

Smog estival en Suisse observations aériennes 1990 à 1992

Summer smog in Switzerland airborne measurements 1990 to 1992

Dr Bruno NEININGER (*), Dr Olivier LIECHTI (**)

RÉSUMÉ

Dans ce rapport les résultats de vols de prélèvement de la qualité de l'air sont discutés. Ces vols ont eu lieu pendant les mois d'été des années 1990 à 1992. Les investigations concernent le Plateau suisse, en particulier la région de Genève, et le versant sud des Alpes suisses afin de documenter et d'analyser les concentrations d'ozone et leurs différences régionales. Les après-midi d'été les concentrations d'ozone excèdent fréquemment les limites prescrites. Quelques processus importants pour la production et la diffusion d'ozone dans les couches inférieures de l'atmosphère sont présentés, basés sur des observations aériennes et terrestres. Une étude détaillée de la qualité de l'air traite abondamment la situation particulière du Tessin situé au nord de la plaine lombarde. Deux résultats principaux ont été obtenus pour les charges maximales d'ozone. D'une part les concentrations maximales d'ozone sont atteintes l'après-midi dans la couche convective de l'atmosphère. D'autre part des concentrations (ou émissions) d'oxydes d'azote plus élevées mènent à des charges d'ozone plus élevées dans toutes les régions, du moins à l'écart des émissions. En plus les résultats obtenus, entre autres par modélisation numérique, montrent l'influence critique de la topographie sur la convection, et par cela sur la diffusion de la pollution atmosphérique.

ABSTRACT

In this report the results of air pollution research flights are discussed. They took place between 1990 and 1992 above the Swiss Plateau, with an emphasis on the western part near Geneva, and south of the Alps. The main aim was to document and to analyze regional differences in the peak ozone concentration during hot summer days with photochemical smog. Some relevant processes for the daily cycle of the boundary layer and its ozone content are illustrated with observations. An extended case study deals with the special conditions in Ticino, at the interface between the Lombard plain and the southern foothills of the Alps. Two major results were obtained. On the one hand the mid-afternoon peak ozone concentrations occur in the mixed layer near the surface. On the other hand higher nitrogen oxide concentrations (emissions) lead to higher peak ozone concentrations (and vice versa). Exceptions may be found close to intense sources of pollution where ozone production may be inhibited by NOx emissions. Further results including numerical modelling show the critical influence of orography on convection, and therefore on the dilution and transport of pollutants.

Introduction

Dans les situations de smog estival, les charges d'ozone sur l'ensemble du territoire suisse se situent au-dessus des valeurs limites, les dépassant parfois considérablement [1]. Afin de compléter les observations aériennes effectuées dans le cadre du programme scientifique POLLUMET, l'Office fédéral de l'environnement, des forêts et du paysage (OFEFP) a chargé MetAir de prélever les charges de la pollution atmosphérique dans la région de Genève et au Tessin, au versant sud des Alpes suisses [2].

(*) MetAir AG, CH-8308 Illnau.

(**) Analysen & Konzepte, CH-8463 Benken.

Les buts de la démarche étaient :

- l'observation de la distribution verticale et horizontale des charges d'ozone et de dioxyde d'azote dans les situations de smog estival ;
- d'identifier les différences systématiques de ces charges au Tessin le long d'un axe nord-sud ;
- d'identifier les différences systématiques de ces charges le long de l'axe Genève-Payerne sur le Plateau suisse ;
- d'identifier ces charges le long des frontières nationales ;
- de mesurer, si possible, le flux d'ozone à travers la frontière franco-suisse et italo-suisse ;
- de comparer les observations aériennes avec les observations faites au sol.

Ce rapport présente les résultats de l'ensemble des observations estivales faites entre 1990 et 1992 au-dessus du territoire suisse et de quelques régions voisines.

2. Méthodes d'étude

2.1. Observations au sol

Les paramètres chimiques et météorologiques disponibles au sol proviennent d'une part des réseaux nationaux (ANETZ, NABEL) et cantonaux (Genève, Vaud, Grisons, Tessin). D'autre part, l'Institut de la physique de l'atmosphère, École polytechnique fédérale de Zurich, a fourni des observations chimiques (NO , NO_2 , O_3 , H_2O_2 , COV) obtenu au sommet du Mont San Salvatore, situé près de Lugano (Tessin).

2.2. Observations aériennes

Un réseau de stations terrestres permet bien de suivre les immissions et de les comparer avec les valeurs limites fixées afin d'éviter des effets nuisibles. Cependant la connaissance de la distribution spatiale des polluants est indispensable afin de saisir les processus responsables de la formation, de la diffusion et de l'élimination des polluants.

La formation et l'élimination d'ozone sont dues à des processus chimiques, tandis que la diffusion est plutôt de nature physique. La diffusion est liée aux processus aérologiques. Ceci implique la connaissance des paramètres météorologiques et de leur distribution, non seulement horizontale mais encore verticale. À l'aide de ballons captifs il est possible d'étendre à la verticale les observations terrestres. L'extension horizontale des observations aériennes exige l'opération d'avions spécialisées.

Les observations aériennes comprennent les paramètres aéronautiques (position, altitude, vitesse de vol, cap), météorologiques (pression, température, humidité, vent, visibilité) et chimiques (oxydes d'azote, ozone, oxyde de soufre, peroxyde d'hydrogène, COV). La plupart des vols ont été effectués par un planeur à moteur du type « Stemme S-10 » (MetAir) capable de mesurer en continu les paramètres aéronautiques, météorologiques et les charges d'ozone et de dioxyde d'azote. Le reste des observations aériennes ont été faites avec un avion « Beechcraft Queen-Air Be-65 » (DLR) [4]. Notez que toutes les valeurs chimiques sont indiquées en ppb.

2.3. Calibration des instruments

Durant les périodes d'observations de POLLUMET, les instruments chimiques à bord des avions ont été systématiquement comparés avec des standards d'étalonnage mobiles [5]. Lors de la période d'observation de TRACT en septembre 1992 (Vosges - Forêt noire) les instruments chimi-

ques du S-10 ont été comparés à des standards d'étalonnage internationaux.

Pour l'ozone, les déviations étaient de 1,6 % à 50 ppb et de 4,4 % à 500 ppb en 1992 [6]. Lors de POLLUMET 1993, la comparaison des prélèvements d'ozone entre le S-10 et l'avion américain du National Centre for Atmospheric Research (NCAR) était également excellente [7]. Toutes ces comparaisons internationales confirment que les valeurs d'ozone publiées dans cet article sont exactes à 5 % près.

Les valeurs obtenues pour les charges de dioxyde d'azote sont en partie moins précises en raison de la faible sensibilité de la méthode luminol à des charges d'ozone [8] (0,5 %, donc 100 ppb d'ozone apparaissent comme 0,5 ppb de NO_2) et, plus important, à des charges de PAN [2] (50 %, donc 1 ppb de PAN (peroxyacétylnitrate) apparaissent comme 0,5 ppb de NO_2). Pour le Plateau suisse (versant nord des Alpes), la charge maximale d'ozone de 140 ppb et le maximum de 1 ppb de PAN correspondent à une incertitude pour le NO_2 de 1,2 ppb au pire. Au versant sud des Alpes (plaine lombarde), la situation est différente, due aux charges de PAN nettement supérieures à 1 ppb, atteignant jusqu'à 9 ppb. Il est donc possible que les charges de dioxyde d'azote rapportées pour la plaine lombarde soient trop élevées de 5 ppb au maximum.

La précision des observations météorologiques et aéronautiques est nettement supérieure à celle des mesures chimiques. La structure verticale de l'atmosphère en fin d'après-midi sous conditions convectives doit être homogène. La convection est le processus dominant pour la diffusion verticale non seulement des polluants mais encore d'humidité. La qualité excellente de l'ensemble des observations aériennes par avion apparaît de façon convaincante dans les observations de cette structure verticale. Un exemple en est présenté pour le 18 juillet 1992 mesuré dans la région de Stabio près de la frontière italo-suisse (fig. 1). Tous les paramètres mesurés sont homogènes du sol à 1 500 m d'altitude (couche convective). Au-dessus, les charges d'ozone et de dioxyde d'azote diminuent ainsi que l'humidité. Le profil de la température potentielle indique que la couche convective en-dessous de 1 500 m est neutre et que la couche supérieure est stable.

2.4. Situation météorologique, disposition des vols

La situation météorologique typique des observations effectuées était un régime de haute pression. Pendant toutes les campagnes de prélèvements il n'y a eu aucun cas d'intrusion d'ozone stratosphérique. L'intérêt principal s'est concentré sur les processus dans les 3 km inférieurs de l'atmosphère et à une échelle horizontale d'environ cent km, donc la partie de l'atmosphère qui peut

Ascent Stabio
Jul-18-1992 16:21:02 - 16:34:58 LT
1920718b.dat Version 1993/10/16 21:36

MetAir

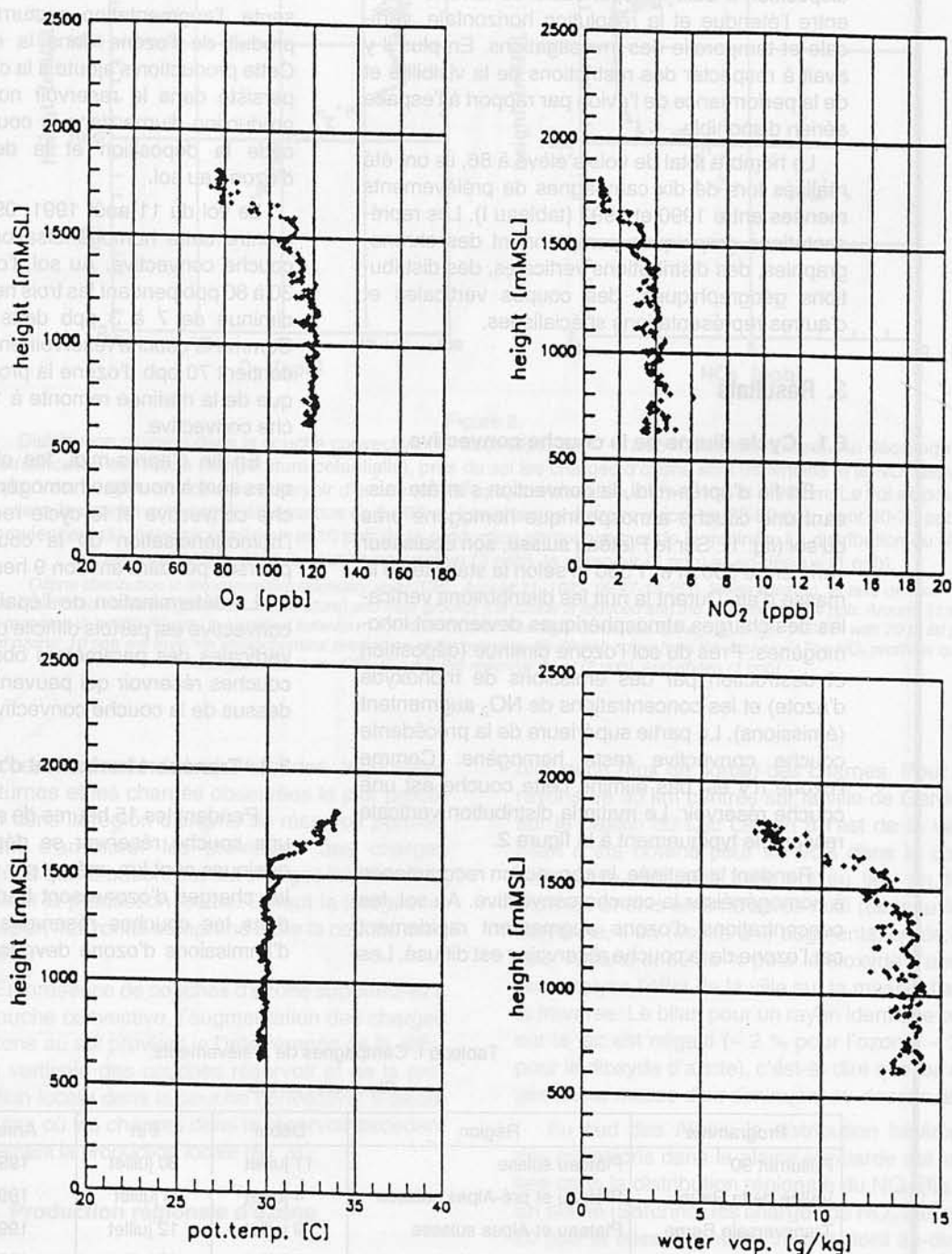


Figure 1.

Structure verticale de l'atmosphère en fin d'après-midi du 18 juillet 1992 au bord de la plaine lombarde. Tous les paramètres (ozone, dioxyde d'azote, température potentielle, rapport de mélange) sont homogènes dans la couche convective qui s'étend du sol à 1 500 m d'altitude. Cet exemple montre indirectement que toutes les corrections de pression et de température qui ont été appliquées sont correctes. Autrement une telle homogénéité simultanée des différents paramètres n'apparaîtrait pas.

Vertical structure of the atmosphere at the northern border of the Lombard plain in the late afternoon of July 18, 1992. All parameters (ozone, nitrogen dioxide, potential temperature, mixing ratio) are homogeneous in the convective boundary layer extending from the ground to 1500 mMSL. Indirectly this example shows that all applied corrections for pressure and temperature should be correct. Otherwise such simultaneously homogeneous distributions of the different parameters could not be obtained.

être échangée par périodes prolongées de beaux temps.

La disposition des vols avait comme but d'obtenir la distribution spatiale des immissions et des paramètres météorologiques. Avec un seul avion à disposition il était indispensable de faire le choix entre l'étendue et la résolution horizontale, verticale et temporelle des investigations. En plus il y avait à respecter des restrictions de la visibilité et de la performance de l'avion par rapport à l'espace aérien disponible.

Le nombre total de vols s'élève à 86, ils ont été réalisés lors de dix campagnes de prélèvements menées entre 1990 et 1992 (tableau I). Les représentations graphiques comprennent des chronographies, des distributions verticales, des distributions géographiques, des coupes verticales et d'autres représentations spécialisées.

3. Résultats

3.1. Cycle diurne de la couche convective

En fin d'après-midi, la convection s'arrête laissant une couche atmosphérique homogène près du sol (fig. 1). Sur le Plateau suisse, son épaisseur varie entre 500 m et 1 500 m selon la stabilité de la masse d'air. Durant la nuit les distributions verticales des charges atmosphériques deviennent inhomogènes. Près du sol l'ozone diminue (déposition et destruction par des émissions de monoxyde d'azote) et les concentrations de NO_2 augmentent (émissions). La partie supérieure de la précédente couche convective reste homogène. Comme l'ozone n'y est pas éliminé cette couche est une couche réservoir. Le matin la distribution verticale ressemble typiquement à la figure 2.

Pendant la matinée, la convection recommence à homogénéiser la couche convective. Au sol, les concentrations d'ozone augmentent rapidement car l'ozone de la couche réservoir y est diffusé. Les

concentrations de NO_2 commencent à diminuer au sol aussitôt que la diffusion convective excède les émissions.

L'accumulation nocturne de précurseurs d'ozone près du sol est également diffusée dans la couche convective. Avec la radiation solaire présente, l'augmentation nocturne des précurseurs produit de l'ozone dans la couche convective. Cette production s'ajoute à la charge d'ozone qui a persisté dans le réservoir nocturne. Souvent la production diurne dans la couche convective excède la déposition et la destruction nocturne d'ozone au sol.

Le vol du 11 août 1991, 09:47-12:35 h (fig. 2) montre cette homogénéisation matinale dans la couche convective. Au sol, l'ozone augmente de 30 à 80 ppb pendant les trois heures du vol. Le NO_2 diminue de 7 à 3 ppb dans la même période. Comme la couche réservoir entre 1 000 et 1 900 m contient 70 ppb d'ozone la production photochimique de la matinée remonte à 10 ppb dans la couche convective.

En fin d'après-midi, les charges atmosphériques sont à nouveau homogénéisées dans la couche convective et le cycle recommence. En été, l'homogénéisation de la couche convective se poursuit pendant environ 9 heures.

La détermination de l'épaisseur de la couche convective est parfois difficile dans les distributions verticales des paramètres observés à cause des couches réservoir qui peuvent être présentes au-dessus de la couche convective.

3.2. Transport horizontal d'ozone

Pendant les 15 heures de son existence isolée, une couche réservoir se déplace facilement de quelques cent km, même par vent faibles. La nuit, les charges d'ozone sont transportées avant tout dans les couches réservoirs. Toutes prévisions d'immissions d'ozone devraient tenir compte des

Tableau I. Campagnes de prélèvements.

Observation periods

Programme	Région	Début	Fin	Année	Vols
Pollumet 90	Plateau suisse	11 juillet	30 juillet	1990	24
Vallée de la Reuss	Plateau et pré-Alpes suisses	4 juillet	6 juillet	1991	6
Transversale Berne	Plateau et Alpes suisses	9 juillet	12 juillet	1991	8
TESSIN 91	Versant sud des Alpes	15 juillet	18 juillet	1991	7
GENÈVE 91	Plateau suisse	10 août	13 août	1991	7
NAPF	Plateau suisse	9 juin	3 juillet	1992	5
TESSIN 92	Versant sud des Alpes	16 juillet	20 juillet	1992	8
GENÈVE 92	Plateau suisse	29 juillet	31 juillet	1992	6
Vallée de la Reuss	Plateau et pré-Alpes suisses	5 août	6 août	1992	4
TRACT 92	Bade Wurtemberg	9 septembre	21 septembre	1992	11
				Total	86

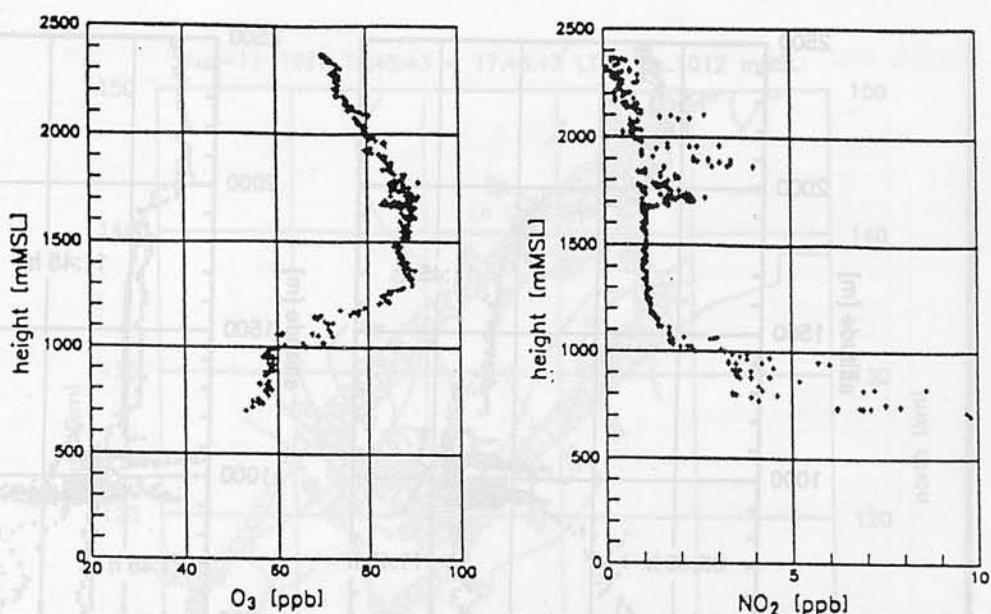


Figure 2.

Distribution d'ozone dans la couche convective (11 août 1991, 09:47- 12:35 h, Plateau suisse). Au décollage la stratification est stable (température potentielle), près du sol les charges d'ozone sont minimales et le NO_2 dépasse 4 ppb. Vers 11:45 h une couche réservoir d'ozone (60-70 ppb) est identifiée entre 1 100 et 1 900 m. Le vol se poursuit dans la couche convective en-dessous de 1 000 m. Les charges d'ozone y sont de 70-80 ppb, dont 60-70 ppb proviennent du réservoir supérieur et 10 ppb de la production photochimique de la matinée. La distribution du NO_2 est très homogène dans la couche convective (3 ppb), le réservoir (2 ppb) et en-dessus (1 ppb).

Ozone distribution in the convective boundary layer (CBL, August 11, 1991, 09:47-12:35 h, Swiss plateau). At take-off time the stratification is stable (potential temperature) and near ground, the ozone is reduced and the NO_2 exceeds 4 ppb. Around 11:45 h a reservoir layer (60-70 ppb) is identified between 1100 and 1900 m. The flight continues in the CBL below 1000 m with 70 to 80 ppb of ozone. 10 ppb are from the photochemical production of the morning, 60-70 ppb come from the reservoir. The NO_2 profile is quite homogeneous in the CBL (3 ppb), the reservoir layer (2 ppb), and above (1 ppb).

couches réservoir. L'évaluation des trajectoires nocturnes et les charges observées le jour précédent dans la région d'origine du réservoir permettraient d'améliorer les prévisions des charges d'ozone qui se basent sur les charges locales de la veille et la production locale. Durant la journée, le transport horizontal comprend toute la couche convective.

En présence de couches d'ozone supérieures à la couche convective, l'augmentation des charges d'ozone au sol provient de l'interférence de la diffusion verticale des couches réservoir et de la production locale dans la couche convective. Il existe des cas où les charges dans le réservoir excèdent nettement la production locale (fig. 3).

3.3. Production régionale d'ozone

L'après-midi les distributions régionales des charges d'ozone dans la couche convective sont affectées par les émissions locales et le vent. Sous le vent de l'agglomération genevoise, les charges d'ozone ont été très élevées à plusieurs reprises (fig. 4) par rapport aux charges du côté du vent de la ville. Si la distribution régionale des charges dans la couche convective est complétée par le champ des vecteurs du vent, il est possible d'en faire le bilan de la confluence (flux d'entrée) et la

diffuence (flux de sortie) des charges. Pour deux rayons de 30 km centrés sur la ville de Genève et sur le bassin du Lac Léman à l'est de la ville ce bilan a été obtenu pour six vols dans la couche convective dont trois vols ont eu lieu en fin de matinée et trois en fin d'après-midi (tableau II). En moyenne, il en résulte une augmentation de 30 % pour l'ozone et de 60 % pour le dioxyde d'azote si l'on analyse l'effet de la ville sur la masse d'air qui la traverse. Le bilan pour un rayon identique centré sur le lac est négatif (- 2 % pour l'ozone, - 30 % pour le dioxyde d'azote), c'est-à-dire que les charges d'une masse d'air diminuent au-dessus du lac.

Au sud des Alpes, la distribution hétérogène des émissions dans la plaine lombarde est identifiée dans la distribution régionale du NO_2 (fig. 5a). En plaine (Saronno) les charges de NO_2 atteignent 20 ppb et elles diminuent vers le nord au-dessus des premières collines (Como, Stabio). En coupe verticale le long d'un axe sud-nord (fig. 5b), il apparaît que la région dans laquelle les charges de NO_2 diminuent (70 km nord) produit un maximum d'ozone. Au sud de ce maximum, la production d'ozone est inhibée à des concentrations de NO_2 qui dépassent 10 ppb, au nord la production d'ozone est limitée par le NO_2 . La transition entre les deux régimes se trouve au-dessus des premières collines alpines. D'une part les émissions des pré-

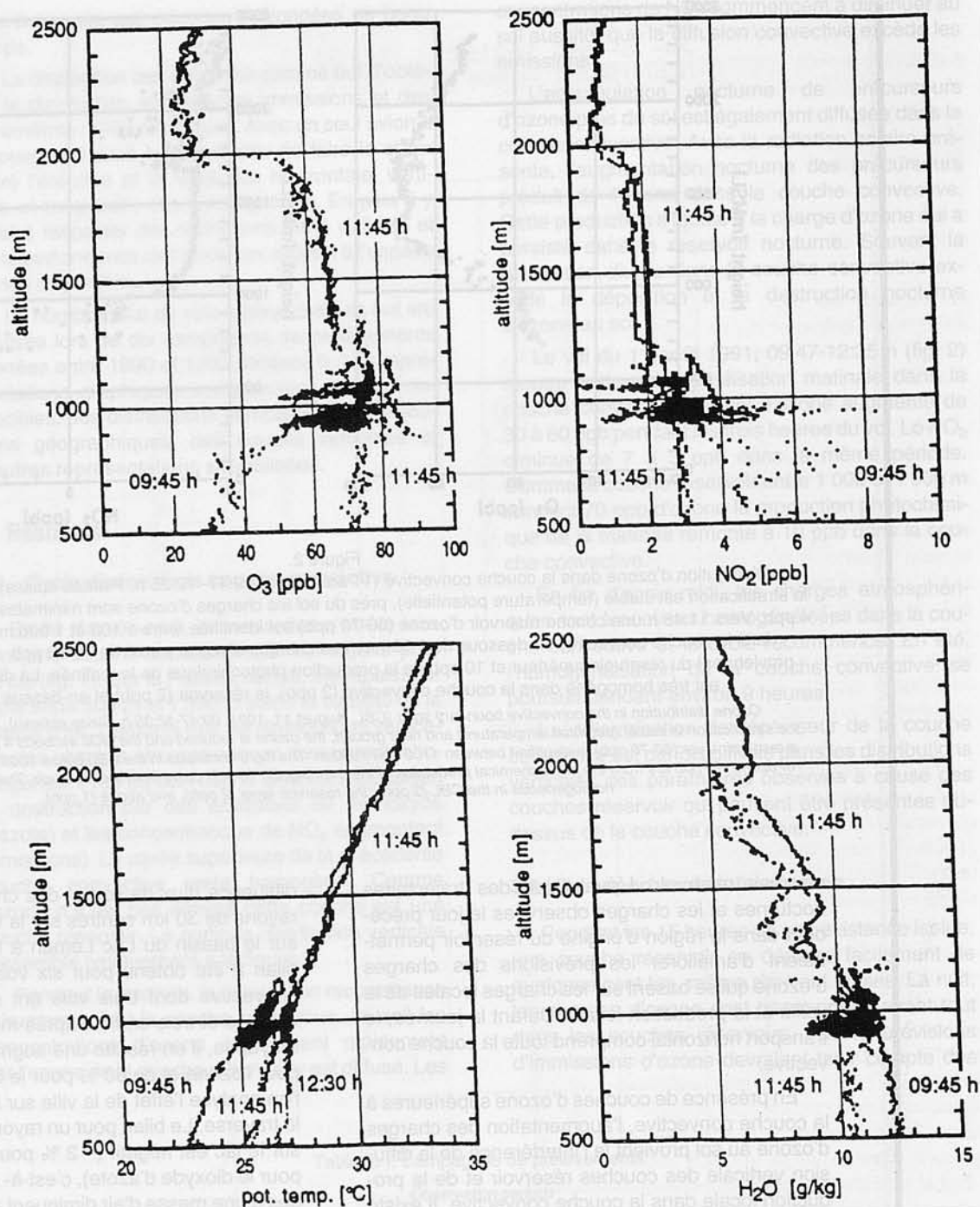


Figure 3.

Couche réservoir d'ozone (90 ppb entre 1 200 et 1 800 m) et de dioxyde d'azote (1.2 ppb entre 1 200 et 1 800 m) observé à midi le 29 juillet 1992 au-dessus de Lausanne. La couche convective n'atteint que 1000 m. Ce jour-là il est probable que la couche réservoir soit originaire de la vallée du Rhône au sud de Lyon. L'après-midi cette charge réservoir a été enregistrée au sol par la diffusion convective.

Reservoir layer of ozone (90 ppb between 1200 and 1800 m) and NO_2 (1.2 ppb between 1200 and 1800 m) at noon of July 29, 1992 above Lausanne. The convective boundary layer extends up to 1000 m. On this particular day the reservoir layer is likely to originate from the Rhone valley south of Lyon. In the afternoon the ozone from the reservoir layer was monitored at the surface stations as it had been mixed down.

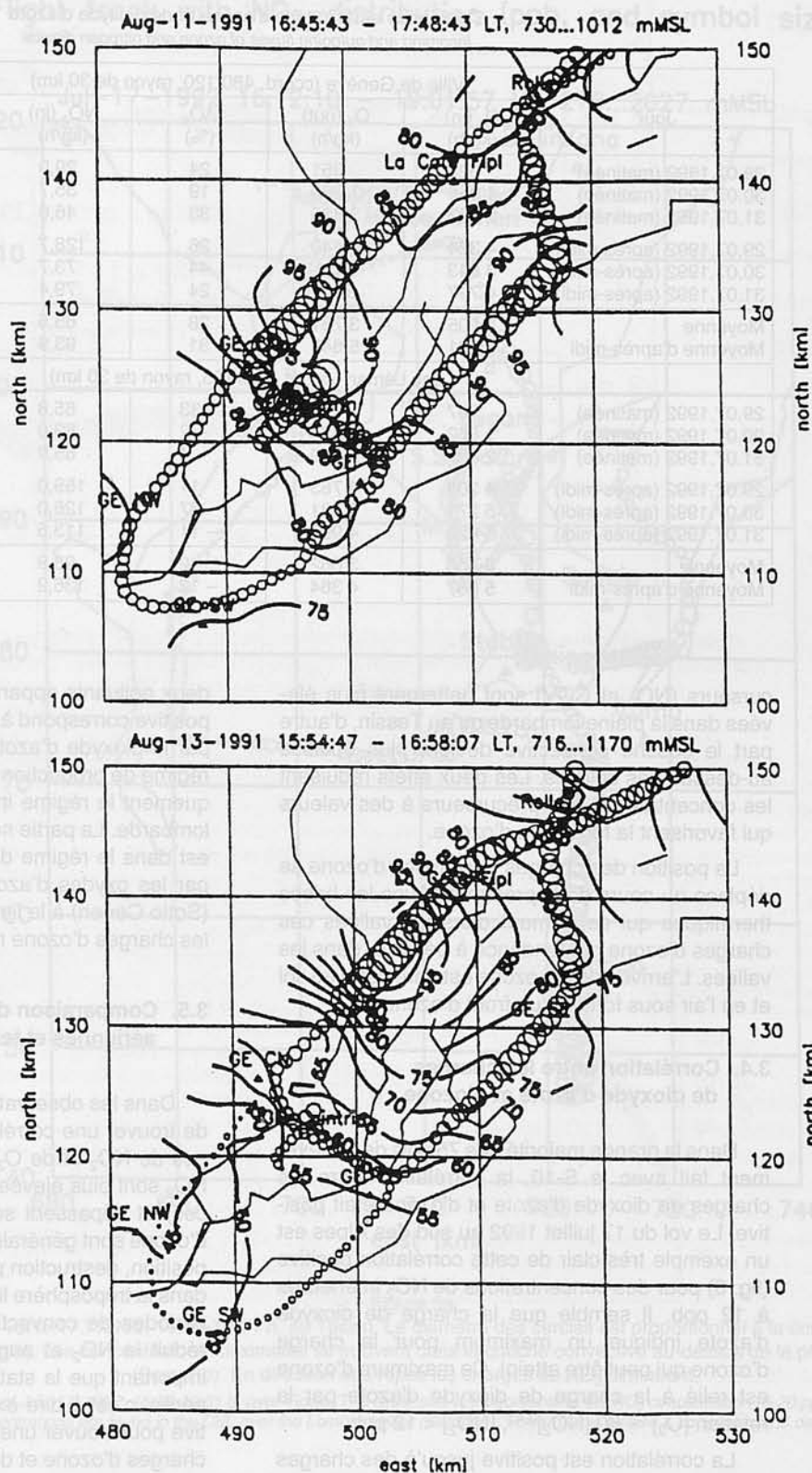


Figure 4.

Distribution régionale de l'ozone dans la couche convective de la région de Genève. Par vent général du sud-ouest la charge d'ozone est nettement augmentée sous le vent de l'agglomération genevoise (de 20 ppb le 11 août 1991 et de 45 ppb le 13 août 1991). La même situation est apparue en 1992.

Distribution of ozone in the CBL of the Geneva area. In light south- westerly winds the ozone concentrations are clearly increased in the lee of the city (by 20 ppb on August 11, 1991 and by 45 ppb on August 13, 1991). The same situation occurred again in 1992.

Tableau II.
Confluence et diffuence d'ozone et de dioxyde d'azote
Incoming and outgoing fluxes of ozone and nitrogen dioxide

Ville de Genève (ccord. 480/120, rayon de 30 km)						
Jour	O ₃ (in) (kg/h)	O ₃ (out) (kg/h)	ΔO ₃ (%)	NO ₂ (in) (kg/h)	NO ₂ (out) (kg/h)	ΔNO ₂ (%)
29.07.1992 (matinée)	524	651	24	29,0	55,1	90
30.07.1992 (matinée)	1 056	1 260	19	35,7	35,7	0
31.07.1992 (matinée)	2 887	3 835	33	46,6	80,2	72
29.07.1992 (après-midi)	4 324	5 440	26	128,7	171,1	33
30.07.1992 (après-midi)	3 843	5531	44	73,7	152,5	107
31.07.1992 (après-midi)	4 797	5967	24	79,4	117,6	48
Moyenne	2 905	3 781	28	65,5	102,0	58
Moyenne d'après-midi	4 321	5 646	31	93,9	147,1	63
Lac Léman (coord. 510/135, rayon de 30 km)						
29.07.1992 (matinée)	567	756	33	65,8	38,2	- 42
30.07.1992 (matinée)	1 862	1 824	- 2	53,0	44,0	- 17
31.07.1992 (matinée)	2 807	2 700	- 4	65,9	52,6	- 20
29.07.1992 (après-midi)	4 309	4 763	11	169,0	91,0	- 46
30.07.1992 (après-midi)	5 271	3 331	- 37	126,0	79,2	- 37
31.07.1992 (après-midi)	5 622	4 998	- 11	113,6	87,0	- 23
Moyenne	3 406	3 062	- 2	98,9	65,3	- 31
Moyenne d'après-midi	5 067	4 364	- 12	136,2	85,7	- 36

curseurs (NO₂ et COV) sont nettement plus élevées dans la plaine lombarde qu'au Tessin, d'autre part le couche convective devient plus épaisse au-dessus des collines. Les deux effets réduisent les concentrations des précurseurs à des valeurs qui favorisent la formation d'ozone.

La position des charges maximales d'ozone se déplace au cours de l'après-midi. Avec les brises thermiques qui se forment dans les vallées ces charges d'ozone ont tendance à pénétrer dans les vallées. L'arrivée de cet ozone est enregistré au sol et en l'air sous forme d'un front d'ozone.

3.4. Corrélation entre les charges de dioxyde d'azote et d'ozone

Dans la grande majorité des 75 vols de prélèvement fait avec le S-10, la corrélation entre les charges de dioxyde d'azote et d'ozone était positive. Le vol du 17 juillet 1992 au sud des Alpes est un exemple très clair de cette corrélation positive (fig. 6) pour des concentrations de NO₂ inférieures à 12 ppb. Il semble que la charge de dioxyde d'azote indique un maximum pour la charge d'ozone qui peut être atteint. Ce maximum d'ozone est relié à la charge de dioxyde d'azote par la relation $[O_3] \leq 60 [NO_2]^{0,45}$, $[NO_2] < 12$ ppb.

La corrélation est positive jusqu'à des charges de dioxyde d'azote de 12 ppb dans ce cas-là. Au-dessus de 12 ppb de NO₂, les charges d'ozone ne semblent plus augmenter avec l'addition de NO₂. En représentation bilogarithmique (fig. 7), la relation entre les charges de NO₂ et de O₃ devient linéaire dans le domaine de corrélation positive. La transition entre le régime de corrélation positive ($[NO_2] < 12$ ppb) et négative ($[NO_2] > 12$ ppb) des

deux polluants apparaît clairement. La corrélation positive correspond à la production d'ozone limitée par le dioxyde d'azote, la corrélation négative au régime de production d'ozone inhibée. Géographiquement le régime inhibé se situe dans la plaine lombarde. La partie nord du Tessin (Sopra Ceneri) est dans le régime de production d'ozone limitée par les oxydes d'azote. La partie sud du Tessin (Sotto Ceneri) à la limite des deux régimes exhibe les charges d'ozone maximales.

3.5. Comparaison des observations aériennes et terrestres

Dans les observations au sol, il est plus difficile de trouver une corrélation positive entre les charges de NO₂ et de O₃. D'une part, les charges de NO₂ sont plus élevées au sol (proximité des sources) et dépassent souvent 10 ppb. Les charges d'ozone sont généralement plus petites au sol (déposition, destruction près des sources de NO) que dans la troposphère libre. Ce n'est que pendant les périodes de convection que la diffusion verticale réduit le NO₂ et augmente l'ozone au sol. Il est important que la station de prélèvement soit bien aérée, c'est-à-dire exposée à la diffusion convective pour trouver une corrélation positive entre les charges d'ozone et de NO₂ au sol. Ceci est le plus probable durant l'après-midi et pour des stations rurales. Les stations d'altitudes (pentes, sommets) montrent plus facilement une corrélation positive entre les charges de NO₂ et d'ozone. Pendant le vol du 17 juillet 1992, les stations bien aérées montrent également une corrélation positive entre l'ozone et le dioxyde d'azote pour les charges de NO₂ qui ne dépassent pas 12 ppb (fig. 7).

Flight track with NO₂-distribution [ppb, and symbol size]

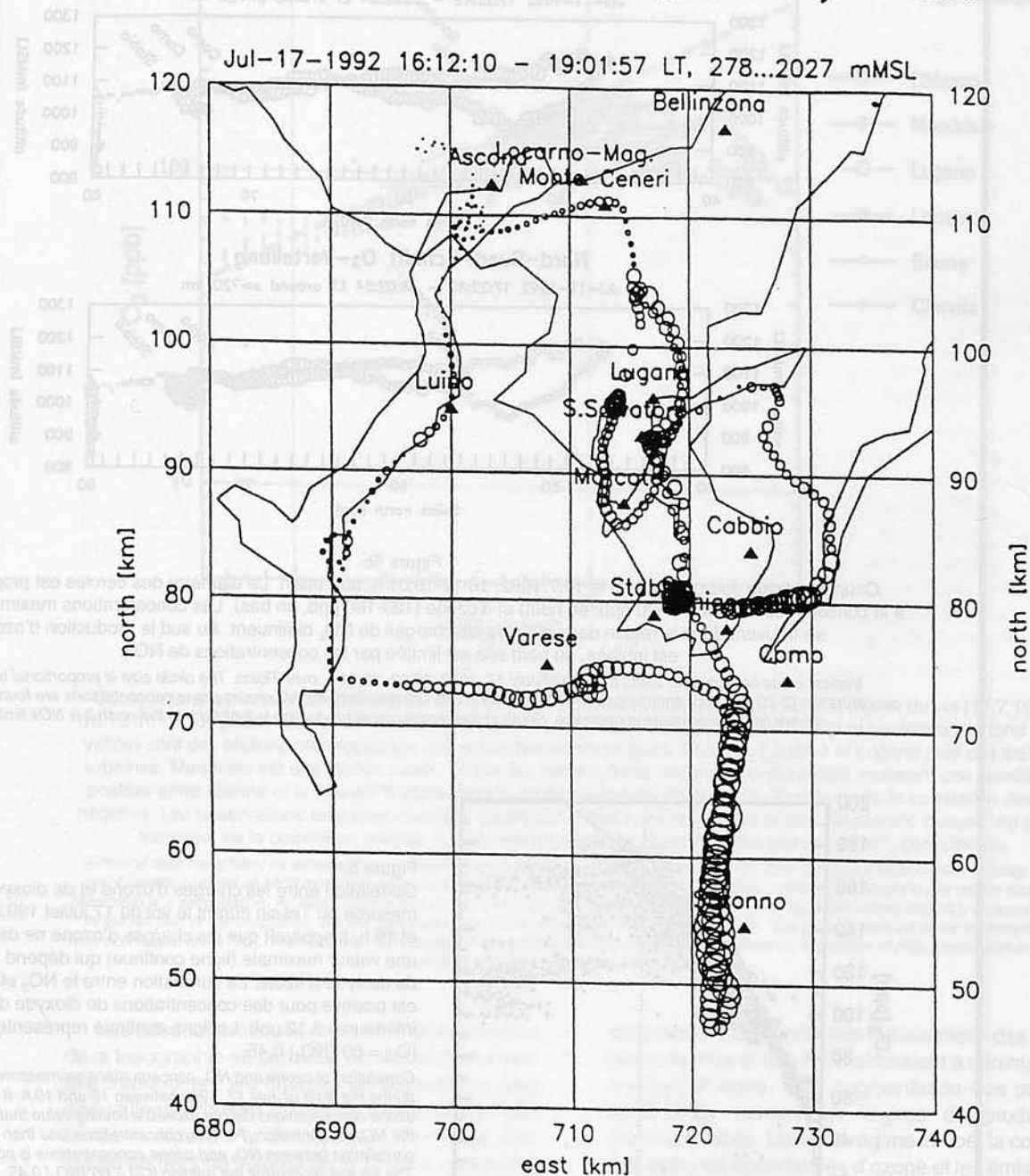


Figure 5a.

Itinéraire du vol le 17.7.1992, 16:12-19:01 h, au Tessin. Le diamètre des cercles est proportionnel à la concentration de NO₂ (5- 20 ppb). Les concentrations maximales se trouvent dans la couche convective au-dessus de la plaine lombarde (Saronno). En direction des Alpes les charges de NO₂ diminuent.

Flight track of July 17, 1992, 16:12-19:01 h, over Ticino. The circle size is proportional to the NO₂ concentration (5-20 ppb). Maximum concentrations are found in the CBL over the Lombard plain (Saronno). Towards the Alps NO₂ concentrations decrease.

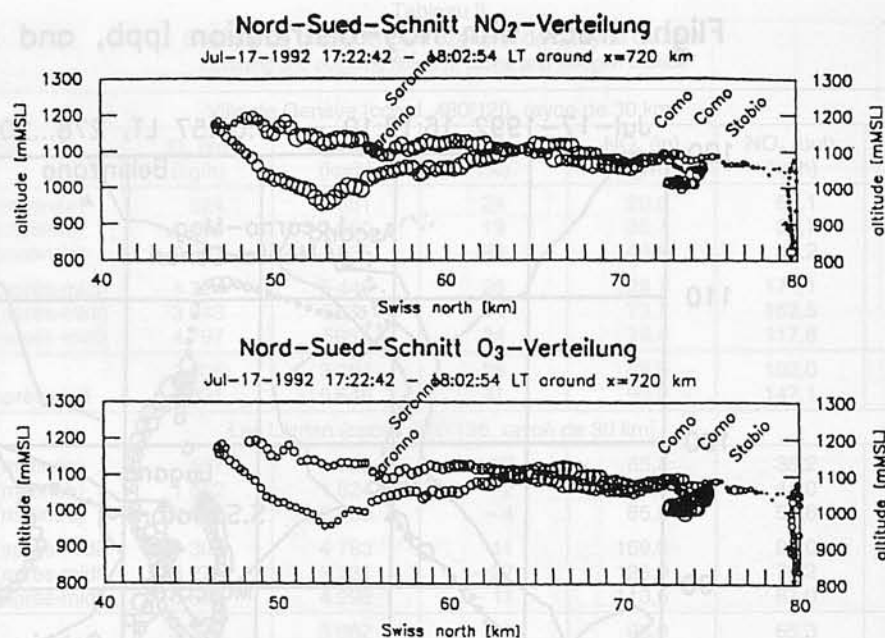


Figure 5b.

Coupe verticale sud-nord du vol le 17.7.1992, 16:12-19:01 h, au Tessin. Le diamètre des cercles est proportionnel à la concentration de NO_2 (5-20 ppb, en haut) et d'ozone (120-180 ppb, en bas). Les concentrations maximales d'ozone se trouvent dans la région dans laquelle les charges de NO_2 diminuent. Au sud la production d'ozone est inhibée, au nord elle est limitée par les concentrations de NO_x .

Vertical cross-section from south to north of July 17, 1992, 16:12-19:01 h, over Ticino. The circle size is proportional to the NO_2 concentration (5-20 ppb, top) and the ozone concentration (120-180 ppb, bottom). Maximum ozone concentrations are found in the region where NO_2 concentrations decrease. South of this region ozone production is inhibited, to the north it is NO_x limited.

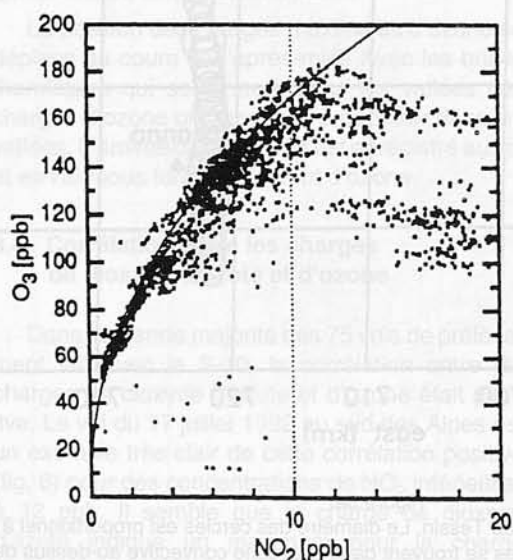


Figure 6.

Corrélation entre les charges d'ozone et de dioxyde d'azote mesurée au Tessin durant le vol du 17 juillet 1992 entre 16 et 19 h. Il apparaît que les charges d'ozone ne dépassent pas une valeur maximale (ligne continue) qui dépend de la charge de dioxyde d'azote. La corrélation entre le NO_2 et l'ozone est positive pour des concentrations de dioxyde d'azote inférieures à 12 ppb. La ligne continue représente la relation $[\text{O}_3] = 60 \cdot [\text{NO}_2]^{0,45}$.

Correlation of ozone and NO_2 concentrations as measured in Ticino during the flight of July 17, 1992 between 16 and 19 h. It seems as if ozone concentrations did not exceed a limiting value that depends on the NO_2 concentration. For NO_2 concentrations less than 12 ppb the correlation between NO_2 and ozone concentrations is positive. The full line represents the relation $[\text{O}_3] = 60 \cdot [\text{NO}_2]^{0,45}$.

3.6. Influence de la topographie

La production et la diffusion de l'ozone sont fortement liées à la couche convective. L'épaisseur de la couche convective détermine le volume de l'atmosphère dans lequel ces processus se déroulent. La topographie influence sensiblement cette épaisseur. En général, la couche convective atteint un niveau plus élevé au-dessus d'un relief [9]. Par exemple, la simulation de la couche convective en

fonction de la topographie par le modèle ALP-THERM [10, 2] a révélé une différence de 500 m entre l'altitude maximale de la couche convective au-dessus de la plaine lombarde et des premières collines du Tessin pour le 17 juillet 1992 bien que la topographie moyenne ne diffère que de 200 m. Dans la région du Lac Léman (Genève), l'épaisseur de la couche convective ne dépend pas seulement de la topographie mais encore de la surface d'eau importante [11] qui ne produit pas de convection.

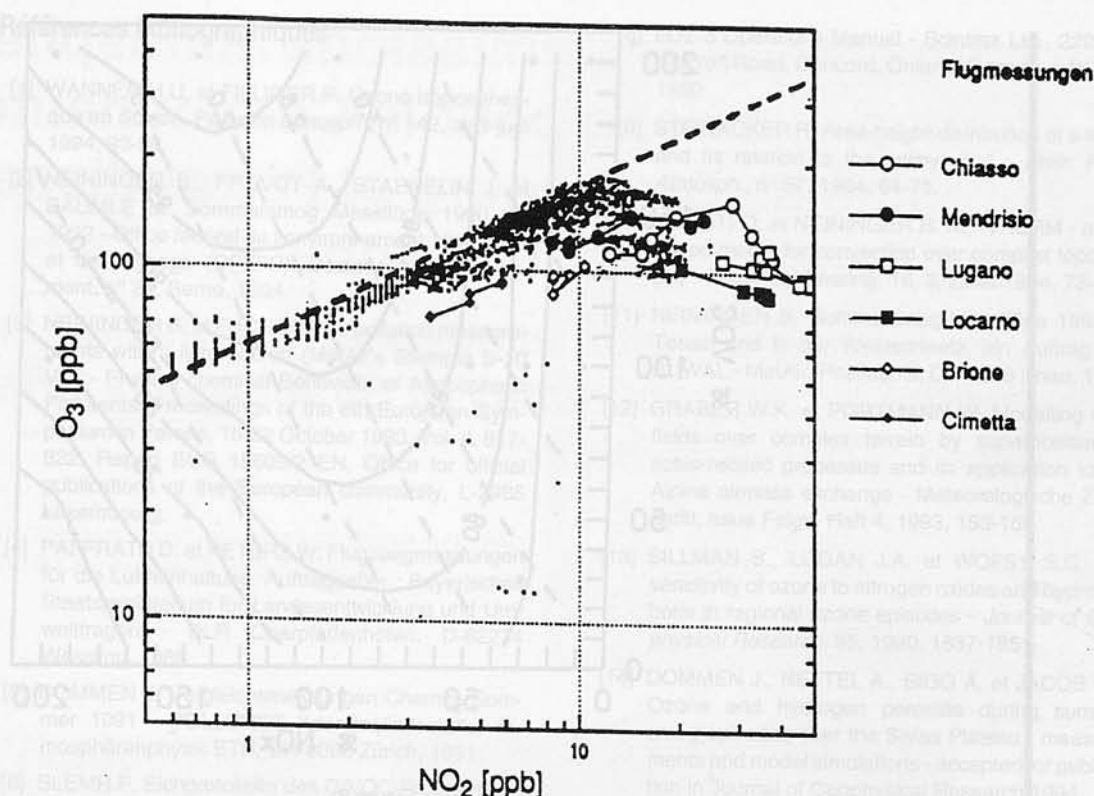


Figure 7.

Observations aériennes complétées par les observations terrestres simultanées dans la région du vol (17.7.1992, 16:12-19:01 h). Brione (200 m au-dessus du fond de la vallée) et Cimetta (sommet à 1400 m au-dessus du fond de la vallée) sont des stations bien exposées aux ascendances thermiques. Chiasso, Locarno et Lugano sont des stations urbaines, Mendrisio est une station rurale. Toutes les observations, aériennes et terrestres, montrent une corrélation positive entre l'ozone et le dioxyde d'azote dans la partie gauche du diagramme. Vers la droite la corrélation devient négative. Les observations terrestres montrent systématiquement moins d'ozone et plus de dioxyde d'azote. Au sol, la transition de la corrélation positive à la corrélation négative apparaît à des valeurs de NO_2 plus élevées.

Airborne data completed by simultaneously recorded ground station data (17.7.1992, 16:12-19:01 h). Brione (200 m above valley floor) and Cimetta (summit at 1400 m above valley floor) are well exposed to slope winds. Chiasso, Locarno and Lugano are urban stations, Mendrisio is a rural station. All data, taken in the air and at the ground, show a positive correlation between ozone and NO_2 concentrations in the left part of the diagram. On the right hand side ozone is reduced with increasing NO_2 . The ground stations show systematically less ozone and more NO_2 . The transition point between increasing and decreasing ozone values as a function of NO_2 concentration is also shifted to higher NO_2 values at the ground.

Les brises thermiques provenant de la variation de la topographie et, par suite, de la couche convective transportent les charges de polluants le long des vallées (Plateau suisse → Alpes, plaine lombarde → Alpes). Par simulations [12] il a été évalué qu'un tiers du volume de la couche convective sur le Plateau suisse pourrait être transféré vers les Alpes au cours d'une journée. Les brises thermiques modifient d'une manière systématique la diffusion horizontale des polluants.

3.7. Modèle numérique de formation de l'ozone

L'évolution de la charge d'ozone d'une masse d'air a été simulée à l'aide d'un modèle numérique (Harwell Photochemical Trajectory Model, HPTM) [13] à l'échelle de plusieurs jours [13] en tenant compte des émissions de NO_x et de COV sur le Plateau suisse [14, 15]. La charge d'ozone finale de la masse d'air pour les émissions typiques du Plateau suisse (fig. 8) atteint 90 ppb (centre du

diagramme). Une réduction substantielle des émissions de NO_x et des COV aideraient à diminuer les charges d'ozone. Une augmentation des précurseurs NO_x mènent au régime de production d'ozone inhibée. Dans ce régime inhibé, la corrélation entre les abondances d'ozone et les émissions de NO_x est négative. La ligne de transition entre le régime d'ozone inhibé par les NO_x et le régime d'ozone limité par les NO_x se déplace vers la droite si les émissions de COV augmentent. La transformation de ce diagramme par suite à la substitution des émissions par l'abondance des précurseurs est non linéaire. Néanmoins les conclusions qualitatives ne changent pas.

4. Conclusions

La production quotidienne d'ozone se déroule dans la couche convective dans une période de quelques heures. La destruction nocturne d'ozone se limite à la couche inférieure de la précédente

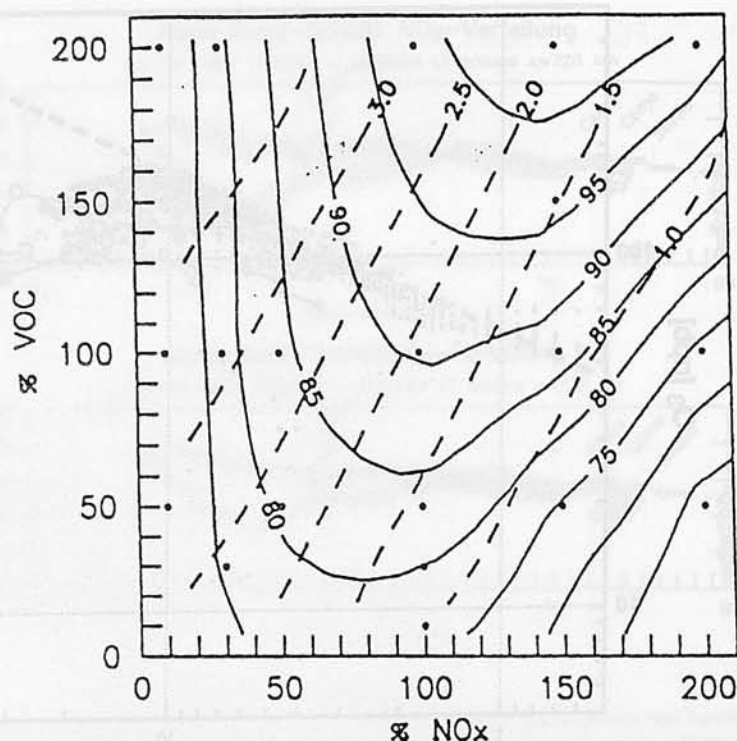


Figure 8.

Isoplèthes d'ozone (lignes continues) et de H_2O_2 (lignes avec tirets) d'une masse d'air qui traverse le Plateau suisse et qui accumule des COV et des NO_x selon le cadastre des émissions de 1990 [14]. L'après-midi cette masse d'air atteint une concentration d'ozone de 90 ppb et une concentration de H_2O_2 de 2 ppb (centre du diagramme avec les émissions à 100 %). Dans le cas de grandes concentrations de NO_x la production d'ozone est inhibée. Par contre lorsque la concentration de NO_x est basse, celle-ci devient limitante pour la formation d'ozone.

Isopleths of ozone (solid lines) and H_2O_2 (dashed lines) in an air mass that moves over the Swiss plateau and accumulates VOC and NO_x according to the cadaster of 1990 [14]. In the afternoon ozone concentration reaches 90 ppb and H_2O_2 reaches 2 ppb (centre of diagram with emissions at 100 %). For higher concentrations of NO_x ozone production becomes inhibited, in the low- NO_x regime ozone production is limited by NO_x .

couche convective. Au-dessus la production diurne est conservée pendant la nuit. Le lendemain ces couches réservoirs contribuent aux charges d'ozone, soit localement ou par transport nocturne.

Localement, les variations des concentrations d'ozone sont typiquement 20 % des moyennes régionales. Sous le vent de l'agglomération genevoise, l'évaluation de la production locale par rapport à l'advection a fourni les chiffres de 30 % pour l'ozone et de 60 % pour le NO_2 .

Au sud des Alpes, le transport d'ozone à travers la frontière italo-suisse est très net dû à la proximité de sources importantes de polluants dans la plaine lombarde et les brises thermiques.

Au nord des Alpes, le transport international est moins évident. Il se déroule par les couches réservoirs d'ozone.

Les charges maximales d'ozone au sud des Alpes sont localisées le long d'une bande qui suit le pied des Alpes. Au sud de cette bande, la formation d'ozone est inhibée par l'abondance d'oxydes d'azote. La diffusion convective est plus efficace

au-dessus des premières collines alpines ce qui dilue les précurseurs d'ozone et l'ozone.

La topographie influence la formation de la couche convective et la diffusion verticale des polluants. La modélisation de la diffusion convective est possible en tenant compte de la topographie.

Les observations terrestres et aériennes diffèrent systématiquement. Au sol les concentrations d'oxydes d'azote sont généralement plus élevées et les concentrations d'ozone sont réduites par rapport à l'atmosphère libre.

La corrélation positive entre les charges mesurées d'ozone et de NO_2 indique que la production d'ozone se déroule dans un régime limité par l'abondance des NO_x dans la plupart des régions étudiées. C'est uniquement dans des régions d'émissions importantes que le régime de production d'ozone inhibée est établi.

L'ensemble des prélèvements aériens indique que sur le territoire suisse la réduction des émissions de NO_x contribue à la réduction des charges d'ozone.

Références bibliographiques

- [1] WANNER H.U. et FILLIGER P. Ozone troposphérique en Suisse, *Pollution atmosph.*, n° 142, avril-juin 1994, 93-99.
- [2] NEININGER B., PREVOT A., STAEHELIN J. et BÄUMLE M. Sommersmog Messflüge 1990 bis 1992 - Office fédéral de l'environnement, des forêts et du paysage (OFEFP), Documents environnement, n° 24, Berne, 1994.
- [3] NEININGER B. et FUCHS W. Air pollution measurements with a light aircraft (MetAir's Stemme S-10 VC) - Physico-chemical Behaviour of Atmospheric Pollutants, Proceedings of the 6th European Symposium in Varese, 18-22 October 1993, Vol. II, 817-822, Report EUR 15609/2 EN, Office for official publications of the European community, L-2985 Luxembourg.
- [4] PAFFRATH D. et PETERS W. Flugzeugmessungen für die Luftreinhaltung. Auftraggeber: Bayerisches Staatsministerium für Landesentwicklung und Umweltfragen - DLR Oberpfaffenhofen, D-82234 Wessling, 1988.
- [5] DOMMEN J. Vergleichsmessungen Chemie, Sommer 1991 - POLLUMET Koordinationsstelle, Atmosphärenphysik ETH, CH-8093 Zürich, 1991.
- [6] SLEMR F. Eichprotokolle des QA/QC-Programmes von TRACT - Fraunhofer Institut für Umweltforschung, Kreuzteckbahnstr. 19, D- 82467 Garmisch, 1992.
- [7] Schlussbericht POLLUMET - POLLUMET Koordinationsstelle, Atmosphärenphysik ETH, CH-8093 Zürich (en préparation pour 1995).
- [8] LOZ-3 Operator's Manual - Scintrex Ltd., 222 Snidercroft Road, Concord, Ontario, Canada, L4K 1B5, 1990.
- [9] STEINACKER R. Area-height distribution of a valley and its relation to the valley wind - *Beitr. Phys. Atmosph.*, n° 57, 1984, 64-71.
- [10] LIECHTI O. et NEININGER B. ALPTHERM - a PC-based model for convection over complex topography - *Technical Soaring*, 18, 3, juillet 1994, 73-78.
- [11] NEININGER B. Sommersmog-Messflüge 1992 im Tessin und in der Westschweiz, ein Auftrag des BUWAL - MetAir, Postfach 9, CH-8308 Illnau, 1994.
- [12] GRABER W.K. et PORTMANN W. Modelling wind fields over complex terrain by superposition of scale-related processes and its application to the Alpine air mass exchange - *Meteorologische Zeitschrift*, neue Folge, Heft 4, 1993, 153-166.
- [13] SILLMAN S., LOGAN J.A. et WOFSY S.C. The sensitivity of ozone to nitrogen oxides and hydrocarbons in regional ozone episodes - *Journal of Geophysical Research*, 95, 1990, 1837-1851.
- [14] DOMMEN J., NEFTEL A., SIGG A. et JACOB D.J. Ozone and hydrogen peroxide during summer smog episodes over the Swiss Plateau: measurements and model simulations - accepted for publication in *Journal of Geophysical Research*, 1994.
- [15] RÖSSELET C.M. et KERR J.A. Photochemical modelling of photo-oxidant levels over the Swiss Plateau and emission reduction scenarios - PSI Bericht N 93-03, Paul Scherrer Institut, CH-5232 Villigen PSI, 1993. Article proposé à la revue *Pollution Atmosphérique*.