. N., West, J. J., Yoshida, Y., Fiore, A. M., and Ziemke, J. R. (2008). The influence of European pollution on ozone in the Near East and northern Africa. *Atmos. Chem. Phys.*, 8(8) :2267–2283.
- EDGAR (2011). Emission Database for Global Atmospheric Research, release version 4.2. European Commission, Joint Research Centre (JRC)/Netherlands Environmental Assessment Agency (PBL).
- 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. *J. Geophys. Res.*, 108(D8) :4237.
- Elguindi, N., Clark, H., Ordóñez, C., Thouret, V., Flemming, J., Stein, O., Huijnen, V., Moinat, P., Inness, A., Peuch, V.-H., Stohl, A., Turquety, S., Athier, G., Cammas, J.-P., and Schultz, M. (2010). Current status of the ability of the GEMS/MACC models to reproduce the tropospheric CO vertical distribution as measured by MOZAIC. *Geosci. Model Dev.*, 3(2) :501–518.
- Elvidge, C. D., Zhizhin, M., Hsu, F.-C., and Baugh, K. E. (2013). VIIRS Nightfire : Satellite Pyrometry at Night. *Remote Sensing*, 5(9) :4423–4449.
- Elvidge, C. D., Ziskin, D., Baugh, K. E., Tuttle, B. T., Ghosh, T., Pack, D. W., Erwin, E. H., and Zhizhin, M. (2009). A Fifteen Year Record of Global Natural Gas Flaring Derived from Satellite Data. *Energies*, 2(3) :595–622.
- Emanuel, K. A. and Živković Rothman, M. (1999). Development and Evaluation of a Convection Scheme for Use in Climate Models. *J. Atmos. Sci.*, 56(11) :1766–1782.
- Endresen, , Sørgård, E., Sundet, J. K., Dalsøren, S. B., Isaksen, I. S. A., Berglen, T. F., and Graver, G. (2003). Emission from international sea transportation and environmental impact. *J. Geophys. Res.*, 108(D17) :4560.
- Eyring, V., Isaksen, I. S. A., Berntsen, T., Collins, W. J., Corbett, J. J., Endresen, O., Grainger, R. G., Moldanova, J., Schlager, H., and Stevenson, D. S. (2010). Transport impacts on atmosphere and climate : Shipping. *Atmospheric Environment*, 44(37) :4735–4771.
- Fawole, O. G., Cai, X., Levine, J. G., Pinker, R. T., and MacKenzie, A. R. (2016a). Detection of a gas flaring signature in the AERONET optical properties of aerosols at a tropical station in West Africa. *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121(24) :2016JD025584.
- Fawole, O. G., Cai, X. M., and MacKenzie, A. R. (2016b). Gas flaring and resultant air pollution : A review focusing on black carbon. *Environmental Pollution*, 216 :182–197.
- Finlayson-Pitts, B. J. and Pitts Jr., J. N. (2000). CHAPTER 16 - Applications of Atmospheric Chemistry : Air Pollution Control Strategies and Risk Assessments for Tropospheric Ozone and Associated Photochemical Oxidants, Acids, Particles, and Hazardous Air Pollutants. In *Chemistry of the Upper and Lower Atmosphere*, pages 871–942. Academic Press, San Diego. DOI : 10.1016/B978-012257060-5/50018-6.

- Fioletov, V. E., McLinden, C. A., Krotkov, N., Li, C., Joiner, J., Theys, N., Carn, S., and Moran, M. D. (2016). A global catalogue of large SO₂ sources and emissions derived from the Ozone Monitoring Instrument. *Atmos. Chem. Phys.*, 16(18) :11497–11519.
- Flamant, C., Knippertz, P., Fink, A. H., Akpo, A., Brooks, B., Chiu, C. J., Coe, H., Danuor, S., Evans, M., Jegede, O., Kalthoff, N., Konaré, A., Lioussé, C., Lohou, F., Mari, C., Schlager, H., Schwarzenboeck, A., Adler, B., Amekudzi, L., Aryee, J., Ayoola, M., Batenburg, A. M., Bessardon, G., Borrmann, S., Brito, J., Bower, K., Burnet, F., Catoire, V., Colomb, A., Denjean, C., Fosu-Amankwah, K., Hill, P. G., Lee, J., Lothon, M., Maranan, M., Marsham, J., Meynadier, R., Ngamini, J.-B., Rosenberg, P., Sauer, D., Smith, V., Stratmann, G., Taylor, J. W., Voigt, C., and Yoboué, V. (2017). The Dynamics-Aerosol-Chemistry-Cloud Interactions in West Africa field campaign : Overview and research highlights. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*
- Formenti, P., Boucher, O., Reiner, T., Sprung, D., Andreae, M. O., Wendisch, M., Wex, H., Kindred, D., Tzortziou, M., Vasaras, A., and Zerefos, C. (2002). STAAARTE-MED 1998 summer airborne measurements over the Aegean Sea 2. Aerosol scattering and absorption, and radiative calculations. *J. Geophys. Res.*, 107(D21) :4451.
- Forster, C., Cooper, O., Stohl, A., Eckhardt, S., James, P., Dunlea, E., Nicks, D. K., Holloway, J. S., Hübler, G., Parrish, D. D., Ryerson, T. B., and Trainer, M. (2004). Lagrangian transport model forecasts and a transport climatology for the Intercontinental Transport and Chemical Transformation 2002 (ITCT 2k2) measurement campaign. *J. Geophys. Res.*, 109(D7) :D07S92.
- Forster, C., Stohl, A., and Seibert, P. (2007). Parameterization of Convective Transport in a Lagrangian Particle Dispersion Model and Its Evaluation. *J. Appl. Meteor. Climatol.*, 46(4) :403–422.
- Forster, C., Wandinger, U., Wotawa, G., James, P., Mattis, I., Althausen, D., Simmonds, P., O'Doherty, S., Jennings, S. G., Kleefeld, C., Schneider, J., Trickl, T., Kreipl, S., Jäger, H., and Stohl, A. (2001). Transport of boreal forest fire emissions from Canada to Europe. *J. Geophys. Res.*, 106(D19) :22887–22906.
- Fromm, M., Bevilacqua, R., Servranckx, R., Rosen, J., Thayer, J. P., Herman, J., and Larko, D. (2005). Pyro-cumulonimbus injection of smoke to the stratosphere : Observations and impact of a super blowup in northwestern Canada on 3–4 August 1998. *J. Geophys. Res.*, 110(D8) :D08205.
- Fromm, M., Lindsey, D. T., Servranckx, R., Yue, G., Trickl, T., Sica, R., Doucet, P., and Godin-Beekmann, S. (2010). The Untold Story of Pyrocumulonimbus. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 91(9) :1193–1209.
- Fromm, M. D. and Servranckx, R. (2003). Transport of forest fire smoke above the tropopause by supercell convection. *Geophys. Res. Lett.*, 30(10) :1542.
- Fueglistaler, S., Dessler, A. E., Dunkerton, T. J., Folkins, I., Fu, Q., and Mote, P. W. (2009). Tropical tropopause layer. *Rev. Geophys.*, 47(1) :RG1004.

- Gamnitzer, U., Karstens, U., Kromer, B., Neubert, R. E. M., Meijer, H. A. J., Schroeder, H., and Levin, I. (2006). Carbon monoxide : A quantitative tracer for fossil fuel CO₂? *J. Geophys. Res.*, 111(D22) :D22302.
- Gerasopoulos, E., Kouvarakis, G., Vrekoussis, M., Kanakidou, M., and Mihalopoulos, N. (2005). Ozone variability in the marine boundary layer of the eastern Mediterranean based on 7-year observations. *J. Geophys. Res.*, 110(D15) :D15309.
- Giglio, L., Csiszar, I., and Justice, C. O. (2006). Global distribution and seasonality of active fires as observed with the Terra and Aqua Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) sensors. *J. Geophys. Res.*, 111(G2) :G02016.
- Giglio, L., Descloitres, J., Justice, C. O., and Kaufman, Y. J. (2003). An Enhanced Contextual Fire Detection Algorithm for MODIS. *Remote Sensing of Environment*, 87(2–3) :273–282.
- Gill, A. E. (1982). *Atmosphere-Ocean Dynamics*. Academic Press.
- Giorgi, F. and Lionello, P. (2008). Climate change projections for the Mediterranean region. *Global and Planetary Change*, 63(2–3) :90–104.
- Goode, J. G., Yokelson, R. J., Ward, D. E., Susott, R. A., Babbitt, R. E., Davies, M. A., and Hao, W. M. (2000). Measurements of excess O₃, CO₂, CO, CH₄, C₂H₄, C₂H₂, HCN, NO, NH₃, HCOOH, CH₃COOH, HCHO, and CH₃OH in 1997 Alaskan biomass burning plumes by airborne Fourier transform infrared spectroscopy (AFTIR). *J. Geophys. Res.*, 105(D17) :22147–22166.
- 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., Liousse, 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.
- Grossmann, K. (2014). *Aircraft-borne DOAS limb observations of UV/visible absorbing trace gas species over Borneo : Implications for the photochemistry of iodine, volatile organic oxide degradation, and lightning-produced radicals*. PhD thesis, Institute of Environmental Physics.
- Guenther, A. (2008). Atmospheric chemistry : Are plant emissions green? *Nature*, 452(7188) :701–702.
- Guenther, A., Hewitt, C. N., Erickson, D., Fall, R., Geron, C., Graedel, T., Harley, P., Klinger, L., Lerdau, M., McKay, W. A., Pierce, T., Scholes, B., Steinbrecher, R., Tallamraju, R., Taylor, J., and Zimmerman, P. (1995). A global model of natural volatile organic compound emissions. *J. Geophys. Res.*, 100(D5) :8873–8892.
- Guth, J., Josse, B., Marécal, V., Joly, M., and Hamer, P. (2016). First implementation of secondary inorganic aerosols in the MOCAGE version 2.15.0 chemistry transport model. *Geosci. Model Dev.*, 9(1) :137–160.

- Hartmann, D., Klein Tank, A., Rusticucci, M., Alexander, L., Bronnimann, S., Charabi, Y., Dentener, F., Dlugokencky, E., Easterling, D., Kaplan, A., Soden, B., Thorne, P., Wild, M., and Zhai, P. (2013). Observations : Atmosphere and Surface. In *Climate change 2013 : the physical science basis ; Working Group I contribution to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- Hassan, A. and Kouhy, R. (2013). Gas flaring in Nigeria : Analysis of changes in its consequent carbon emission and reporting. *Accounting Forum*, 37(2) :124–134.
- Heald, C. L., Jacob, D. J., Fiore, A. M., Emmons, L. K., Gille, J. C., Deeter, M. N., Warner, J., Edwards, D. P., Crawford, J. H., Hamlin, A. J., Sachse, G. W., Browell, E. V., Avery, M. A., Vay, S. A., Westberg, D. J., Blake, D. R., Singh, H. B., Sandholm, S. T., Talbot, R. W., and Fuelberg, H. E. (2003). Asian outflow and trans-Pacific transport of carbon monoxide and ozone pollution : An integrated satellite, aircraft, and model perspective. *J. Geophys. Res.*, 108(D24) :4804.
- Heald, C. L., Jacob, D. J., Park, R. J., Alexander, B., Fairlie, T. D., Yantosca, R. M., and Chu, D. A. (2006). Transpacific transport of Asian anthropogenic aerosols and its impact on surface air quality in the United States. *J. Geophys. Res.*, 111(D14) :D14310.
- Heil, A., Langmann, B., and Aldrian, E. (2007). Indonesian peat and vegetation fire emissions : Study on factors influencing large-scale smoke haze pollution using a regional atmospheric chemistry model. *Mitig Adapt Strat Glob Change*, 12(1) :113–133.
- Hertel, O., Christensen, J., Runge, E. H., Asman, W. A. H., Berkowicz, R., Hovmand, M. F., and Hov, (1995). Development and testing of a new variable scale air pollution model—ACDEP. *Atmospheric Environment*, 29(11) :1267–1290.
- Holzer, M., Hall, T. M., and Stull, R. B. (2005). Seasonality and weather-driven variability of transpacific transport. *J. Geophys. Res.*, 110(D23) :D23103.
- Hurrell, J. W. (1995). Decadal trends in the north atlantic oscillation : regional temperatures and precipitation. *Science*, 269(5224) :676–679.
- Hyer, E. J. and Chew, B. N. (2010). Aerosol transport model evaluation of an extreme smoke episode in Southeast Asia. *Atmospheric Environment*, 44(11) :1422–1427.
- IPCC (2007). Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change. In *Climate Change 2007 : The Physical Science Basis.*, Cambridge University Press. Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K.B. Averyt, M. Tignor and H.L. Miller (eds.), Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- Ito, A., Ito, A., and Akimoto, H. (2007). Seasonal and interannual variations in CO and BC emissions from open biomass burning in Southern Africa during 1998–2005. *Global Biogeochem. Cycles*, 21(2) :GB2011.
- Jacob, D. (1999). *Introduction to Atmospheric Chemistry*. Princeton University Press.

- Jaffe, D., Bertschi, I., Jaeglé, L., Novelli, P., Reid, J. S., Tanimoto, H., Vingarzan, R., and Westphal, D. L. (2004). Long-range transport of Siberian biomass burning emissions and impact on surface ozone in western North America. *Geophys. Res. Lett.*, 31(16) :L16106.
- Jaffe, D. A., Honrath, R. E., Furness, D., Conway, T. J., Dlugokencky, E., and Steele, L. P. (1995). A determination of the CH₄, NO_x and CO₂ emissions from the Prudhoe Bay, Alaska oil development. *J Atmos Chem*, 20(3) :213–227.
- Jaffe, D. A. and Wigder, N. L. (2012). Ozone production from wildfires : A critical review. *Atmospheric Environment*, 51 :1–10.
- Jalkanen, J.-P., Johansson, L., and Kukkonen, J. (2016). A comprehensive inventory of ship traffic exhaust emissions in the European sea areas in 2011. *Atmos. Chem. Phys.*, 16(1) :71–84.
- Jiang, Z., Jones, D. B. A., Worden, H. M., and Henze, D. K. (2015). Sensitivity of top-down CO source estimates to the modeled vertical structure in atmospheric CO. *Atmos. Chem. Phys.*, 15(3) :1521–1537.
- 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. *J. Geophys. Res.*, 103(D15) :19059–19073.
- Josse, B., Simon, P., and Peuch, V.-H. (2004). Radon global simulations with the multiscale chemistry and transport model MOCAGE. *Tellus B*, 56(4) :339–356.
- Jost, H.-J., Drdla, K., Stohl, A., Pfister, L., Loewenstein, M., Lopez, J. P., Hudson, P. K., Murphy, D. M., Cziczo, D. J., Fromm, M., Bui, T. P., Dean-Day, J., Gerbig, C., Mahoney, M. J., Richard, E. C., Spichtinger, N., Pittman, J. V., Weinstock, E. M., Wilson, J. C., and Xueref, I. (2004). In-situ observations of mid-latitude forest fire plumes deep in the stratosphere. *Geophys. Res. Lett.*, 31(11) :L11101.
- 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. *Geophys. Res. Lett.*, 34(4) :L04810.
- Junker, C. and Lioussé, C. (2008). A global emission inventory of carbonaceous aerosol from historic records of fossil fuel and biofuel consumption for the period 1860–1997. *Atmos. Chem. Phys.*, 8(5) :1195–1207.
- Kaiser, J. W., Heil, A., Andreae, M. O., Benedetti, A., Chubarova, N., Jones, L., Morcrette, J.-J., Razinger, M., Schultz, M. G., Suttie, M., and van der Werf, G. R. (2012). Biomass burning emissions estimated with a global fire assimilation system based on observed fire radiative power. *Biogeosciences*, 9(1) :527–554.
- Kerkweg, A., Buchholz, J., Ganzeveld, L., Pozzer, A., Tost, H., and Jöckel, P. (2006). Technical Note : An implementation of the dry removal processes DRY DEPosition and SE-

- Dimentation in the Modular Earth Submodel System (MESSy). *Atmos. Chem. Phys.*, 6(12) :4617–4632.
- Kim, P. S., Jacob, D. J., Mickley, L. J., Kopplitz, S. N., Marlier, M. E., DeFries, R. S., Myers, S. S., Chew, B. N., and Mao, Y. H. (2015). Sensitivity of population smoke exposure to fire locations in Equatorial Asia. *Atmospheric Environment*, 102 :11–17.
- Klimont, Z., Guenther, A., Rypdal, K., Kebin, H., and Ohara, T. (2007). Emissions inventories and projections for assessing hemispheric or intercontinental transport. In Keating, T. and Zuber, A., editors, *Hemispheric Transport of Air Pollution 2007*, pages 65–82. UNECE Information Service, Geneva, Switzerland.
- Knippertz, P., Coe, H., Chiu, J. C., Evans, M. J., Fink, A. H., Kalthoff, N., Lioussé, C., Mari, C., Allan, R. P., Brooks, B., Danour, S., Flamant, C., Jegede, O. O., Lohou, F., and Marsham, J. H. (2015a). The DACCIWA Project : Dynamics–Aerosol–Chemistry–Cloud Interactions in West Africa. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 96(9) :1451–1460.
- Knippertz, P., Evans, M. J., Field, P. R., Fink, A. H., Lioussé, C., and Marsham, J. H. (2015b). The possible role of local air pollution in climate change in West Africa. *Nature Clim. Change*, 5(9) :815–822.
- Knippertz, P., Fink, A. H., Deroubaix, A., Morris, E., Tocquer, F., Evans, M. J., Flamant, C., Gaetani, M., Lavaysse, C., Mari, C., Marsham, J. H., Meynadier, R., Affo-Dogo, A., Bahaga, T., Brosse, F., Deetz, K., Guebsi, R., Latifou, I., Maranan, M., Rosenberg, P. D., and Schlueter, A. (2017). A meteorological and chemical overview of the DACCIWA field campaign in West Africa in June–July 2016. *Atmos. Chem. Phys.*, 17(17) :10893–10918.
- Krysztofiak, G. (2013). *Transport et chimie d’espèces soufrées et bromées dans la haute troposphère et basse stratosphère diagnostiqués par des mesures sous ballon et en avion par modélisation*. PhD thesis, Université d’Orléans.
- Krüger, K., Tegtmeier, S., and Rex, M. (2008). Long-term climatology of air mass transport through the Tropical Tropopause Layer (TTL) during NH winter. *Atmos. Chem. Phys.*, 8(4) :813–823.
- Kuenen, J. J. P., Denier van der Gon, H. A. C., Visschedijk, A., Van der Brugh, H., and Van Gijlswijk, R. (2011). MACC European emission inventory for the years 2003–2007. TNO report TNO-060-UT-2011-00588, Utrecht.
- Labonne, M., Bréon, F.-M., and Chevallier, F. (2007). Injection height of biomass burning aerosols as seen from a spaceborne lidar. *Geophys. Res. Lett.*, 34(11) :L11806.
- Ladstätter-Weissenmayer, A., Heland, J., Kormann, R., von Kuhlmann, R., Lawrence, M. G., Meyer-Arne, J., Richter, A., Wittrock, F., Ziereis, H., and Burrows, J. P. (2003). Transport and build-up of tropospheric trace gases during the MINOS campaign : comparison of GOME, in situ aircraft measurements and MATCH-MPIC-data. *Atmos. Chem. Phys.*, 3(5) :1887–1902.
- Lafore, J.-P., Flamant, C., Giraud, V., Guichard, F., Knippertz, P., Mahfouf, J.-F., Mascart, P., and Williams, E. (2010). Introduction to the AMMA Special Issue on ‘Advances in

- understanding atmospheric processes over West Africa through the AMMA field campaign'. *Q.J.R. Meteorol. Soc.*, 136(S1) :2–7.
- 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. *Atmos. Chem. Phys.*, 10(15) :7017–7039.
- Langmann, B., Duncan, B., Textor, C., Trentmann, J., and van der Werf, G. R. (2009). Vegetation fire emissions and their impact on air pollution and climate. *Atmospheric Environment*, 43(1) :107–116.
- Lapina, K., Honrath, R. E., Owen, R. C., Val Martín, M., Hyer, E. J., and Fialho, P. (2008). Late summer changes in burning conditions in the boreal regions and their implications for NO_x and CO emissions from boreal fires. *J. Geophys. Res.*, 113(D11) :D11304.
- Lavoué, D., Liousse, C., Cachier, H., Stocks, B. J., and Goldammer, J. G. (2000). Modeling of carbonaceous particles emitted by boreal and temperate wildfires at northern latitudes. *J. Geophys. Res.*, 105(D22) :26871–26890.
- Leclair De Bellevue, J., Réchou, A., Baray, J. L., Ancellet, G., and Diab, R. D. (2006). Signatures of stratosphere to troposphere transport near deep convective events in the southern subtropics. *J. Geophys. Res.*, 111(D24) :D24107.
- Lefèvre, F., Brasseur, G. P., Folkins, I., Smith, A. K., and Simon, P. (1994). Chemistry of the 1991–1992 stratospheric winter : Three-dimensional model simulations. *J. Geophys. Res.*, 99(D4) :8183–8195.
- Lelieveld, J., Berresheim, H., Borrmann, S., Crutzen, P. J., Dentener, F. J., Fischer, H., Feichter, J., Flatau, P. J., Heland, J., Holzinger, R., Korrmann, R., Lawrence, M. G., Levin, Z., Markowicz, K. M., Mihalopoulos, N., Minikin, A., Ramanathan, V., Reus, M. d., Roelofs, G. J., Scheeren, H. A., Sciare, J., Schlager, H., Schultz, M., Siegmund, P., Steil, B., Stephanou, E. G., Stier, P., Traub, M., Warneke, C., Williams, J., and Ziereis, H. (2002). Global Air Pollution Crossroads over the Mediterranean. *Science*, 298(5594) :794–799.
- Lelieveld, J., Butler, T. M., Crowley, J. N., Dillon, T. J., Fischer, H., Ganzeveld, L., Harder, H., Lawrence, M. G., Martinez, M., Taraborrelli, D., and Williams, J. (2008). Atmospheric oxidation capacity sustained by a tropical forest. *Nature*, 452(7188) :737–740.
- Liang, Q., Jaeglé, L., Jaffe, D. A., Weiss-Penzias, P., Heckman, A., and Snow, J. A. (2004). Long-range transport of Asian pollution to the northeast Pacific : Seasonal variations and transport pathways of carbon monoxide. *J. Geophys. Res.*, 109(D23) :D23S07.
- Lionello, P., Malanotte-Rizzoli, P., Boscolo, R., Alpert, P., Artale, V., Li, L., Luterbacher, J., May, W., Trigo, R., Tsimplis, M., Ulbrich, U., and Xoplaki, E. (2006). The Mediterranean

- climate : An overview of the main characteristics and issues. *Developments in Earth and Environmental Sciences*, 4 :1–26.
- Lioussé, C., Assamoi, E., Criqui, P., Granier, C., and Rosset, R. (2014). Explosive growth in African combustion emissions from 2005 to 2030. *Environ. Res. Lett.*, 9(3) :035003.
- Lioussé, C., Keita, S., N'Datchoch Touré, E. ., Doumbia, T., Yoboué, V., Assamoi, E., Haslett, S., Roblou, L., Léon, J.-F., Galy-Lacaux, C., Akpo, A., and Coe, H. (2017). African Anthropogenic Emissions Inventories for gases and particles from 1990 to 2016. EGU General Assembly Conference.
- Lioussé, C., Penner, J. E., Chuang, C., Walton, J. J., Eddleman, H., and Cachier, H. (1996). A global three-dimensional model study of carbonaceous aerosols. *J. Geophys. Res.*, 101(D14) :19411–19432.
- Liu, Y., Sun, C., Sun, J., Li, H., Zhan, W., Yang, Y., and Zhang, S. (2016). Satellite data lift the veil on offshore platforms in the South China Sea. *Scientific Reports*, 6 :srep33623.
- Macdonald, J. A., Jeeva, D., Eggleton, P., Davies, R., Bignell, D. E., Fowler, D., Lawton, J., and Maryati, M. (1999). The effect of termite biomass and anthropogenic disturbance on the CH₄ budgets of tropical forests in Cameroon and Borneo. *Global Change Biology*, 5(8) :869–879.
- Marais, E. A., Jacob, D. J., Wecht, K., Lerot, C., Zhang, L., Yu, K., Kurosu, T. P., Chance, K., and Sauvage, B. (2014). Anthropogenic emissions in Nigeria and implications for atmospheric ozone pollution : A view from space. *Atmospheric Environment*, 99 :32–40.
- Marelle, L., Thomas, J. L., Raut, J.-C., Law, K. S., Jalkanen, J.-P., Johansson, L., Roiger, A., Schlager, H., Kim, J., Reiter, A., and Weinzierl, B. (2016). Air quality and radiative impacts of Arctic shipping emissions in the summertime in northern Norway : from the local to the regional scale. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(4) :2359–2379.
- Marenco, A., Medale, J. C., and Prieur, S. (1990). Study of tropospheric ozone in the tropical belt (Africa, America) from STRATOZ and TROPOZ campaigns. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, 24(11) :2823–2834.
- 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.
- Mari, C. H., Reeves, C. E., Law, K. S., Ancellet, G., Andrés-Hernández, M. D., Barret, B., Bechara, J., Borbon, A., Bouarar, I., Cairo, F., Commane, R., Delon, C., Evans, M. J., Fierli, F., Floquet, C., Galy-Lacaux, C., Heard, D. E., Homan, C. D., Ingham, T., Larsen, N., Lewis, A. C., Lioussé, C., Murphy, J. G., Orlandi, E., Oram, D. E., Saunois, M., Serça, D., Stewart, D. J., Stone, D., Thouret, V., Velthoven, P. v., and Williams, J. E. (2011). Atmospheric composition of West Africa : highlights from the AMMA international program. *Atmosph. Sci. Lett.*, 12(1) :13–18.
- Marlier, M. E., DeFries, R. S., Kim, P. S., Koplitz, S. N., Jacob, D. J., Mickley, L. J., and

- Myers, S. S. (2015). Fire emissions and regional air quality impacts from fires in oil palm, timber, and logging concessions in Indonesia. *Environ. Res. Lett.*, 10(8) :085005.
- Martin, R. 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. *J.-Geophys.-Res.*, 107(D18) :4351.
- McQuaid, J., Schlager, H., Andrés-Hernández, M. D., Ball, S., Borbon, A., Brown, S. S., Catoire, V., Di Carlo, P., Custer, T. G., von Hobe, M., Hopkins, J., Pfeilsticker, K., Röckmann, T., Roiger, A., Stroh, F., Williams, J., and Ziereis, H. (2013). In Situ Trace Gas Measurements. In Wendisch, n. and Brenguier, J.-L., editors, *Airborne Measurements for Environmental Research*, pages 77–155. Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA. DOI : 10.1002/9783527653218.ch3.
- Mengqiao, X., Zhenfu, L., Yanlei, S., Xiaoling, Z., and Shufei, J. (2015). Evolution of regional inequality in the global shipping network. *Journal of Transport Geography*, 44 :1–12.
- Menut, L., Flamant, C., Turquety, S., Deroubaix, A., Chazette, P., and Meynadier, R. (2017). Impact of biomass burning on pollutants surface concentrations in megacities of the Gulf of Guinea. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 2017 :1–33.
- Mertz, O., Halsnaes, K., Olesen, J. E., and Rasmussen, K. (2009). Adaptation to climate change in developing countries. *Environ Manage*, 43(5) :743–752.
- Miettinen, J., Hooijer, A., Tollenaar, D., Page, S., Malins, C., Vernimmen, R., Shi, C., and Liew, S. C. (2012). Historical analysis and projection of oil palm plantation expansion on peatland in Southeast Asia. *ICCT White Paper*, 17.
- Mihalopoulos, N. (2007). Long-Range Transport of Pollutants Above the Eastern Mediterranean : Implications for Air Quality and Regional Climate. In Mellouki, A. and Ravishankara, A. R., editors, *Regional Climate Variability and its Impacts in The Mediterranean Area*, number 79 in NATO Science Series : IV : Earth and Environmental Sciences, pages 1–13. Springer Netherlands. DOI : 10.1007/978-1-4020-6429-6_1.
- Millán, M., Sanz, K., Salvador, R., and Mantilla, E. (2002). Atmospheric dynamics and ozone cycles related to nitrogen deposition in the western Mediterranean. *Environ Pollut*, 118(2) :167–186.
- Minga, A., Thouret, V., Saunois, M., Delon, C., Serça, D., Mari, C., Sauvage, B., Mariscal, A., Leriche, M., and Cros, B. (2010). What caused extreme ozone concentrations over Cotonou in December 2005 ? *Atmos. Chem. Phys.*, 10(3) :895–907.
- Nabat, P., Somot, S., Mallet, M., Chiapello, I., Morcrette, J. J., Solmon, F., Szopa, S., Dulac, F., Collins, W., Ghan, S., Horowitz, L. W., Lamarque, J. F., Lee, Y. H., Naik, V., Nagashima, T., Shindell, D., and Skeie, R. (2013). A 4-D climatology (1979–2009) of the monthly tropospheric aerosol optical depth distribution over the Mediterranean region from a comparative evaluation and blending of remote sensing and model products. *Atmos. Meas. Tech.*, 6(5) :1287–1314.

- Nara, H., Tanimoto, H., Tohjima, Y., Mukai, H., Nojiri, Y., and Machida, T. (2014). Emissions of methane from offshore oil and gas platforms in Southeast Asia. *Sci. Rep.*, 4.
- NCEP (2000). National Centers for Environmental Prediction. NCEP FNL Operational Model Global Tropospheric Analyses, continuing from July 1999. Boulder CO.
- Nedelec, P., Thouret, V., Brioude, J., Sauvage, B., Cammas, J.-P., and Stohl, A. (2005). Extreme CO concentrations in the upper troposphere over northeast Asia in June 2003 from the in situ MOZAIC aircraft data. *Geophys. Res. Lett.*, 32(14) :L14807.
- Olson, J. R., Baum, B. A., Cahoon, D. R., and Crawford, J. H. (1999). Frequency and distribution of forest, savanna, and crop fires over tropical regions during PEM-Tropics A. *J. Geophys. Res.*, 104(D5) :5865–5876.
- Pace, G., Meloni, D., and di Sarra, A. (2005). Forest fire aerosol over the Mediterranean basin during summer 2003. *J. Geophys. Res.*, 110(D21) :D21202.
- Palacios-Orueta, A., Parra, A., Chuvieco, E., and Carmona-Moreno, C. (2004). Remote sensing and geographic information systems methods for global spatiotemporal modeling of biomass burning emissions : Assessment in the African continent. *J. Geophys. Res.*, 109(D14) :D14S09.
- Peters, G. P., Nilssen, T. B., Lindholt, L., Eide, M. S., Glomsrød, S., Eide, L. I., and Fuglestad, J. S. (2011). Future emissions from shipping and petroleum activities in the Arctic. *Atmos. Chem. Phys.*, 11(11) :5305–5320.
- Petzold, A., Weinzierl, B., Huntrieser, H., Stohl, A., Real, E., Cozic, J., Fiebig, M., Hendricks, J., Lauer, A., Law, K., Roiger, A., Schlager, H., and Weingartner, E. (2007). Perturbation of the European free troposphere aerosol by North American forest fire plumes during the ICARTT-ITOP experiment in summer 2004. *Atmos. Chem. Phys.*, 7(19) :5105–5127.
- Pu, R., Li, Z., Gong, P., Csiszar, I., Fraser, R., Hao, W.-M., Kondragunta, S., and Weng, F. (2007). Development and analysis of a 12-year daily 1-km forest fire dataset across North America from NOAA/AVHRR data. *Remote Sensing of Environment*, 108(2) :198–208.
- Pyle, J. A., Ashfold, M. J., Harris, N. R. P., Robinson, A. D., Warwick, N. J., Carver, G. D., Gostlow, B., O'Brien, L. M., Manning, A. J., Phang, S. M., Yong, S. E., Leong, K. P., Ung, E. H., and Ong, S. (2011). Bromoform in the tropical boundary layer of the Maritime Continent during OP3. *Atmos. Chem. Phys.*, 11(2) :529–542.
- Rea, G. (2015). *Impact des feux de végétation sur la pollution particulaire en région Euro-Méditerranéenne et en Australie*. PhD thesis, Paris 6.
- Real, E., Orlandi, E., Law, K. S., Fierli, F., Josset, D., Cairo, F., Schlager, H., Borrmann, S., Kunkel, D., Volk, C. M., McQuaid, J. B., Stewart, D. J., Lee, J., Lewis, A. C., Hopkins, J. R., Ravegnani, F., Ulanovski, A., and Liousse, C. (2010). Cross-hemispheric transport of central African biomass burning pollutants : implications for downwind ozone production. *Atmos. Chem. Phys.*, 10(6) :3027–3046.

- Reddington, C. L., Yoshioka, M., Balasubramanian, R., Ridley, D., Toh, Y. Y., Arnold, S. R., and Spracklen, D. V. (2014). Contribution of vegetation and peat fires to particulate air pollution in Southeast Asia. *Environ. Res. Lett.*, 9(9) :094006.
- Redelsperger, J.-L., Thorncroft, C. D., Diedhiou, A., Lebel, T., Parker, D. J., and Polcher, J. (2006). African Monsoon Multidisciplinary Analysis : An International Research Project and Field Campaign. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 87(12) :1739–1746.
- Rex, M., Wohltmann, I., Ridder, T., Lehmann, R., Rosenlof, K., Wennberg, P., Weisenstein, D., Notholt, J., Krüger, K., Mohr, V., and Tegtmeier, S. (2014). A tropical West Pacific OH minimum and implications for stratospheric composition. *Atmos. Chem. Phys.*, 14(9) :4827–4841.
- Ricaud, P., Sič, B., El Amraoui, L., Attié, J.-L., Zbinden, R., Huszar, P., Szopa, S., Parmentier, J., Jaidan, N., Michou, M., Abida, R., Carminati, F., Hauglustaine, D., August, T., Warner, J., Imasu, R., Saitoh, N., and Peuch, V.-H. (2014). Impact of the Asian monsoon anticyclone on the variability of mid-to-upper tropospheric methane above the Mediterranean Basin. *Atmos. Chem. Phys.*, 14(20) :11427–11446.
- Ricaud, P., Zbinden, R., Catoire, V., Brocchi, V., Dulac, F., Hamonou, E., Canonici, J.-C., El Amraoui, L., Massart, S., Piguet, B., Dayan, U., Nabat, P., Sciare, J., Ramonet, M., Delmotte, M., di Sarra, A., Sferlazzo, D., di Iorio, T., Piacentino, S., Cristofanelli, P., Mihalopoulos, N., Kouvarakis, G., Pikridas, M., Savvides, C., Mamouri, R.-E., Nisantzi, A., Hadjimitsis, D., Attié, J.-L., Ferré, H., Kangah, Y., Jaidan, N., Guth, J., Jacquet, P., Chevrier, S., Robert, C., Bourdon, A., Bourdinot, J.-F., Etienne, J.-C., Krysztofiak, G., and Theron, P. (2017). The GLAM airborne campaign across the Mediterranean Basin. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*
- Robert, C. (2007). Simple, stable, and compact multiple-reflection optical cell for very long optical paths. *Appl. Opt.*, 46(22) :5408–5418.
- Roiger, A., Huntrieser, H., and Schlager, H. (2012). Long-Range Transport of Air Pollutants. *SpringerLink*, pages 185–201.
- Roiger, A., Thomas, J.-L., Schlager, H., Law, K. S., Kim, J., Schäfler, A., Weinzierl, B., Dahlkötter, F., Krisch, I., Marelle, L., Minikin, A., Raut, J.-C., Reiter, A., Rose, M., Scheibe, M., Stock, P., Baumann, R., Bouarar, I., Clerbaux, C., George, M., Onishi, T., and Flemming, J. (2014). Quantifying Emerging Local Anthropogenic Emissions in the Arctic Region : The ACCESS Aircraft Campaign Experiment. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 96(3) :441–460.
- Rothman, L. S., Gordon, I. E., Babikov, Y., Barbe, A., Chris Benner, D., Bernath, P. F., Birk, M., Bizzocchi, L., Boudon, V., Brown, L. R., Campargue, A., Chance, K., Cohen, E. A., Coudert, L. H., Devi, V. M., Drouin, B. J., Fayt, A., Flaud, J. M., Gamache, R. R., Harrison, J. J., Hartmann, J. M., Hill, C., Hodges, J. T., Jacquemart, D., Jolly, A., Lamouroux, J., Le Roy, R. J., Li, G., Long, D. A., Lyulin, O. M., Mackie, C. J., Massie, S. T., Mikhailenko, S., Müller, H. S. P., Naumenko, O. V., Nikitin, A. V., Orphal, J.,

- Perevalov, V., Perrin, A., Polovtseva, E. R., Richard, C., Smith, M. A. H., Starikova, E., Sung, K., Tashkun, S., Tennyson, J., Toon, G. C., Tyuterev, V. G., and Wagner, G. (2013). The HITRAN2012 molecular spectroscopic database. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 130 :4–50.
- Ryerson, T. B., Buhr, M. P., Frost, G. J., Goldan, P. D., Holloway, J. S., Hübler, G., Jobson, B. T., Kuster, W. C., McKeen, S. A., Parrish, D. D., Roberts, J. M., Sueper, D. T., Trainer, M., Williams, J., and Fehsenfeld, F. C. (1998). Emissions lifetimes and ozone formation in power plant plumes. *J. Geophys. Res.*, 103(D17) :22569–22583.
- Rémy, S., Veira, A., Paugam, R., Sofiev, M., Kaiser, J. W., Marengo, F., Burton, S. P., Benedetti, A., Engelen, R. J., Ferrare, R., and Hair, J. W. (2017). Two global data sets of daily fire emission injection heights since 2003. *Atmos. Chem. Phys.*, 17(4) :2921–2942.
- Sauvage, B., Martin, R. V., van Donkelaar, A., and Ziemke, J. R. (2007). Quantification of the factors controlling tropical tropospheric ozone and the South Atlantic maximum. *J. Geophys. Res.*, 112(D11) :D11309.
- Sauvage, B., Thouret, V., Cammas, J.-P., Gheusi, F., Athier, G., and Nédélec, P. (2005). Tropospheric ozone over Equatorial Africa : regional aspects from the MOZAIC data. *Atmos. Chem. Phys.*, 5(2) :311–335.
- Scheeren, H. A., Lelieveld, J., Roelofs, G. J., Williams, J., Fischer, H., de Reus, M., de Gouw, J. A., Warneke, C., Holzinger, R., Schlager, H., Klüpfel, T., Bolder, M., van der Veen, C., and Lawrence, M. (2003). The impact of monsoon outflow from India and Southeast Asia in the upper troposphere over the eastern Mediterranean. *Atmos. Chem. Phys.*, 3(5) :1589–1608.
- Scheren, P. A., Ibe, A. C., Janssen, F. J., and Lemmens, A. M. (2002). Environmental pollution in the Gulf of Guinea – a regional approach. *Marine Pollution Bulletin*, 44(7) :633–641.
- Schreier, M., Joxe, L., Eyring, V., Bovensmann, H., and Burrows, J. P. (2010). Ship track characteristics derived from geostationary satellite observations on the west coast of southern Africa. *Atmospheric Research*, 95(1) :32–39.
- Seibert, P. and Frank, A. (2004). Source-receptor matrix calculation with a Lagrangian particle dispersion model in backward mode. *Atmos. Chem. Phys.*, 4(1) :51–63.
- Seidel, D. J., Ao, C. O., and Li, K. (2010). Estimating climatological planetary boundary layer heights from radiosonde observations : Comparison of methods and uncertainty analysis. *J. Geophys. Res.*, 115(D16) :D16113.
- Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N. (2006). *Atmospheric Chemistry and Physics : From Air Pollution to Climate Change*. John Wiley & Sons, 2nd edition.
- Seinfeld, J. H. and Pandis, S. N. (2016). *Atmospheric chemistry and physics : from air pollution to climate change*. John Wiley & Sons, 3rd edition.

- Shao, Y., Wyrwoll, K.-H., Chappell, A., Huang, J., Lin, Z., Mctainsh, G. H., Mikami, M., Tanaka, T. Y., Wang, X., and Yoon, S. (2011). Dust cycle : An emerging core theme in Earth system science. *Aeolian Research*, 2(4) :181–204.
- Sheppard, P. A. (1963). Atmospheric tracers and the study of the general circulation of the atmosphere. *Rep. Prog. Phys.*, 26(1) :213.
- Shimamura, Y. (2002). FPSO/FSO : State of the art. *J Mar Sci Technol*, 7(2) :59–70.
- Simorangkir, D. (2007). Fire use : Is it really the cheaper land preparation method for large-scale plantations? *Mitig Adapt Strat Glob Change*, 12(1) :147–164.
- Sič, B., El Amraoui, L., Marécal, V., Josse, B., Arteta, J., Guth, J., Joly, M., and Hamer, P. D. (2015). Modelling of primary aerosols in the chemical transport model MOCAGE : development and evaluation of aerosol physical parameterizations. *Geosci. Model Dev.*, 8(2) :381–408.
- SPARC (2006). SPARC Assessment of Stratospheric Aerosol Properties (ASAP). SPARC Report No. 4, WCRP-124, WMO/TD - No. 1295. available at <http://www.sparc-climate.org/publications/sparc-reports/>.
- Spichtinger, N., Damoah, R., Eckhardt, S., Forster, C., James, P., Beirle, S., Marbach, T., Wagner, T., Novelli, P. C., and Stohl, A. (2004). Boreal forest fires in 1997 and 1998 : a seasonal comparison using transport model simulations and measurement data. *Atmos. Chem. Phys.*, 4(7) :1857–1868.
- Stewart, D. J., Taylor, C. M., Reeves, C. E., and McQuaid, J. B. (2008). Biogenic nitrogen oxide emissions from soils : impact on NO_x and ozone over west Africa during AMMA (African Monsoon Multidisciplinary Analysis) : observational study. *Atmos. Chem. Phys.*, 8(8) :2285–2297.
- Stockwell, W. R., Kirchner, F., Kuhn, M., and Seefeld, S. (1997). A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling. *J. Geophys. Res.*, 102(D22) :25847–25879.
- Stohl, A., Berg, T., Burkhardt, J. F., Fjraa, A. M., Forster, C., Herber, A., Hov, , Lunder, C., McMillan, W. W., Oltmans, S., Shiobara, M., Simpson, D., Solberg, S., Stebel, K., Ström, J., Tørseth, K., Treffeisen, R., Virkkunen, K., and Yttri, K. E. (2007). Arctic smoke – record high air pollution levels in the European Arctic due to agricultural fires in Eastern Europe in spring 2006. *Atmos. Chem. Phys.*, 7(2) :511–534.
- Stohl, A., Eckhardt, S., Forster, C., James, P., and Spichtinger, N. (2002). On the pathways and timescales of intercontinental air pollution transport. *J.-Geophys.-Res.*, 107(D23) :4684.
- Stohl, A., Forster, C., Franck, A., Seibert, P., and Wotawa, G. (2005). Technical note : The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2. *Atmos. Chem. Phys.*, 5 :2461–2474.
- Stohl, A., Klimont, Z., Eckhardt, S., Kupiainen, K., Shevchenko, V. P., Kopeikin, V. M., and Novigatsky, A. N. (2013). Black carbon in the Arctic : the underestimated role of gas flaring and residential combustion emissions. *Atmos. Chem. Phys.*, 13(17) :8833–8855.

- Stohl, A. and Thomson, D. J. (1999). A Density Correction for Lagrangian Particle Dispersion Models. *Boundary-Layer Meteorology*, 90(1) :155–167.
- Streets, D. G., Carmichael, G. R., and Arndt, R. L. (1997). Sulfur dioxide emissions and sulfur deposition from international shipping in Asian waters. *Atmospheric Environment*, 31(10) :1573–1582.
- Streets, D. G., Guttikunda, S. K., and Carmichael, G. R. (2000). The growing contribution of sulfur emissions from ships in Asian waters, 1988–1995. *Atmospheric Environment*, 34(26) :4425–4439.
- Stull, R. B. (1988). *An Introduction to Boundary Layer Meteorology*. Dordrecht : Springer Netherlands.
- 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. *J. Geophys. Res.*, 103(D19) :25695–25720.
- Ulbrich, U., May, W., Li, L., Lionello, P., Pinto, J. G., and Somot, S. (2006). Chapter 8 The Mediterranean climate change under global warming. *Developments in Earth and Environmental Sciences*, 4 :399–415.
- UN (2008). United nations departments of economic and social affairs/population division. World Urbanization Prospects : The 2007 Revision. Technical report, New-York.
- Val Martin, M., Logan, J. A., Kahn, R. A., Leung, F.-Y., Nelson, D. L., and Diner, D. J. (2010). Smoke injection heights from fires in North America : analysis of 5 years of satellite observations. *Atmos. Chem. Phys.*, 10(4) :1491–1510.
- VDI (1985). Dispersion of Air Pollutants in the Atmosphere, Determination of Plume rise. Verein Deutscher Ingenieure, VDI-Richtlinien 3782 Part 3, Equation 24. https://www.vdi.de/richtlinie/vdi_3782_blat_3-ausbreitung_von_luftverunreinigungen_in_der_atmosphaere_berechnung_der_abgasfahnenueberhoehung/ (last access : October 2016).
- Veira, A., Kloster, S., Wilkenskjeld, S., and Remy, S. (2015). Fire emission heights in the climate system – Part 1 : Global plume height patterns simulated by ECHAM6-HAM2. *Atmos. Chem. Phys.*, 15(13) :7155–7171.
- Vogel, B., Vogel, H., Bäumer, D., Bangert, M., Lundgren, K., Rinke, R., and Stanelle, T. (2009). The comprehensive model system COSMO-ART – Radiative impact of aerosol on the state of the atmosphere on the regional scale. *Atmos. Chem. Phys.*, 9(22) :8661–8680.
- Vuuren, D. P. v., Edmonds, J., Kainuma, M., Riahi, K., Thomson, A., Hibbard, K., Hurtt, G. C., Kram, T., Krey, V., Lamarque, J.-F., Masui, T., Meinshausen, M., Nakicenovic, N., Smith, S. J., and Rose, S. K. (2011). The representative concentration pathways : an overview. *Climatic Change*, 109(1-2) :5.
- Wang, R., Balkanski, Y., Boucher, O., Ciais, P., Schuster, G. L., Chevallier, F., Samset, B. H., Liu, J., Piao, S., Valari, M., and Tao, S. (2016). Estimation of global black carbon

- direct radiative forcing and its uncertainty constrained by observations. *J. Geophys. Res. Atmos.*, 121(10) :2015JD024326.
- Wayne, R. P. (2000). *Chemistry of Atmospheres : An Introduction to the Chemistry of the Atmospheres of Earth, the Planets, and their Satellites*. Oxford University Press, Oxford, New York, third edition edition.
- Williams, E. J., Lerner, B. M., Murphy, P. C., Herndon, S. C., and Zahniser, M. S. (2009). Emissions of NO_x, SO₂, CO, and HCHO from commercial marine shipping during Texas Air Quality Study (TexAQS) 2006. *J. Geophys. Res.*, 114(D21) :D21306.
- Winker, D. M., Hunt, W. H., and Hostetler, C. A. (2004). Status and performance of the CALIOP lidar. volume 5575, pages 8–15.
- Winker, D. M., Hunt, W. H., and McGill, M. J. (2007). Initial performance assessment of CALIOP. *Geophys. Res. Lett.*, 34(19) :L19803.
- WMO (1957). Meteorology : A three dimensional science. *WMO Bull.*, 4 :134–138.
- Yokelson, R. J., Crounse, J. D., DeCarlo, P. F., Karl, T., Urbanski, S., Atlas, E., Campos, T., Shinozuka, Y., Kapustin, V., Clarke, A. D., Weinheimer, A., Knapp, D. J., Montzka, D. D., Holloway, J., Weibring, P., Flocke, F., Zheng, W., Toohey, D., Wennberg, P. O., Wiedinmyer, C., Mauldin, L., Fried, A., Richter, D., Walega, J., Jimenez, J. L., Adachi, K., Buseck, P. R., Hall, S. R., and Shetter, R. (2009). Emissions from biomass burning in the Yucatan. *Atmos. Chem. Phys.*, 9(15) :5785–5812.
- Zien, A. W., Richter, A., Hilboll, A., Blechschmidt, A.-M., and Burrows, J. P. (2014). Systematic analysis of tropospheric NO₂ long-range transport events detected in GOME-2 satellite data. *Atmos. Chem. Phys.*, 14(14) :7367–7396.

ANNEXE

A

Mesures autour du couloir maritime

Dans cette annexe sont regroupées les émissions de SO₂, CO, NO_x et BC par les bateaux de l'inventaire MACCity en juillet 2016, zoomées sur le golfe de Guinée. Sont aussi présentées les trajectoires et les mesures des deux autres vols (10 et 14 juillet 2016) ayant longé puis traversé le couloir maritime identifié par MACCity autour de 4°N. Les trajectoires de ces vols sont tout d'abord présentées en fonction de l'altitude afin d'identifier où l'avion est passé le plus près du couloir. Dans un second temps, les mesures de CO, aérosols, NO₂ et SO₂ sont données en fonction du temps. Sur chaque graphe, les passages correspondant au moment où l'avion a volé à basse altitude (trajectoire en bleu foncé) en longeant le couloir (de 2,50°W à 1°W) sont encadrés.

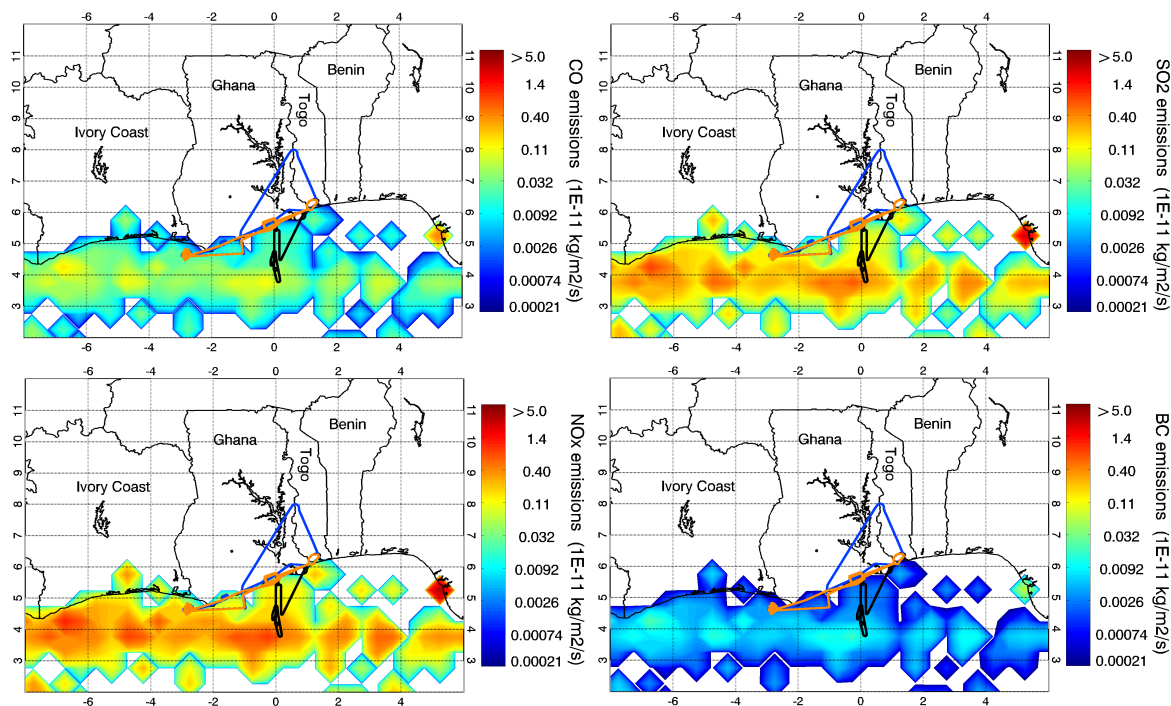


Figure A.1 — Émissions de SO_2 , CO , NO_x et BC par les bateaux de l'inventaire MACCity en juillet 2016. Les trajectoires des vols du 7 juillet (en noir), du 10 juillet (en bleu) et du 14 juillet 2016 (en orange) sont superposées aux émissions.

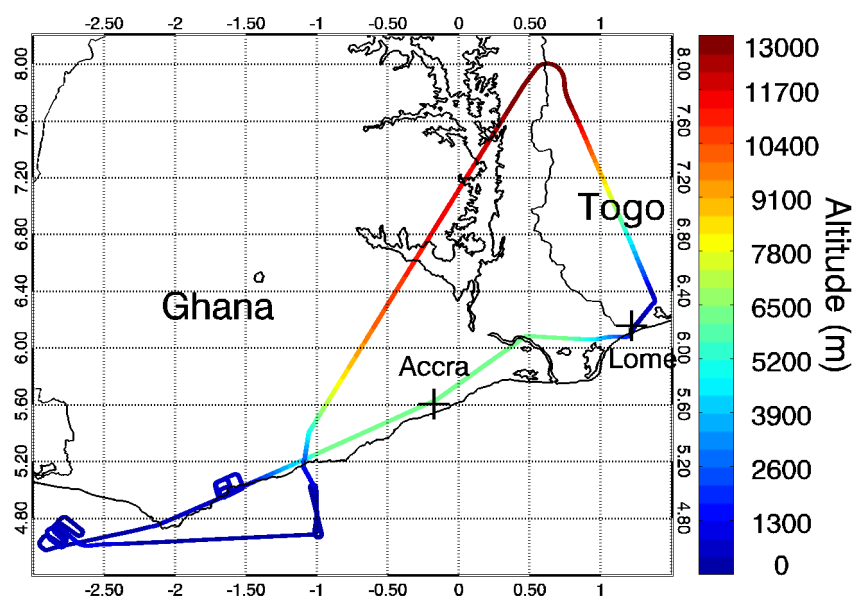


Figure A.2 — Représentation de la trajectoire de l'avion le 10 juillet 2016 en fonction de l'altitude.

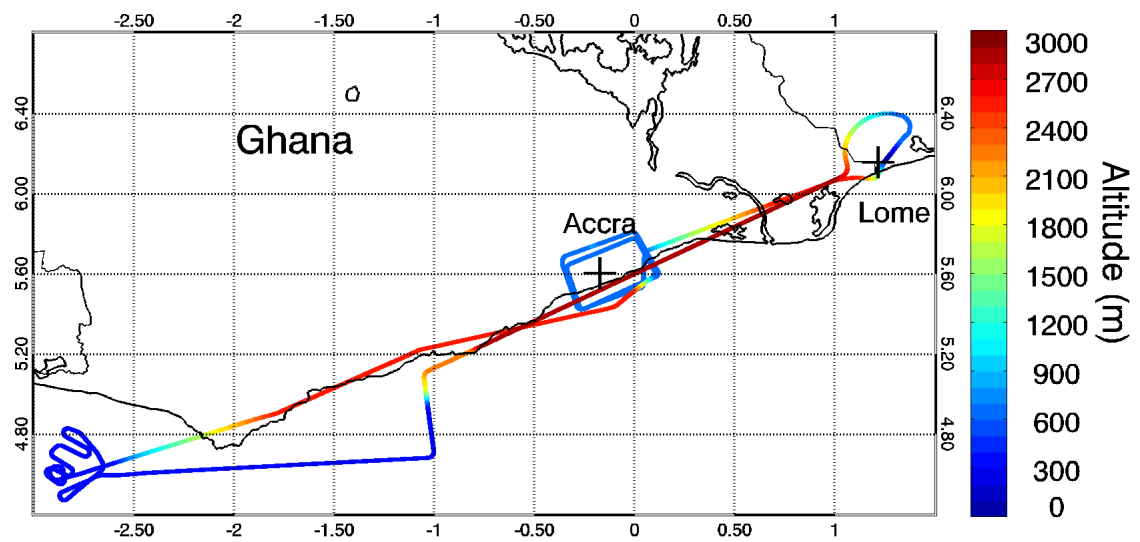


Figure A.3 — Représentation de la trajectoire de l'avion le 14 juillet 2016 en fonction de l'altitude.

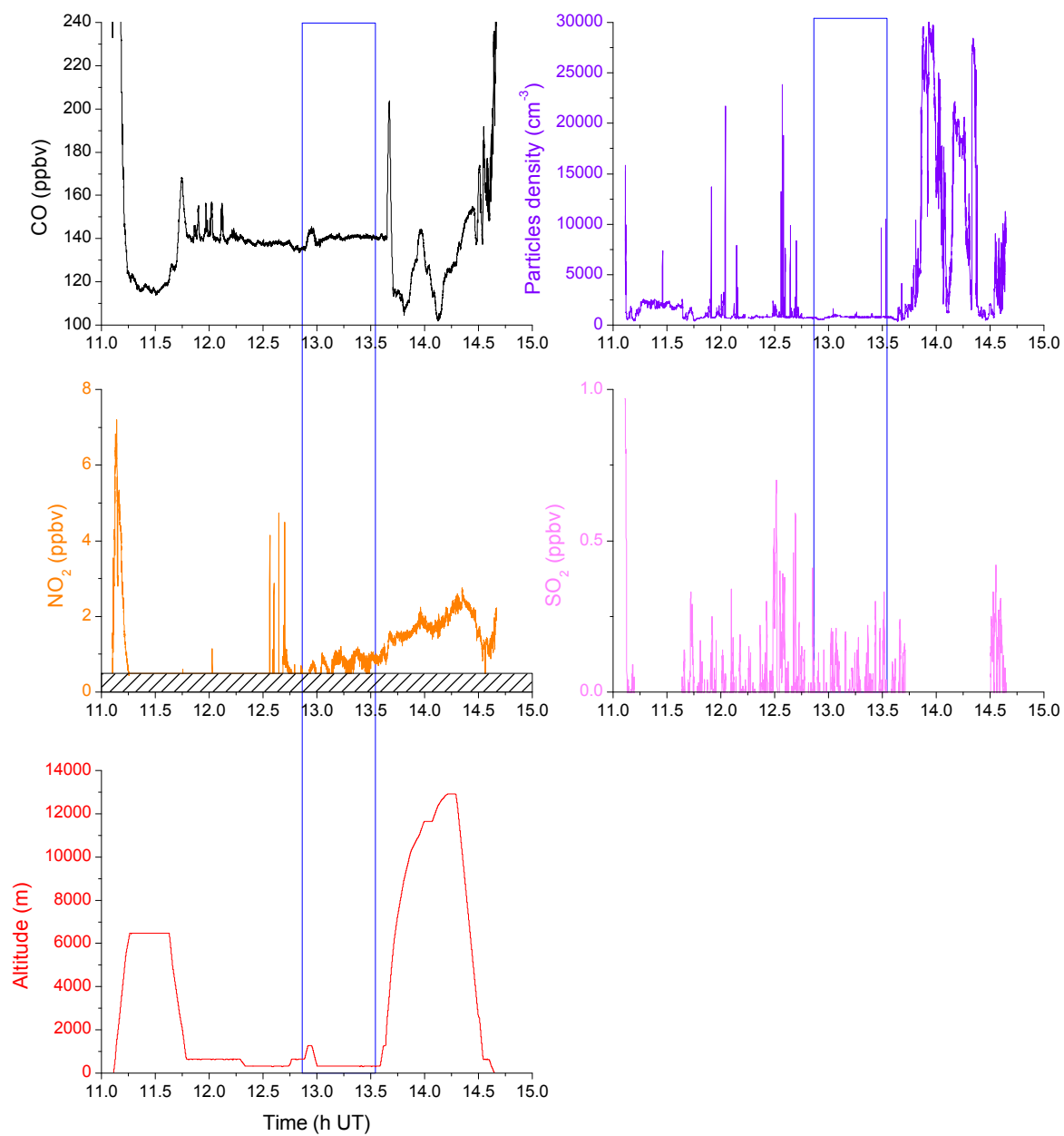


Figure A.4 — Mesures de CO (en noir), aérosols (en violet), NO₂ (en orange), SO₂ (en rose) et altitude (en rouge) en fonction du temps le 10/07/2016. L'encadré bleu correspond aux altitudes les plus basses de la trajectoire de l'avion en figure A.2, là où l'avion a longé le couloir maritime. La partie hachurée indique la limite de détection de l'instrument SPIRIT pour le NO₂

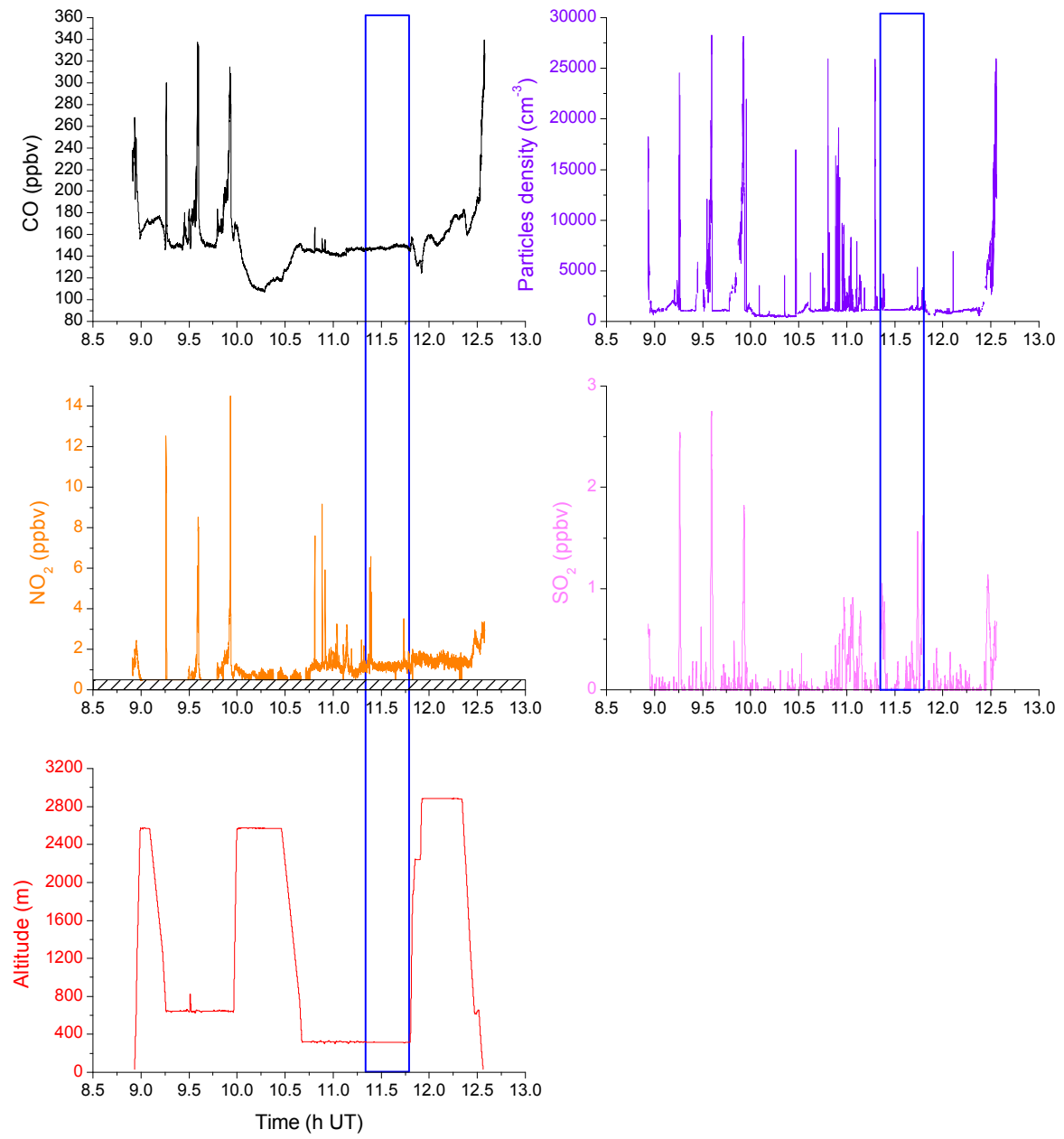


Figure A.5 — Mesures de CO (en noir), aérosols (en violet), NO₂ (en orange), SO₂ (en rose) et altitude (en rouge) en fonction du temps le 14/07/2016. L'encadré bleu correspond aux altitudes les plus basses de la trajectoire de l'avion en figure A.3, là où l'avion a longé le couloir maritime. La partie hachurée indique la limite de détection de l'instrument SPIRIT pour le NO₂

ANNEXE

B

Mesures des vols impactés par des feux de biomasse durant DACCIWA

Dans cette annexe figurent les mesures de tous les vols impactés par des émissions de feux tout au long de la campagne DACCIWA. Les mesures de CO, O₃, aérosols (mesures uniquement du CPC), CH₄, humidité relative (RH) et altitude sont données en fonction du temps. Sur chaque graphe, la partie grisée sert à identifier les pics dus aux feux de biomasse.

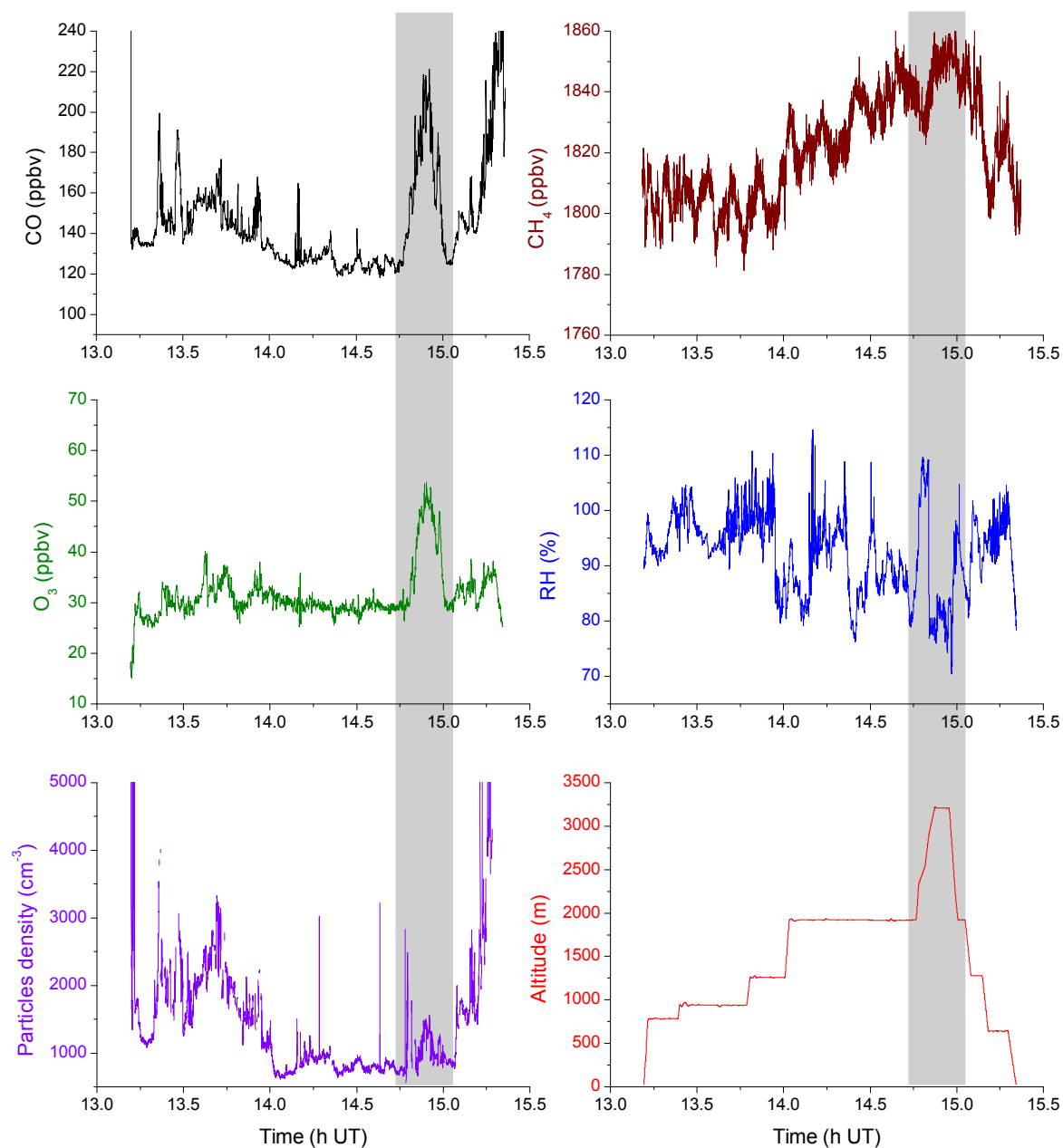


Figure B.1 — Mesures de CO (en noir), O₃ (en vert), aérosols (en violet), CH₄ (en bordeaux), humidité relative (en bleu) et altitude (en rouge) en fonction du temps le 29/06/2016.

La partie grisée met en évidence les pics identifiés comme dus aux feux de biomasse.

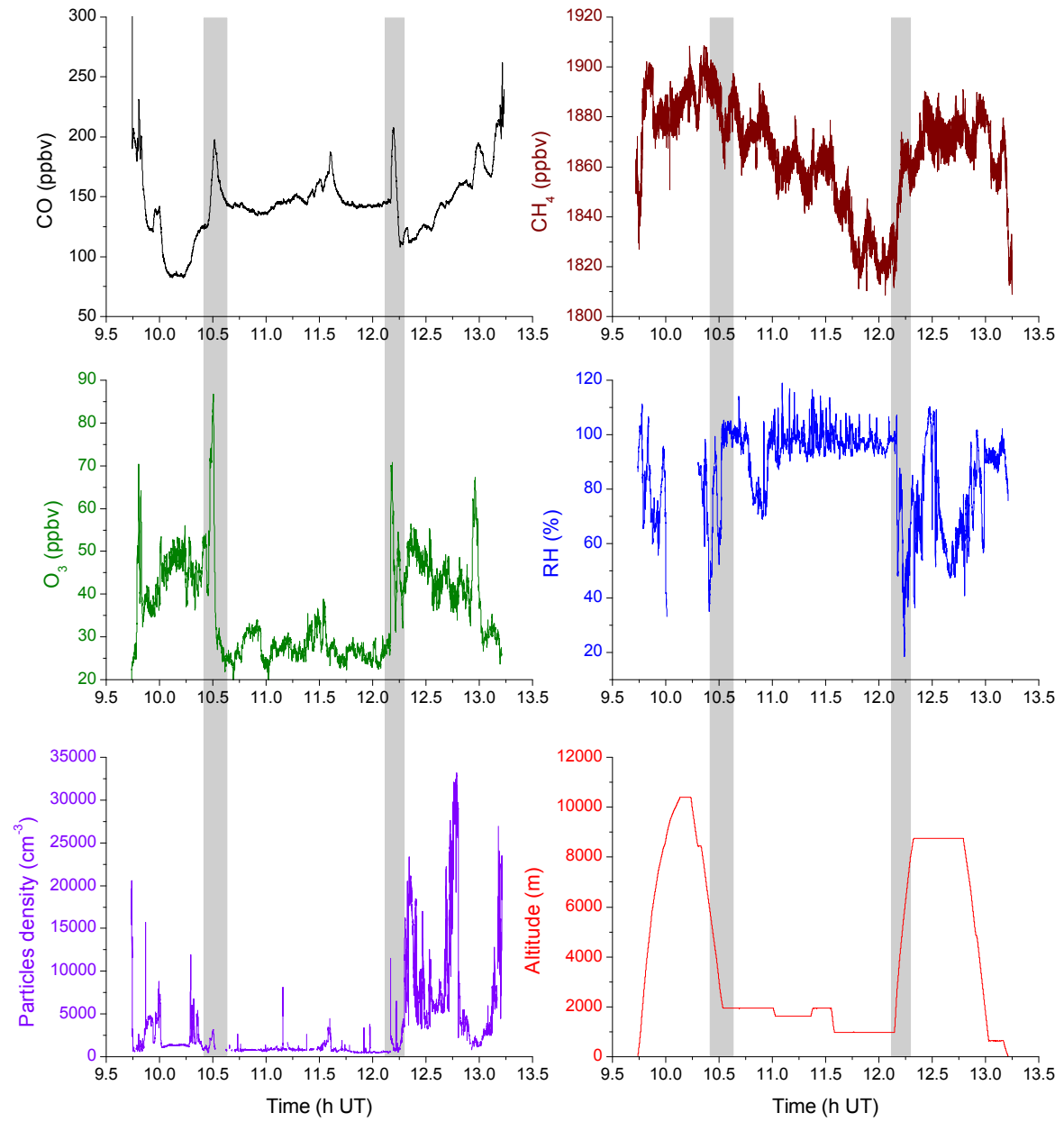


Figure B.2 — Idem à la figure B.1 pour le 06/07/2016.

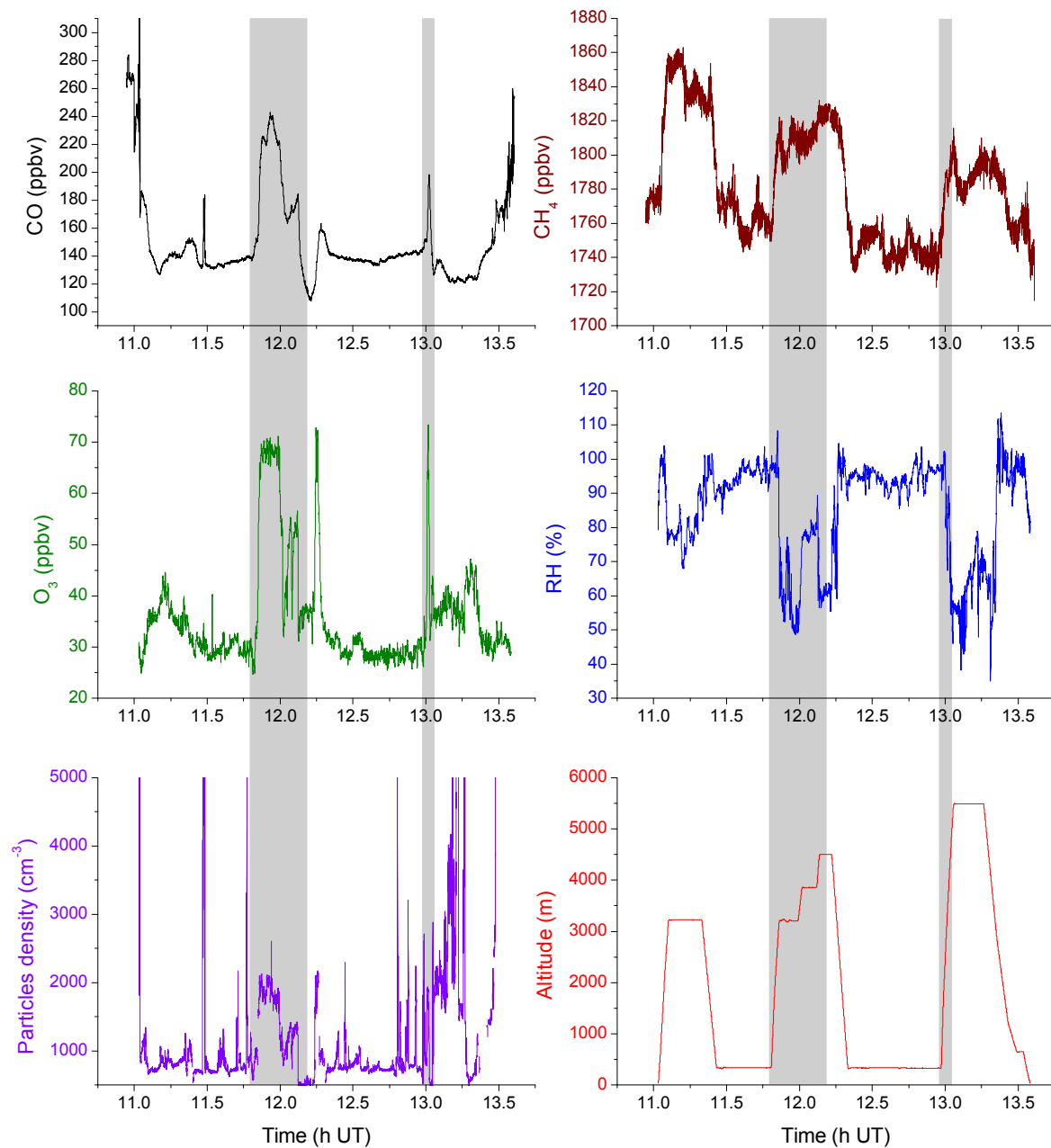


Figure B.3 — Idem à la figure B.1 pour le 07/07/2016.

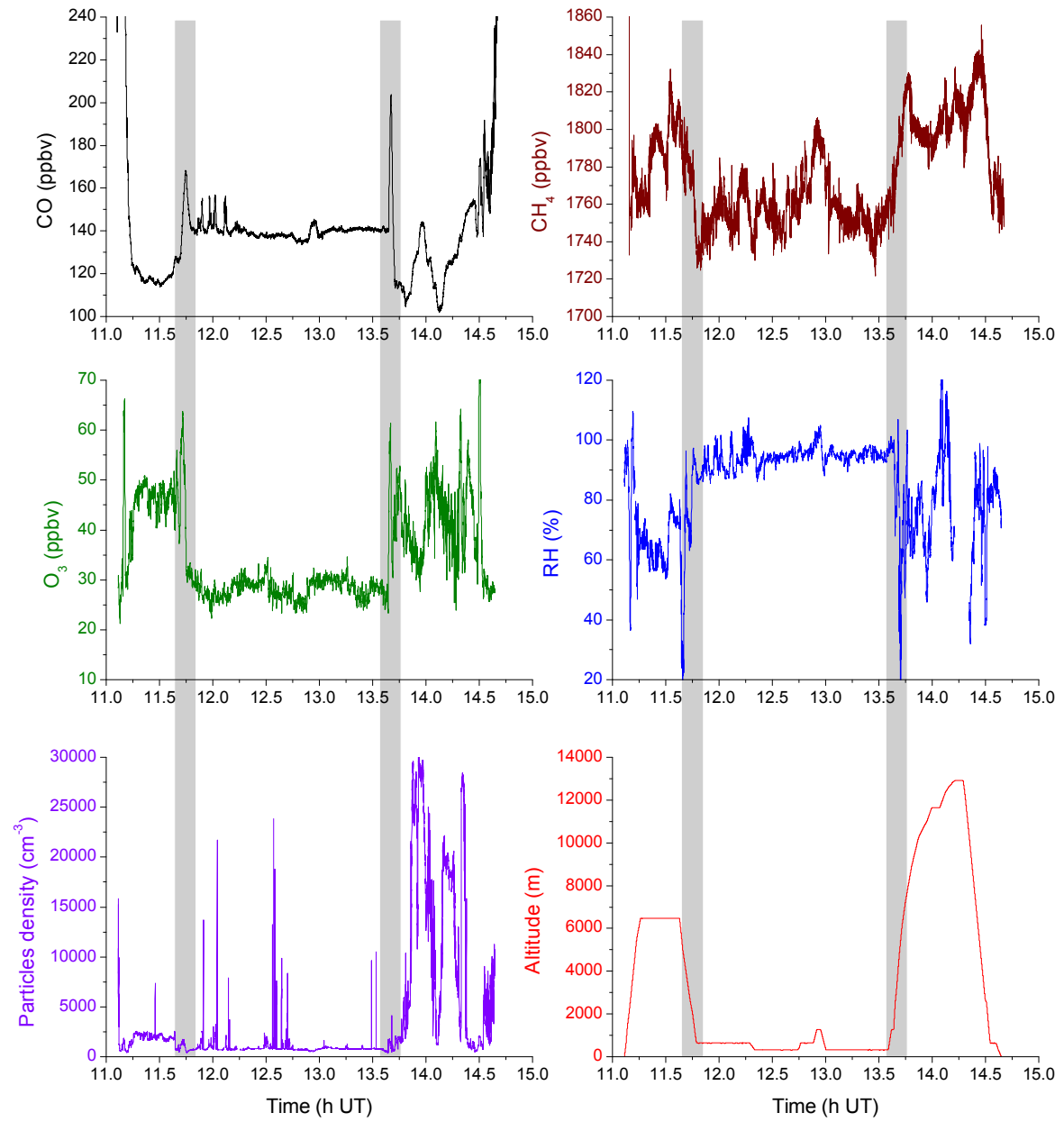


Figure B.4 — Idem à la figure B.1 pour le 10/07/2016.

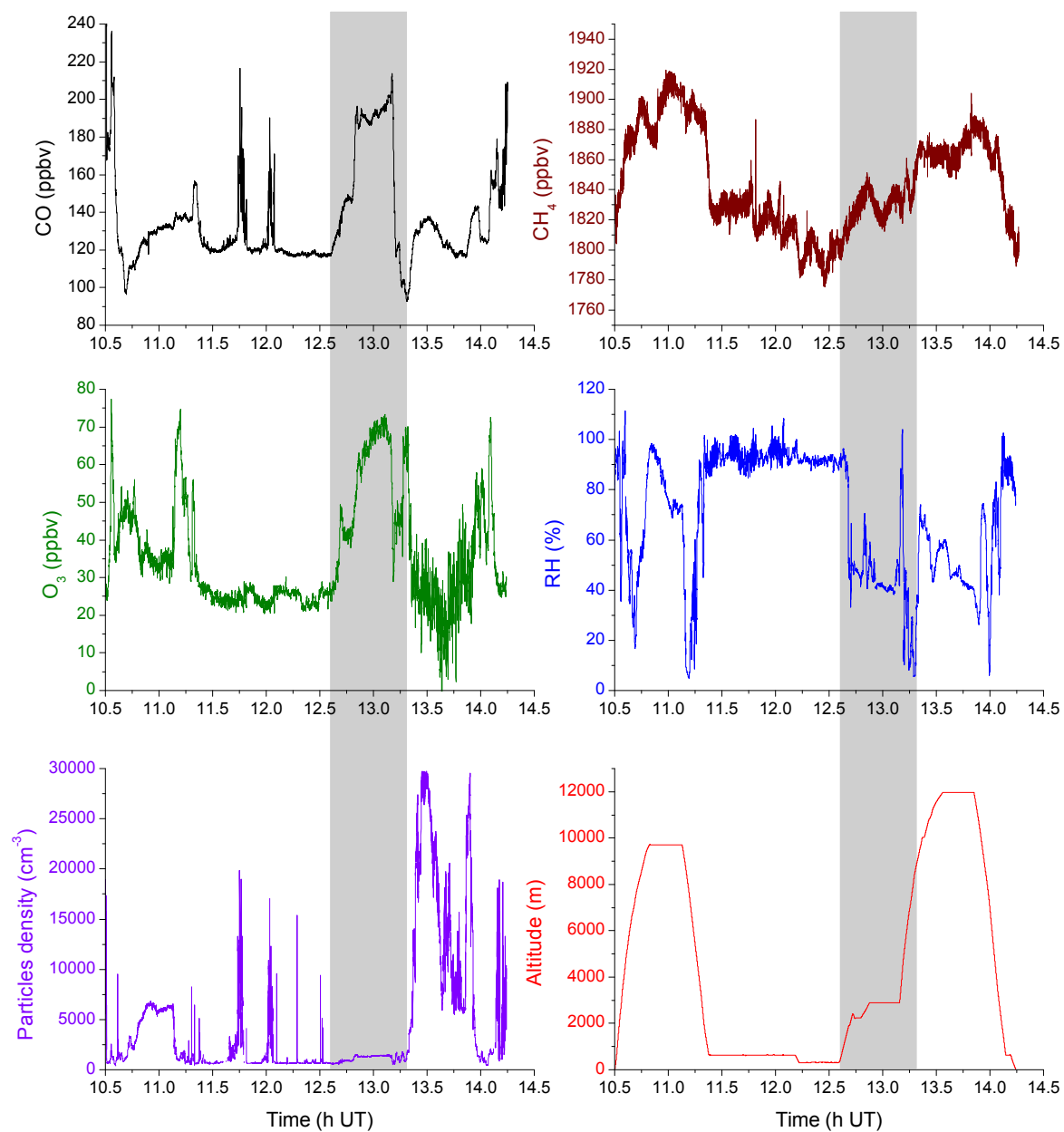


Figure B.5 — Idem à la figure B.1 pour le 11/07/2016.

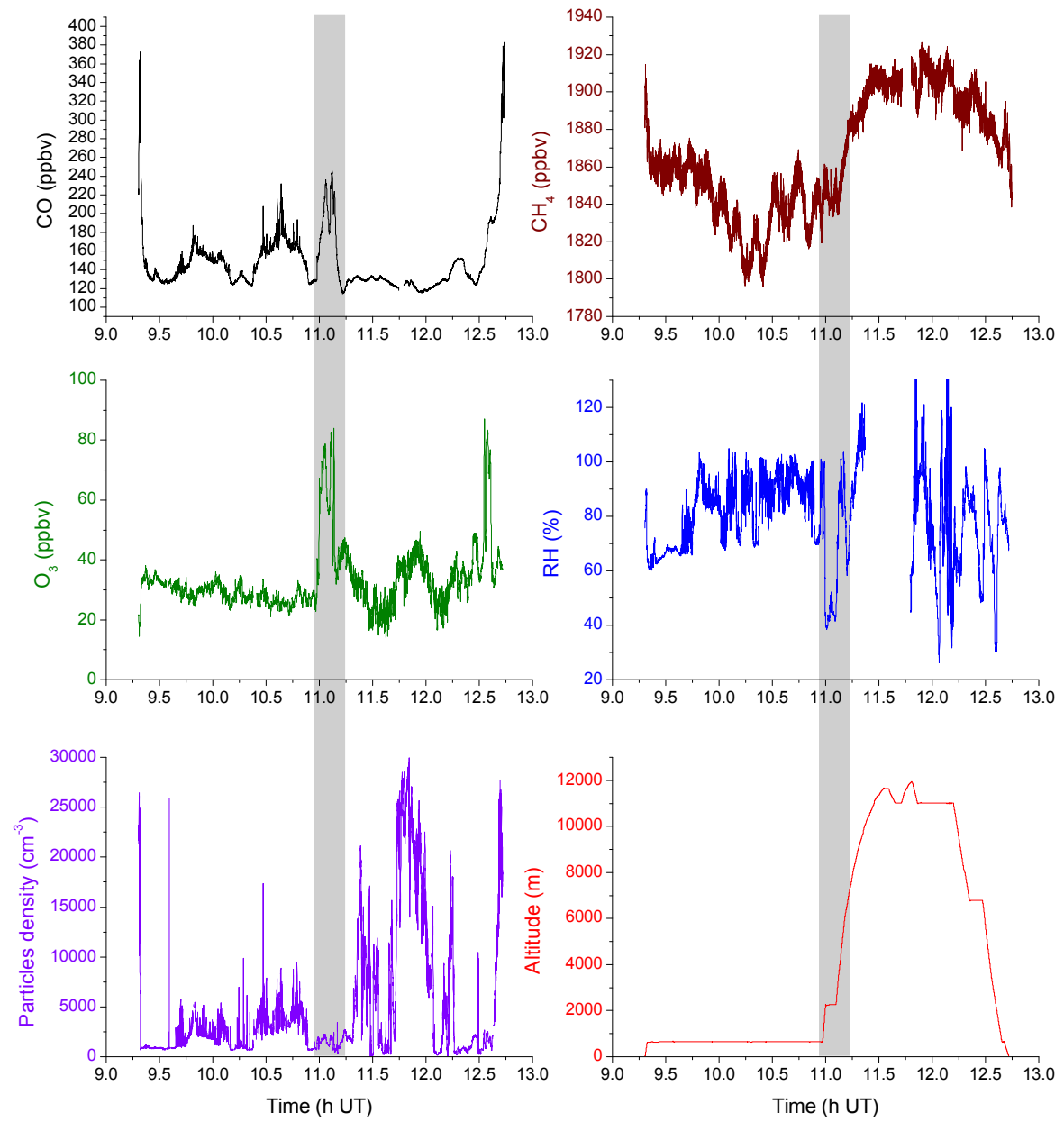


Figure B.6 — Idem à la figure B.1 pour le 13/07/2016.



Simulations

FLEXPART des feux de biomasse durant DACCIWA

Cette annexe présente les simulations effectuées avec FLEXPART afin de déterminer l'origine de la couche d'émissions par les feux de biomasse mesurée durant la campagne DACCIWA. Sont présentées, pour chaque jour de vol impacté et pour chaque pic :

- les cartes de sensibilité aux émissions : les rétro-trajectoires sont effectuées 20 jours en arrière à partir du jour du vol. Les cartes montrées correspondent au moment du pic mesuré (voir annexe [B](#))
- les cartes de contribution au CO par les feux de biomasse : ces cartes sont issues du couplage entre la sensibilité aux émissions et les émissions journalières de l'inventaire GFAS pour l'année 2016
- les cartes de contribution du CO anthropique : ces cartes sont issues du couplage entre la sensibilité aux émissions et les émissions annuelles globales de l'inventaire EDGAR pour l'année 2008 et l'inventaire DACCIWA centré sur l'Afrique pour l'année 2015.

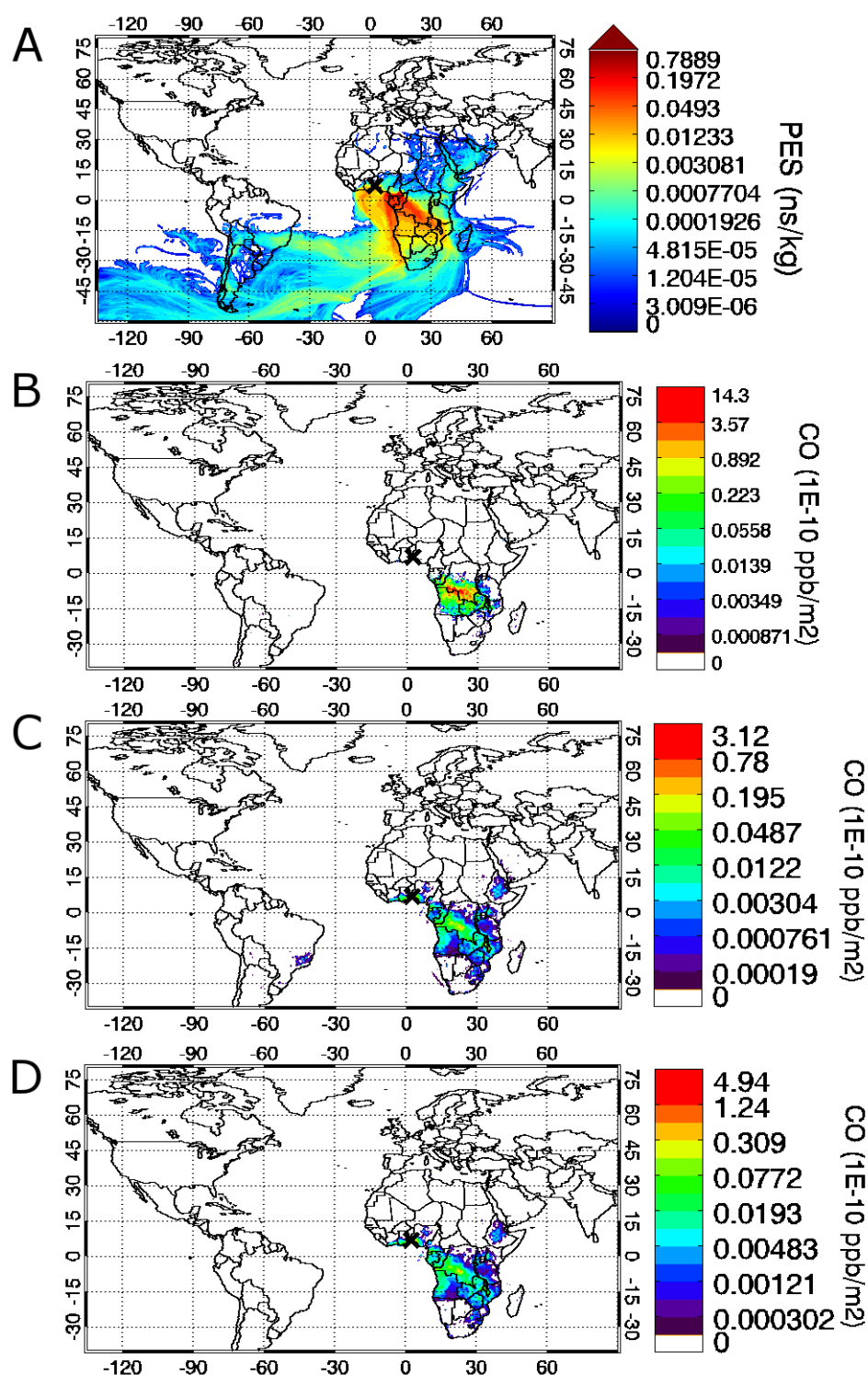


Figure C.1 — (A) Représentation de la sensibilité aux émissions, (B) représentation de la contribution du CO par les feux de biomasse par l'inventaire GFAS, (C) représentation de la contribution du CO anthropique par l'inventaire EDGAR et (D) représentation de la contribution du CO anthropique par l'inventaire DACCWA pour le vol du 29/06/2016. La croix noire désigne l'emplacement de l'avion.

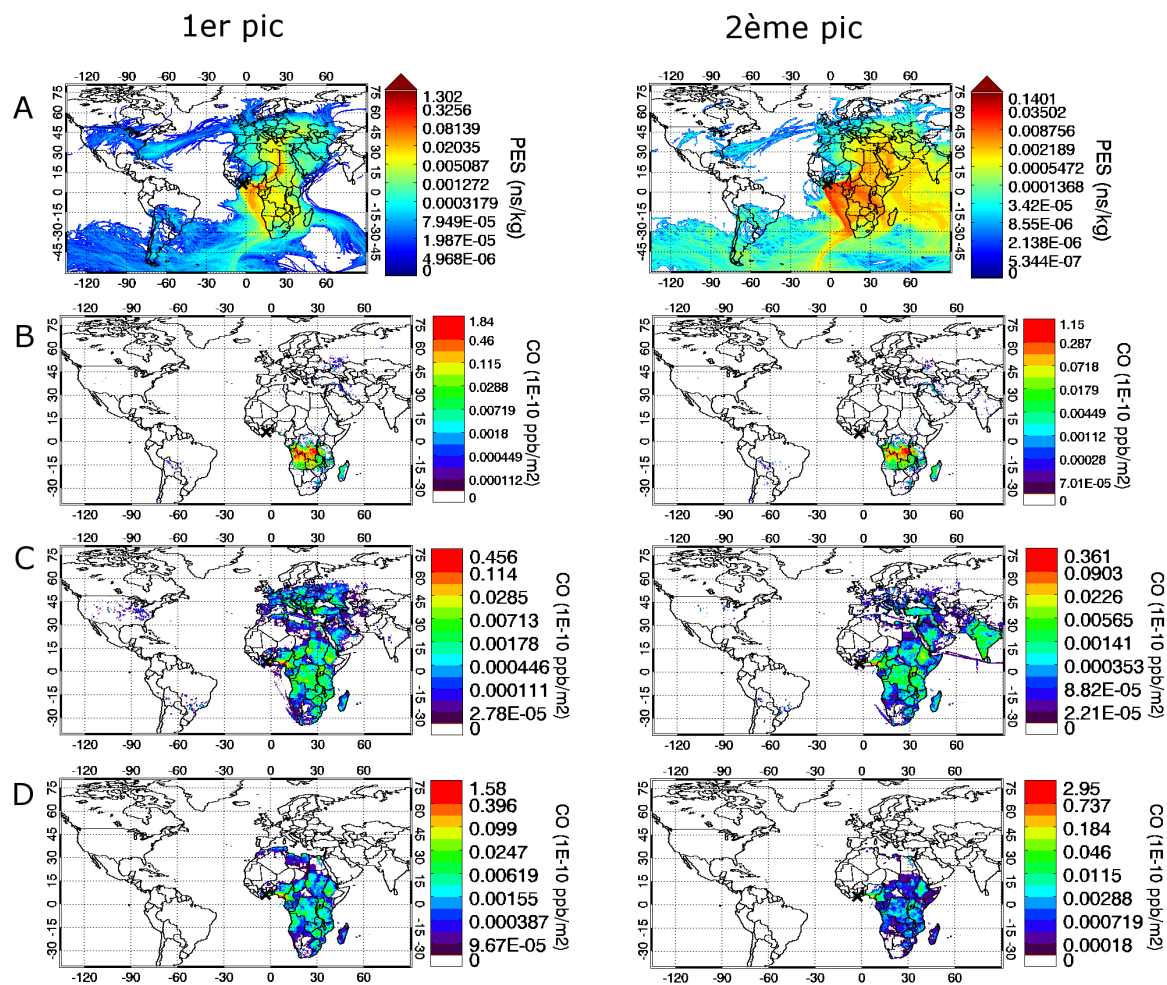


Figure C.2 — Idem à la figure C.1 pour le 06/07/2016. La première colonne représente les simulations du premier pic de la figure B.2 tandis que la deuxième colonne représente le deuxième pic.

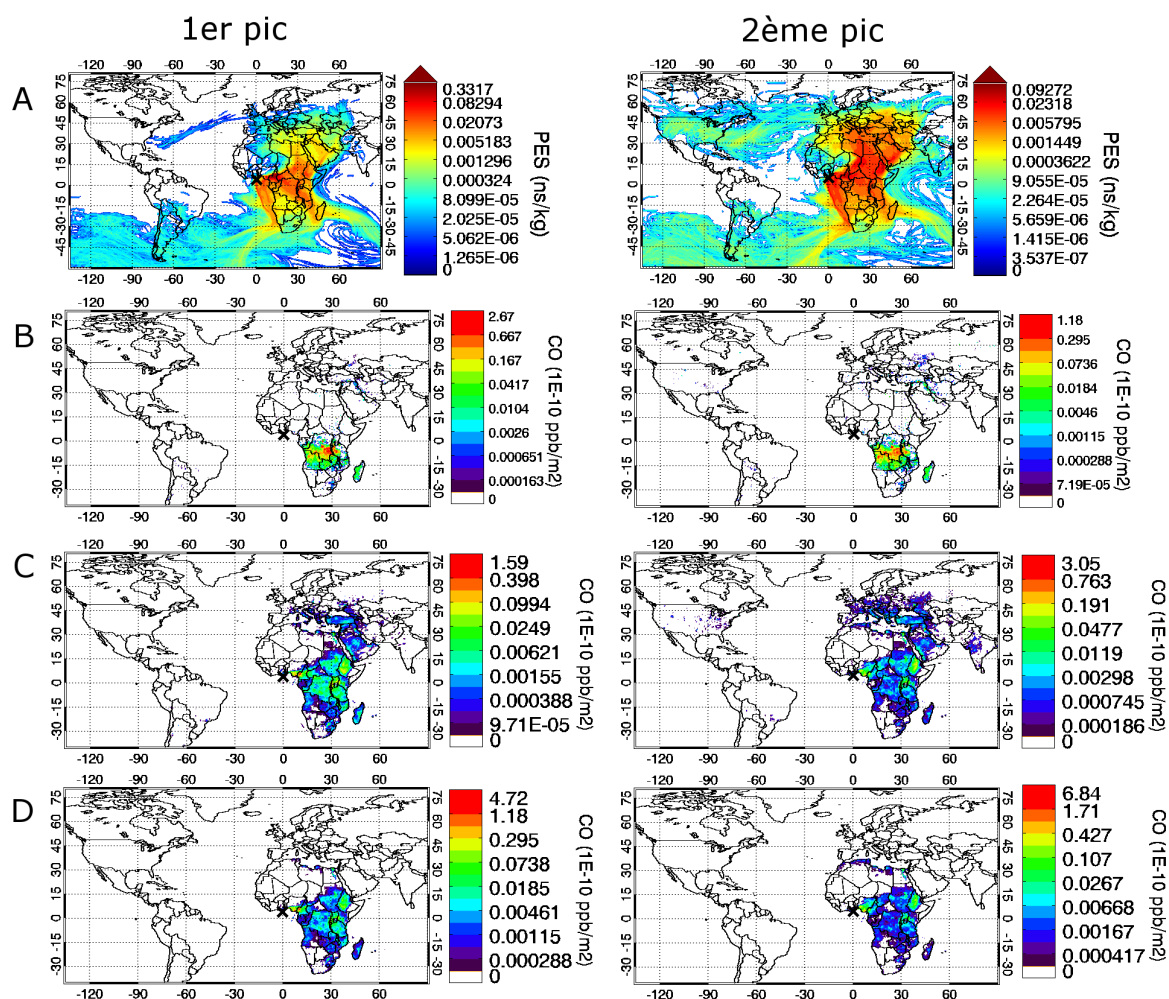


Figure C.3 — Idem à la figure C.2 pour le 07/07/2016.

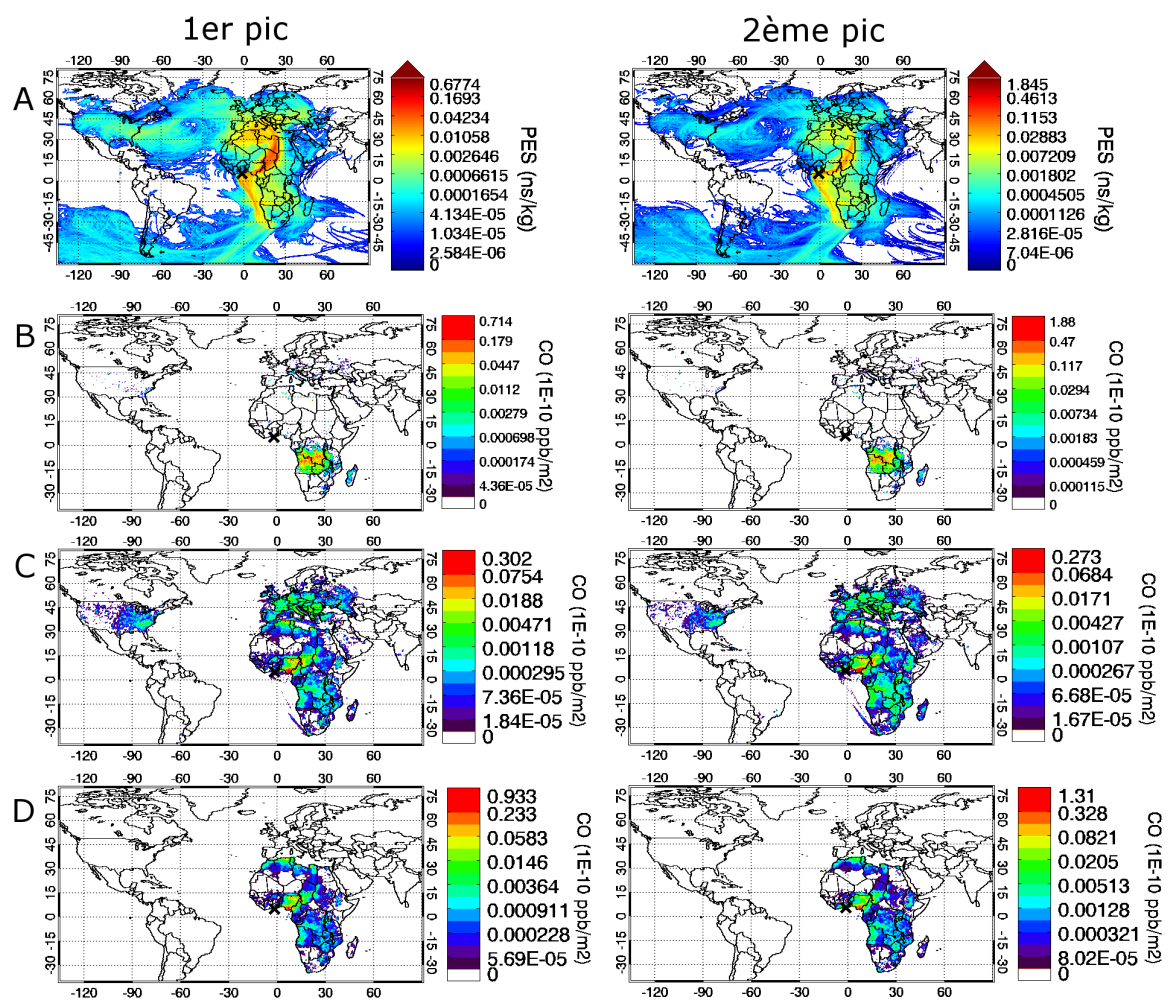


Figure C.4 — Idem à la figure C.2 pour le 10/07/2016.

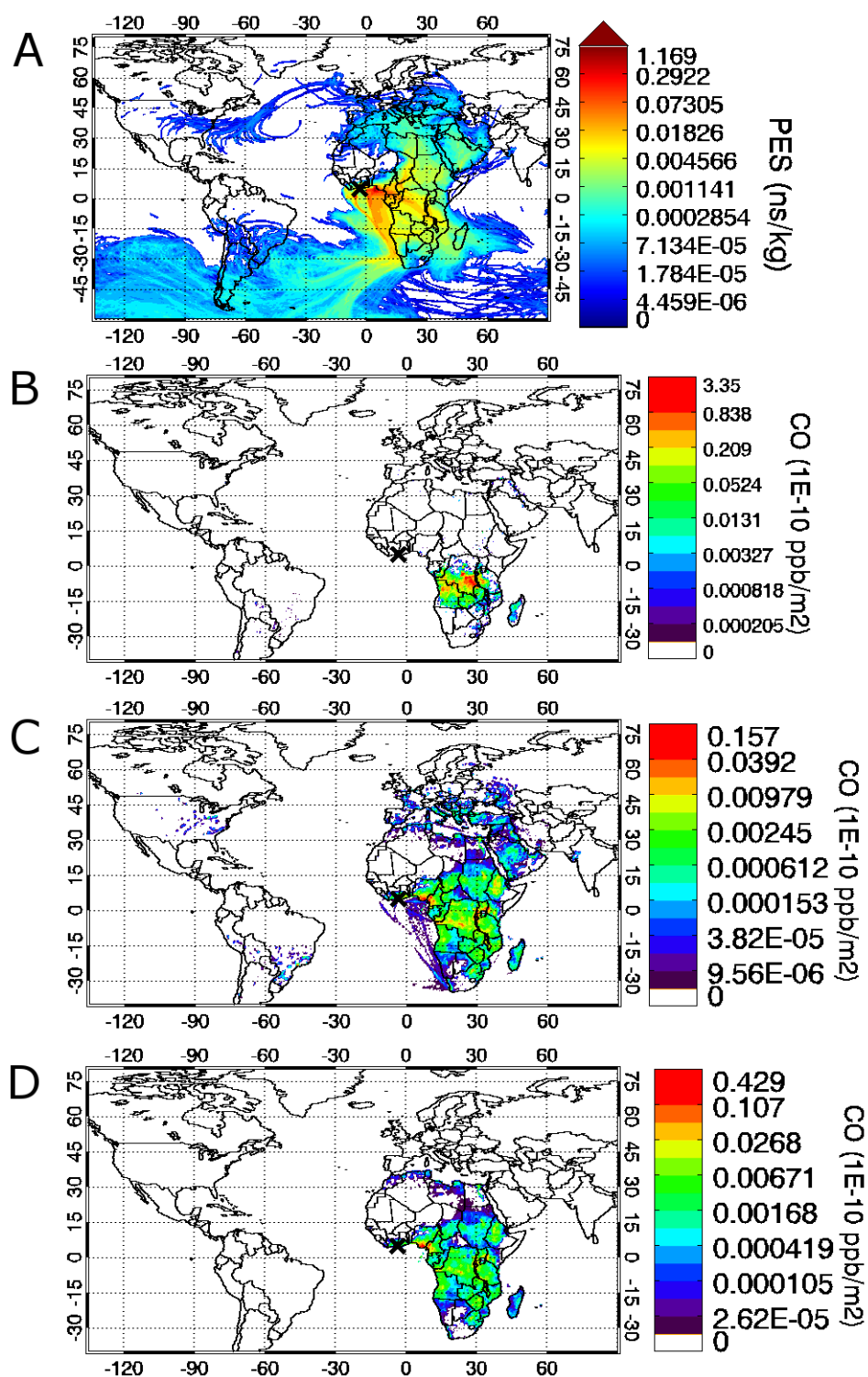


Figure C.5 — Idem à la figure C.2 pour le 11/07/2016.

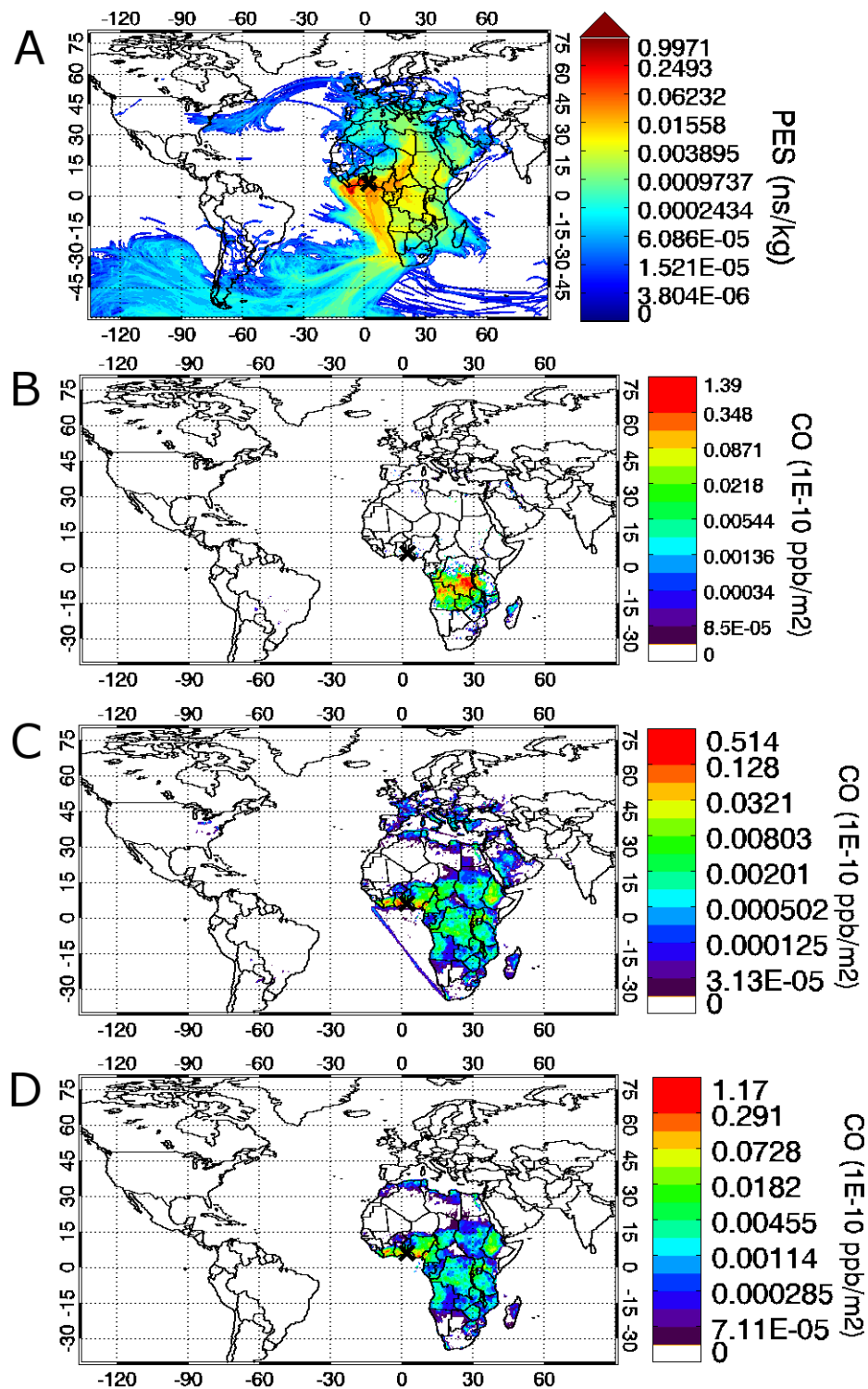


Figure C.6 — Idem à la figure C.2 pour le 13/07/2016.

Vanessa BROCCHI

Caractérisation de sources de pollution troposphérique en régions méditerranéenne et ouest-africaine par mesures in situ en avion et modélisation

Résumé :

L'étude de la pollution troposphérique inclut l'étude des gaz traces provenant de sources anthropiques diverses, dont l'impact varie de l'échelle locale à globale. Pour caractériser cette pollution, il est nécessaire de mesurer avec précision les concentrations en polluants. Dans le cadre de projets européens, trois campagnes aéroportées ont été conduites, dans le bassin méditerranéen, en Afrique de l'ouest et en Malaisie, pour mesurer différents types de polluants grâce, entre autres, à un spectromètre à lasers infrarouges, SPIRIT, capable de mesurer rapidement en ligne de faibles variations de NO₂ et CO. Les jeux de données de ces gaz traces (et d'autres) ont été combinés avec un modèle lagrangien de dispersion de particules, FLEXPART, pour identifier différentes sources de pollution locales et régionales de l'air. Cette thèse présente ainsi les mesures et le travail de modélisation entrepris afin de définir les sources de pollution de chaque région. Il a été montré que le bassin méditerranéen a été impacté, de la moyenne à la haute troposphère pendant l'été, par des émissions de feux de biomasse venant de Sibérie et du continent nord-américain. Les régions ouest-africaine et malaisienne sont aussi impactées par des émissions de feux de biomasse transportées depuis l'Afrique centrale dans le premier cas, et de feux locaux dans le second. En outre, ces régions sont influencées par des émissions provenant de l'exploitation du pétrole et du trafic maritime. FLEXPART a été utilisé afin d'identifier l'origine des pics de pollution mesurés au cours des campagnes. Nous avons ainsi montré que les conditions atmosphériques, qui définissent la hauteur d'injection du panache de la plateforme pétrolière, ainsi que le flux d'émission sont des paramètres clés dans la caractérisation des mesures par le modèle.

Mots clés : gaz traces, troposphère, transport à longue distance de pollution, modélisation atmosphérique lagrangienne, mesures in situ en avion, spectrométrie laser, feux de biomasse, torchage, trafic maritime

Characterisation of tropospheric pollution sources in the Mediterranean and West African regions by airborne in situ measurements and modelling

Summary :

The study of tropospheric pollution includes the study of trace gases coming from various anthropogenic sources that can impact scales ranging from local to global. To characterise this pollution, it is necessary to be able to measure with precision pollutant concentrations. Within the frame of European projects, three airborne campaigns in the Mediterranean Basin, in West Africa and in Malaysia were conducted to measure different types of pollutants thanks to, among others, an infrared laser spectrometer, SPIRIT, able to rapidly measure on-line small variations in NO₂ and CO. The data sets of these trace gases (and others) have been combined with a Lagrangian model of particle dispersion, FLEXPART, to fingerprint different sources of local and regional air pollution. Thus, this thesis presents the measurements and the modelling work undertaken in order to define the sources of pollution of each region. It has been shown that the Mediterranean Basin was impacted, in the mid to upper troposphere during summer, by biomass burning emissions coming from Siberia and the Northern American continent. West African and Malaysian regions are also impacted by biomass burning emissions transported from central Africa in the first case, and from local fires in the second. In addition, those regions are influenced by emissions coming from oil exploitation and maritime traffic. FLEXPART was used in order to identify the origin of the pollution peaks measured during the campaigns. It has been shown that atmospheric conditions, which define the injection height of the oil platform plume, and also the emission flux are key parameters in the characterisation of the measurements by the model.

Keywords: trace gases, troposphere, long-range transport of pollution, Lagrangian atmospheric modelling, aircraft in situ measurements, laser spectrometry, biomass burning, flaring, maritime traffic



LPC2E-CNRS
3A avenue de la Recherche Scientifique
45071 Orléans Cedex 2, FRANCE

