

Programme GICC-2 Gestion et Impacts du Changement Climatique



Rapport de fin du contrat MEDD No 23E/2004

Responsable scientifique : Pierre CELLIER UMR INRA / INA P-G Environnement et Grandes Cultures 78850 Thiverval-Grignon

Date de publication :

juillet 2006

Résumé

Le projet GESBiO3 (Gaz à Effet de Serre, **Bi**osphère, **O3**) visait à prendre en compte l'ozone dans le calcul de la contribution des écosystèmes agricoles et forestiers à l'effet de serre à l'échelle régionale. Cela implique de s'intéresser d'une part aux dépôts d'ozone sur la végétation et le sol et d'autre part aux émissions de précurseurs d'ozone (NO_x, COV) par les sols et couverts végétaux. Les champs d'ozone étant très variables dans l'espace et dans le temps, ce travail se situait nécessairement à l'échelle régionale et demandait un support fort de la modélisation (modèles de chimie-transport à l'échelle régionale ou continentale). Pour répondre à ces questions, le projet GESBiO3 comprenait à la fois

- un volet expérimental (suivis de flux d'ozone et de précurseurs, de CO₂ et N₂O dans différents écosystèmes) en vue d'améliorer la paramétrisation des sources et puits biogènes dans les modèles de Chimie-Transport et d'avoir des points de contrôle des sorties des modèles.
- un volet de modélisation consistant à coupler un modèle de Chimie-Transport, CHIMERE, à des modèles d'écosystèmes et une interface végétation-atmosphère

Le programme GICC-2 a choisi de ne soutenir que le volet expérimental du projet GESBiO3, correspondant à son Axe 1, sur une durée de 12 mois.

Les acquis du projet GESBiO3 peuvent se classer en 4 catégories :

- La difficulté majeure à laquelle nous avons été confrontés est la non-disponibilité d'analyseurs rapide d'ozone commerciaux et fiables permettant de faire des mesures de dépôt par la méthode des corrélations. Nous avons donc été amenés, d'une part à faire un important travail de contrôle, réparation et mise au point des analyseurs dont nous disposions, qui nous avaient été fournis par un laboratoire de recherche américain, d'autre part à faire appel à une entreprise pour concevoir et fabriquer de nouveaux analyseurs ayant des caractéristiques techniques supérieures aux nôtres et disponibles commercialement. Cette opération est en cours et le prototype sera disponible en octobre 2006.
- Des procédures de traitement des données automatique des données ont été établies pour faciliter et uniformiser les méthodes de calcul des flux. Un effort particulier a été fait pour corriger l'atténuation spectrale à haute fréquence des données pour les analyseurs déportés tels que les analyseurs rapides d'ozone.
- Des mesures continues de dépôts d'ozone sur plusieurs mois n'ont pu être faites que par les 2 laboratoires possédant déjà des analyseurs rapides (INRA Bordeaux et Grignon). Sur 2 autres sites (Lusignan sur prairie et Fontainebleau sur forêt de chênes), l'année 2005 a été mise à profit pour mettre en place les infrastructures et dispositifs de mesure de flux (et variables associées) de base. A Grignon, des mesures de dépôt d'ozone ont été effectuées sur une rotation maïs/blé/escourgeon en continu depuis l'été 2004 avec un taux de fonctionnement très satisfaisant. A Bordeaux, des mesures ont été faites sur différents écosystèmes : forêt de Pins maritimes au dessus et en dessous de la canopée, culture de maïs et de haricot (en marge du projet CERES2005, de CarboEurope-IP). Différentes difficultés instrumentales nous ont amenés à faire un travail important de comparaison de capteurs, puis de réparation. Nous disposons maintenant (depuis début 2006) d'un parc de 5 analyseurs en état de fonctionnement satisfaisant.
- Ces données ont été utilisées pour poursuivre notre travail de paramétrisation des dépôts, en particulier le dépôt non stomatique. Ce travail déjà entamé dans le cadre du projet

BIOPOLLATM, mais GESBiO3 y a apporté une contribution déterminante par la fourniture de séries longues de données sur différents écosystèmes. Par l'utilisation d'un modèle d'échange sol-végétation-atmosphère, nous avons pu quantifier l'évolution mois par mois des dépôts d'ozone sur la végétation et en particulier sa part stomatique qui est celle qui crée l'impact sur la végétation.

Mis à part le problème de la disponibilité d'analyseurs rapides commerciaux et fiables d'ozone qui n'a pas permis d'équiper l'ensemble des sites de mesure prévus initialement, le projet GESBiO3 a donc permis d'établir les bases d'un réseau de mesure des flux d'ozone et du traitement des données qui en seront issues : procédures de traitement des données brutes pour calculer les dépôts suivant des procédures normalisées et traitement des données de flux pour l'établissement de paramétrisation et modèles de dépôts d'ozone sur les couverts végétaux. Au delà de la poursuite des travaux en cours (mesures de flux, traitement des données, modélisation des dépôts), la prochaine étape est l'évaluation des nouveaux analyseurs rapides d'ozone, dès la fin 2006 en vue d'équiper 3 sites supplémentaires sur prairie (Lusignan) et forêts (Fontainebleau et Hesse).

Mots-clefs

effet de serre, ozone, échanges végétation-atmosphère, agriculture, forêt, oxydes d'azote, modèle chimie-transport

Equipes participantes

Equipes ayant effectivement participé à la partie du projet financée par GICC-2

- INRA UMR INRA / INA P-G Environnement et Grandes Cultures (EGC), BP1, 78850 Thiverval-Grignon
- INRA UR Écologie Fonctionnelle et Physique de l'Environnement (EPHYSE), 71 avenue Edouard Bourlaux, BP 81, 33883 Villenave d'Ornon Cedex

Université Paris-Sud CNRS (UMR 8079), Unité Ecologie, Systématique et Evolution (ESE)

INRA UMR Ecologie et Ecophysiologie Forestière (EEF), Nancy (site expérimental de Hesse (hêtraie))

INRA UR Ecophysiologie des Plantes Fourragères (EPF), Lusignan (site expérimental sur prairie)

Autres équipes présentes dans la proposition initiale (et non financées)

INRA UMR Université Paris 6 / CNRS / INRA BioEMCo, Thiverval-Grignon

IPSL Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMD), Paris Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE), Saclay

Université Paris 12, Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques (LISA)

CNRS/OMP/Université de Toulouse : Laboratoire d'Aérologie (LA)

AirParif (données du réseau de surveillance de la qualité de l'air, inventaire des sources anthropiques pour l'Ile de France)

Summary

The objectives of the GESBiO3 project (in English, GHGBiO3, GreenHouse Gases, **Bi**osphère, **O3**) were to account for ozone when calculating to what extent agricultural and forest ecosystems contribute to greenhouse effect at regional scale. This leads to focus on ozone deposition onto vegetation and soil, and on emission of ozone precursors (NO_x, VOC) emitted by soils and vegetation. As ozone concentration is highly variable in space and time, such an approach has to be conducted at regional scale and to use modeling through chemistry-transport models. GESBiO3 included (i) experiments (ozone deposition, CO₂ and N₂O fluxes over different ecosystems) in order to improve source and sinks functions in chemistry-transport models and (ii) modeling by coupling a chemistry-transport model (CHIMERE) to ecosystem models and a SVAT model.

However, the scientific committee of the GICC-2 program decided to support only the experimental part of this project - which corresponded to its first Work Package – for a 12 months contract.

The main results of GESBiO3 can be summarized as follows:

- The non-availability of commercial and reliable fast ozone sensors for measuring ozone deposition by eddy correlation was the main problem that we had. Thus big efforts had to be made for controlling, repairing and fitting our sensors which had been provided by an American lab. Finally, we got in touch with a private company to design and build new sensor with better specifications. The first prototype should be available in October 2006.
- Automatic data processing was developed to make flux calculation easier and more straightforward. We specially focused on correcting high frequency spectral damping, which applies to closed-path sensors such as fast ozone sensors.
- Due to the non-availability of new sensors, continuous monitoring of ozone deposition could only be made by the 2 labs which already owned fast ozone sensors (INRA Bordeaux and Grignon). At Grignon, ozone deposition was measured over a field with a maize/wheat/barley rotation from summer 2004 with a satisfactory functioning. Near Bordeaux, ozone fluxes were measured over a Pine forest at two heights, one above and one below the canopy. Moreover, ozone deposition was measured over a maize and a bean crop during the CERES2005 experiment (CarboEurope Regional Experiment). Different problems with the ozone sensors made it necessary to perform comparisons between sensors and repairing. Five fast ozone sensors are now available for ozone deposition measurements. Two others sites (Lusignan over a grassland and Fontainebleau over an oak forest) were equipped in 2005 with basic facilities and basic flux measurement systems, including auxiliary variables.
- The ozone deposition data were used for improving deposition velocity parameterization, more especially non-stomatal deposition. This work already started during the *BioPolLATM* project (an other French project), but a significant input of GESBiO3 was to provide long term ozone deposition datasets over different ecosystems. By using a SVAT model, we estimated monthly averages of ozone deposition and its change with time, separating stomatal and total deposition.

Apart from the non availability of commercial fast ozone sensors which prevented us from equipping all the sites, the GESBiO3 project set up the basis of an ozone deposition network

and data processing required for calculating from correlation data and modeling deposition over different vegetation canopies. The next step of this project will be to assess the new fast ozone sensors which will be delivered in October 2006, and to use them for measuring ozone deposition over 3 new sites over grassland and forest.

Key-words

Greenhouse effect, ozone, vegetation-atmosphere exchange, agriculture, forest, nitrogen oxides, chemistry transport model.

Sommaire

RESUMI	Ε	1
EQUIPE	S PARTICIPANTES	2
SUMMA	RY	3
KEY-WO)RDS	4
SOMMA	IRE	5
INTROD	RESUME Fequipes Participantes EQUIPES PARTICIPANTES Fequipes Participantes SUMMARY Fequipes Participantes SUMMAIRE Fequipes SOMMAIRE Fequipes INTRODUCTION Fequipes DESCRIPTION DES TRAVAUX REALISES Fequipes 1.1 Developpement d'un Capteur Rapide d'Ozone 1.2 Mise au point de methodologies de mesures turbulentes pour la determination des DEPOTS d'Ozone 11 1.3 Realisation de mesures de flux sur differents ecosystemes 1.4 Analyse des donnees et parametrisation des depots d'Ozone 22 1.5 Conclusions et perspectives 22 1.6 Bibliographie 22 Rapports et publications issues de CE PROJET 33 Annexe 1 : description de l'Analyseur Rapide d'Ozone 33 Annexe 2 : PROCEDURES d'ACQUISITION ET TRAITEMENT DES DONNEES 37 Annexe 3 : MODELE de DEPOT d'OZONE SUR UN COUVERT VEGETAL 42	
DESCRI	PTION DES TRAVAUX REALISES	9
1.1.	DEVELOPPEMENT D'UN CAPTEUR RAPIDE D'OZONE	9
1.2.	MISE AU POINT DE METHODOLOGIES DE MESURES TURBULENTES POUR LA DETERMINATION DES	
DEPOT	S D'OZONE	10
1.3.	REALISATION DE MESURES DE FLUX SUR DIFFERENTS ECOSYSTEMES	14
1.4.	ANALYSE DES DONNEES ET PARAMETRISATION DES DEPOTS D'OZONE	23
1.5.	CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES	28
1.6.	BIBLIOGRAPHIE	29
RAPPOF	RTS ET PUBLICATIONS ISSUES DE CE PROJET	31
ANNEXI	E 1 : DESCRIPTION DE L'ANALYSEUR RAPIDE D'OZONE	33
ANNEXI	E 2 : PROCEDURES D'ACQUISITION ET TRAITEMENT DES DONNEES	37
ANNEXI	E 3 : MODELE DE DEPOT D'OZONE SUR UN COUVERT VEGETAL	43
ANNEXI	E 4 : RESUME DU TRAVAIL DE THESE DE MN. ROLLAND (AVRIL 2006)	45

Introduction

Comme le rappellent les rapports du GIEC (Figure 1 ; GIEC, 2001), malgré sa courte durée de vie, l'ozone contribue de manière significative à l'effet de serre.



Niveau des connaissances scientifiques

Figure 1 : Forçage radiatif moyen global du système climatique en l'an 2000 par rapport à 1750.

Son forçage radiatif $(0,35 \text{ W m}^{-2})$ est supérieur à celui du N₂O et équivalent à celui des gaz halocarbonés. Le rapport du GIEC mentionne en outre que son évolution réagit de manière beaucoup plus rapide aux changements dans les émissions que les gaz à effet de serre à longue durée de vie (CO₂, CH₄, N₂O, CFC, ...). Le rapport mentionne également que « dans certains scénarios, le volume total de O₃ dans la troposphère deviendrait un agent de forçage radiatif aussi important que le CH₄ et remettrait en cause, dans la plus grande partie de l'hémisphère Nord, l'efficacité des efforts déployés pour atteindre les objectifs actuels en matière de qualité de l'air ». L'ozone est en effet aujourd'hui l'un des polluants dont la concentration augmente le plus dans la troposphère. Il est donc aujourd'hui essentiel de mieux prendre en compte l'influence de l'ozone sur l'effet de serre et d'évaluer l'évolution probable de cette influence en fonction de différents scénarios climatiques et d'émissions anthropiques ou naturelles de ses précurseurs. C'est à cette question qu'a cherché à s'attacher le projet GESBiO3, pour ce qui touche plus spécifiquement aux surfaces agricoles.

Les surfaces naturelles et plus spécifiquement les surfaces agricoles et forestières qui en représentent la quasi-totalité contribuent au bilan d'ozone par deux voies contradictoires :

- la production de NO par les sols agricoles et de composés organiques volatils (COV) par les plantes peut conduire à la production d'ozone, et ceci d'autant plus qu'on se trouve dans des zones où les concentrations en ces mêmes composés - mais d'origine anthropique - deviennent limitantes.
- les dépôts d'ozone sur la végétation peuvent absorber une fraction significative de l'ozone produit au cours d'une journée

En outre, en raison de ses processus de formation/destruction et de sa réactivité, les concentrations en ozone sont très variables dans le temps à l'échelle journalière et saisonnière et dans l'espace à l'échelle régionale (1-100 km).

L'évaluation de la contribution des écosystèmes agricoles et forestiers au forçage radiatif lié à l'ozone est donc complexe. Elle requiert à la fois (1) des suivis de concentrations et de flux d'ozone et de ses précurseurs pour établir des modèles d'émissions et dépôts des différents composés concernés, et (2) des travaux de modélisation non seulement des émissions et dépôts, mais également de la chimie atmosphérique à l'échelle régionale (voire plus grande) pour expliquer et prédire la variabilité spatiale et temporelle des concentrations et flux.

Pour répondre à ces questions, le projet GESBiO3 comprenait à la fois

- un volet de modélisation consistant à coupler un modèle de Chimie-Transport, CHIMERE, à des modèles d'écosystèmes (CERES-EGC pour les cultures et CASTANEA pour la forêt) et une interface végétation-atmosphère (SurfAtm)
- un volet expérimental (suivis de flux d'ozone et de précurseurs, de CO₂ et N₂O dans différents écosystèmes) en vue d'améliorer la paramétrisation des sources et puits biogènes dans les modèles de Chimie-Transport et d'avoir des points de contrôle des sorties des modèles.

Les travaux étaient organisés selon 4 axes :

Axe 1 : mesure de flux de gaz à effet de serre (CO₂, N₂O, ozone) et de précurseurs (NO/NO₂) sur différents écosystèmes agricoles et forestiers.

Axe 2 : amélioration de la prise en compte des émissions et dépôts sur les zones naturelles dans les modèles Chimie-Transport

Axe 3 : évaluation de la sensibilité des quantités d'ozone produites et de leur variabilité spatiale aux sources et puits en zones agricoles et forestières

Axe 4 : estimation de la contribution des zones agricoles et forestières à l'effet de serre en zone périurbaine

Pour ce qui touche à sa partie expérimentale (Axe 1), ce projet avait été conçu en complémentarité avec d'autres projets menés sur les bilans de carbone des écosystèmes forestiers et agricoles, en particulier le projet intégré européen CarboEurope-IP et des projets sur les émissions de N_2O ou de NO_x par les sols.

Le Conseil Scientifique GICC a cependant choisi de ne soutenir que l'Axe 1 de ce projet, pour une durée de 12 mois, débutant en octobre 2004 (la convention a été prolongée par avenant jusque mars 2006). Le présent rapport ne portera donc que sur les travaux conduits dans le cadre de cet Axe 1. Il faut cependant noter que les autres axes concernant la modélisation (modèle CHIMERE pour la modélisation régionale des champs d'ozone ; modèle CERES pour les émissions d'oxydes d'azote par les sols) ont été partiellement traités indépendamment du programme GICC, dans le cadre d'une thèse co-financée par l'INRA et l'ADEME. L'état d'avancement de cette partie ne sera pas intégré dans ce rapport, puisque non soutenu par GICC-2, mais un résumé en est donnée pour information en Annexe 4.

Les travaux effectués durant les 12 mois de ce projet s'organisent en 4 parties principales :

- développement d'un capteur rapide de concentration en ozone, rendu nécessaire par l'impossibilité de trouver actuellement de tels capteurs sur le marché
- mise au point méthodologique pour la détermination des flux d'ozone à partir des mesures de fluctuation de concentration
- mise en place de sites de mesure et suivi de flux
- analyse des séries de dépôt mesurés et paramétrisation.

Description des travaux réalisés

1.1. Développement d'un capteur rapide d'ozone

Une difficulté imprévue importante est apparue en cours de projet : il n'est plus possible d'acheter des analyseurs d'ozone rapide, systèmes nécessaires pour la mesure directe des flux d'ozone. L'analyseur qui a été jusqu'ici le plus couramment utilisé, le OSG2 (Güsten et al., 1996), n'est plus fabriqué. De ce fait, plusieurs laboratoires de recherche se sont lancés dans la conception et la fabrication d'analyseurs basés sur le même principe (chimie-luminescence) pour leurs besoins propres. Nous avons ainsi pu bénéficier de notre coté d'un analyseur conçu et fabriqué par un laboratoire américain, qui a pu nous en fabriquer et vendre 4, achetés dans le cadre du projet **BIOPOLLATM** par les Unités INRA Ephyse et EGC (Figure 2).



Figure 2 : analyseur utilisé pour les mesures de dépôt d'ozone au cours des projets BIOPOLLATM et GESBiO3

Ils ne sont toutefois aujourd'hui plus fabriqués et même auparavant les délais étaient trop importants (6 mois à 2 ans) et la qualité des instruments et la pérennité de cette solution trop incertaines pour en faire une solution viable à terme. Par le biais de nos collaborations scientifiques et du réseau d'excellence ACCENT (<u>http://www.accent-network.org</u>, composante BIAFLUX), nous avons également connaissance de plusieurs laboratoires (CEH Edinburgh, Univ. Leeds ; Univ. Nottingham ; Univ. Brescia ; ...) qui cherchent à mettre au point des analyseurs rapides d'ozone basés sur le même principe (chimiluminescence), mais cela reste encore expérimental et d'abord orienté vers leurs propres besoins.

Un contact a été pris avec la division technique de l'INSU afin de voir si celle-ci pourrait se charger du montage ou du développement de tels analyseurs, sachant que nos partenaires pourraient nous en fournir les plans. Toutefois, malgré une réponse de principe positive, leur plan de travail (préparation et réalisation de la campagne AMMA, notamment) ne nous laissait pas entrevoir de solution à court terme.

Nous avons donc fini pas nous tourner vers une entreprise susceptible de réaliser un tel instrument, basé sur le système que nous possédions (Figure 2) et avec l'accord du laboratoire qui l'avait conçu. Après définition du cahier des charges, discussions avec des fabricants et réponse à la publicité sur le « Portail Achat » de l'INRA, notre choix s'est porté sur la société SEXTANT dont le responsable a une excellente expérience dans le domaine de la conception et la réalisation d'instrumentation scientifique pour les mesures atmosphériques. La description technique de cet instrument est donnée en Annexe 1 (extrait de la réponse de SEXTANT à la publicité). Son coût sera équivalent à celui de l'analyseur fabriqué aux Etats-Unis, et inférieur à celui de l'OSG2.

Par rapport à l'analyseur d'origine, des améliorations ont été apportées dans 5 directions :

- séparation de la tête de mesure du reste de l'analyseur (pompe, électronique, visualisation, ...) qui permet de minimiser certaines interférences électriques et d'avoir un instrument moins volumineux permettant de le placer près de l'anémomètre sonique et donc de minimiser la longueur de tuyau de prélèvement (voir partie suivante)
- optimisation de la tête de mesure pour assurer un meilleur écoulement de l'air au contact de la « zone chimie-luminescente », et mesure en continu des débits, pression et température de l'air dans le capteur.
- choix d'un photomultiplicateur plus sensible et de meilleure spécifications techniques (gain, robustesse)
- options de visualisation sur site facilitant la mise au point et la vérification du fonctionnement du capteur.
- amélioration de l'électronique du capteur, et ajustement automatique du gain permettant d'optimiser la sortie tension pour sur toute la gamme de concentration.

Un premier prototype a été commandé et est en cours de réalisation. Il sera testé à l'automne 2006 (livraison programmée en octobre 2006) et l'hiver 2006-07.

Si les tests sont concluants plusieurs analyseurs seront commandés pour équiper les sites de Lusignan (prairie), Fontainebleau (forêt de Chênes), et Hesse (forêt de Hêtres).

Nous avons en outre commencé à informer la communauté scientifique française et européenne sur l'existence de ce nouvel analyseur.

1.2. Mise au point de méthodologies de mesures turbulentes pour la détermination des dépôts d'ozone

Pour les espèces chimiques telles que la vapeur d'eau ou le CO_2 , les mesures de flux par la méthode des corrélations sont devenues relativement courantes, même si des améliorations sont encore régulièrement apportées aux technologies de mesures et au traitement du signal. L'histoire est beaucoup plus récente et l'expérience moindre pour l'ozone et cet état de fait a nécessité un important travail d'analyse des données et de mise au point pour élaborer une chaîne de traitement des données robuste. Dans la perspective de mettre en place un réseau de mesure de flux sur lequel de grandes quantités de données seront manipulées en continu et certains sites seront gérés par des non spécialistes des méthodes micrométéorologiques, il nous a semblé en effet important de mettre au point des procédures d'acquisition et de traitement des données qui permettent de faire un diagnostic rapide sur le fonctionnement du système et un traitement et un tri objectif dans les données acquises. Les travaux conduits ici portent sur 3 points :

- mise au point d'un logiciel d'acquisition et prétraitement de données sous LabView® et MatLab®
- mise au point de procédures de traitement des données de turbulence
- correction de l'atténuation spectrale du signal

NB : L'ensemble des travaux présenté ci-dessous est commune à l'ensemble des composés pour lequel nous effectuons de mesures de flux dans le cadre de différents projets nationaux (BIOPOLLATM) ou européens (CarboEurope-IP, NitroEurope-IP). La contribution spécifique de GESBiO3 dans cet ensemble de travaux concerne principalement ce qui touche aux flux d'ozone.

Les deux premiers points ci-dessus ont été développés largement dans d'autres cadres que le projet GESBiO3, même si celui-ci y a contribué au même titre que les autres projets (CarboEurope-IP, *BioPolLATM*). Il a en particulier permis d'étendre ces traitements au cas de l'ozone, constituant par là l'introduction d'un premier gaz autre que le CO_2 et H_2O dans cette chaîne d'acquisition et de traitement des données de turbulence. La présentation de ces points ne sera donc pas faite dans le corps de ce rapport, mais est reportée en Annexe 2.

Correction de l'atténuation spectrale du signal

Rappel : Principe de la mesure de flux par la méthode des covariances

Moyennant quelques hypothèses, le flux F_c (en g m⁻² s⁻¹) d'un composé gazeux de concentration ρ_c (en g m⁻³) entre la surface et l'atmosphère est donné par :

$$F_{c} = \overline{w'\rho'_{c}} = \frac{1}{\Delta T} \int_{\tau}^{t-\Delta T/2} w'(\tau) \rho'_{c}(\tau) d\tau$$
(1)

où w' est la composante fluctuante de la vitesse verticale du vent W et ρ'_c est la composante fluctuante de la concentration. $w'\rho'_c$ est la covariance entre W et ρ_c . La barre horizontale indique une moyenne temporelle sur l'intervalle de temps ΔT , *t* est le temps et τ la variable d'intégration.

On montre que le flux F_c s'exprime également en fonction du co-spectre d'énergie $S_{wpc}(f)$ qui est la transformée de fourrier de la fonction de covariance, et f est la fréquence :

$$F_{\rm c} = \int_{0}^{\infty} S_{\rm wpc}(f) df$$
⁽²⁾

En pratique les bornes de l'intégrale sont limitées aux fréquences f_{\min} qui est l'inverse de la durée d'échantillonnage et f_{\max} qui est la fréquence d'échantillonnage. La mesure des flux par la méthode des corrélations consiste donc à mesurer les termes W et ρ_c à une fréquence suffisamment élevée pour que le co-spectre mesuré $S_{w\rho c}$ inclue les fréquences qui « contiennent » l'énergie du signal, ce qui formellement se traduit par : $S_{w\rho c}(f_{\max}) \ll \max(S_{w\rho c}(f))$.

Atténuation spectrale d'un signal turbulent échantillonné dans un tube

Les mesures de flux par la méthode des covariances se font soit avec des analyseurs qui mesurent directement dans l'air ambiant la concentration du gaz (en anglais « open-path »), soit avec des analyseurs déportés qui nécessitent d'échantillonner l'air dans un tube afin de l'acheminer vers l'analyseur (en anglais « closed-path »). Les mesures « non déportées » nécessitent d'être corrigées des fluctuations de densité de l'air liées aux fluctuations de

températures (correction de Webb, Webb *et al.*, 1980), tandis que les mesures déportées se font à température « constante » du fait du passage dans les tubes et ne nécessitent donc pas cette correction.

En revanche les mesures déportées engendrent une atténuation des fluctuations de concentrations dans les hautes fréquences, liées à la diffusion radiale du composé dans le tube. Cette atténuation est d'autant plus forte que le débit est faible et que le tube est long parce que le temps de transfert et donc de diffusion augmente. L'atténuation est beaucoup plus forte en régime laminaire qu'en régime turbulent du fait du fort gradient de vitesse de l'air dans le tube entre sa surface et son centre. Lenschow et Raupach (1991) ont étudié la fonction de transfert spectrale dans un tube en fonction de la fréquence f, $G_t(f)$, définie comme le rapport de la concentration en entrée du tube sur celui en sortie pour chaque fréquence. Ils trouvent par une approche théorique que dans une tube de rayon r, de longueur L, avec un écoulement de vitesse moyenne U, ayant un nombre de Reynolds Re, $G_t(f)$ prend la forme suivante :

$$G_{\rm t}(f)^2 = \exp(-160 \, {\rm Re}^{-1/8} \, r \, f^2 \, L \, / \, U^2)$$
 (3)

Sachant que le débit $Q = U \times \pi r^2$ et que le nombre de Reynolds Re = 2 U r / v, où v est la viscosité de l'air (1.5 10⁻⁵ m² s⁻¹), l'équation (3) permet de relier l'atténuation spectrale $G_t(f)$ au débit et aux dimensions du tube (voir Figure 3). Sachant que le co-spectre S_{wpc} est habituellement nul au-delà de 1-2 Hz sur nos sites, on voit qu'un tube de 0.5 m et un débit de 2 l min⁻¹ permettent d'obtenir une atténuation quasi-nulle. En revanche nos conditions correspondent à un débit supérieur à 1 L min⁻¹ et un tube de 3 m environ, soit une atténuation potentiellement forte.



Figure 3. Fonction de transfert spectrale $G_t(f)$ en fonction de la fréquence pour des tubes de diamètre 6 mm et de longueurs 0.5 m, et 3 m, et des débits d'air de 0.5 L min⁻¹, 2 L min⁻¹, 10 L min⁻¹.

Méthode de correction de l'atténuation spectrale

Les méthodes développées pour corriger cette atténuation spectrale sont toutes basées sur l'estimation de la fonction de transfert spectrale $G_t(f)$ en prenant souvent comme référence le co-spectre de température S_{wT} , qui n'est pas atténué car la mesure de température est réalisée sur l'anémomètre à la même fréquence que la vitesse du vent (voir par exemple Aubinet *et al.* 2000). Par ailleurs, d'après la théorie de similitude des échanges turbulents dans la couche

limite de surface, les co-spectres de tous les composés scalaires sont identiques à condition que les sources et puits soient répartis de la même façon à la surface (hypothèse d'homogénéité des sources et puits). L'atténuation du flux F_c (ΔF_c), liée à l'atténuation spectrale des concentration dans le tube est donnée par :

$$\Delta F / F = 1 - \frac{\int_{\infty}^{0} S_{wT}(f) df}{\int_{0}^{\infty} S_{wpc}(f) df}$$
(4)

Nous avons développé une méthode basée sur l'utilisation des fonctions « ogives » normalisées (O_{wpc}) (voir par exemple Foken *et al.* 2006). La fonction ogive $O_{wpc}(f)$ est l'intégrale entre f_{max} et f du co-spectre S_{wpc} , normalisée par le flux F_c . Ainsi $O_{wpc}(f)$ est simplement le pourcentage de flux contenu dans la bande de fréquence $[f ... f_{max}]$. Formellement on a :

$$O_{w\rho c}(f) = \frac{\int_{-\infty}^{f} S_{w\rho c}(v) dv}{W'\rho'_{c}}$$
(5)

En vertu de l'équation (2), une ogive normalisée présente la propriété que $O_{wpc}(0) = 1$. Par ailleurs comme les co-spectres de tous les scalaires sont en théorie identiques, les ogives pour l'ozone et la température doivent se superposer. Si le signal de l'ozone est atténué par une fonction de transfert spectrale $G_t^{O3}(f)$, qui joue le rôle d'un filtre passe bas de fréquence f_c alors la fonction ogive $O_{wO3}(f)$ est telle que $O_{wO3}(f \ge f_c) = 0$. De manière plus générale, l'atténuation du signal O₃ au-dessus d'une fréquence f_c se caractérise par un écart entre $O_{wO3}(f)$ et $O_{wT}(f_c)$. En vertu de la définition de l'ogive, cet écart donne le pourcentage de flux « perdu ». En pratique, comme l'ogive est normalisée par le flux qui est lui même biaisé, et que la contribution variable des basses fréquences sur le flux peuvent introduire un biais supplémentaire sur l'ogive, l'atténuation spectrale du flux est estimée à partir de l'écart maximal observé entre $O_{wO3}(f)$ et $O_{wT}(f)$ dans la partie des hautes fréquences du spectre. Un exemple est donné sur la Figure 4, où l'écart maximal entre les deux ogives $O_{wO3}(f)$ et $O_{wT}(f)$ se situe à f = 0.4 Hz, et indique environ 15% de d'atténuation spectrale du flux d'ozone.

Perspectives: Elaboration d'un modèle empirique de correction spectrale et validation

La méthode utilisée pour estimer l'atténuation spectrale (Figure 4) est basée sur des données semi-horaire. Lorsque la covariance wT est mal définie, c'est à dire lorsque les flux de chaleur sensibles sont faibles, en particulier la nuit, cette méthode donne des résultats incertains. Il convient donc de « lisser » les résultats semi-horaires pour obtenir des estimations fiables de l'atténuation spectrale. Pour cela on se base sur le fait que l'atténuation spectrale est principalement une fonction de trois paramètres : (1) le lag (le temps de passage dans le tube), (2) la vitesse du vent, et (3) la stratification thermique.

Afin d'aboutir à des estimations fiables, les résultats semi-horaires seront donc moyennés par classes de vitesse du vent, de lag et de stratification thermiques et une fonction analytique de l'atténuation en fonction de ces trois paramètres sera approximée afin de fournir un « modèle empirique » d'atténuation spectrale et donc de correction de ces atténuations. Les paramètres de ce modèle empirique devront être calculés pour chaque site et chaque jeu de données.

Il paraît essentiel de valider cette méthode en comparant les mesures obtenus avec nos capteurs d'ozone et notre chaîne de traitement à des capteurs non déportés d'ozone (type

« OSG2 Güsten »). Cette comparaison de capteurs et de méthode fait l'objet de discussions au sein du réseau européen ACCENT (<u>http://www.accent-network.org/</u>)



Figure 4 : Illustration de la méthode des « ogives » pour estimer l'atténuation spectrale du flux d'ozone due à la mesure déportée. L'atténuation du flux est estimée comme la différence maximale entre l'ogive wO3 et wT pour des fréquences supérieures à 0.1 Hz (marqué par lé trait noir). Ici l'atténuation est d'environ 15%.

1.3. Réalisation de mesures de flux sur différents écosystèmes

Comme le laisse supposer la partie 1.1 de ce rapport, la difficulté de trouver des analyseurs rapides d'ozone, chaînon indispensable pour la mesure des flux d'ozone par la méthode des corrélations, n'a pas permis d'effectuer le déploiement escompté de sites de mesures de dépôt d'ozone sur différents écosystèmes dans la période couverte par ce rapport. Les solutions trouvées devraient permettre, si l'évaluation des nouveaux analyseurs est positive, la mise en place de telles mesures au printemps ou à l'été 2007. Notre travail s'est focalisé sur 3 points :

- Tests et correction des analyseurs d'ozone actuellement disponibles
- Mise en place des dispositifs et démarrage des mesures de base sur d'autres sites
- Mesures de dépôts d'ozone sur différents écosystèmes à l'aide des analyseurs existants

Mise au point et tests des capteurs rapides d'ozone

Dans le cadre du programme **BIOPOLLATM** (Cellier et al., 2004), nous avions acquis 2 (en 2002) puis 4 (en 2005) analyseurs rapides d'ozone fabriqués par un laboratoire américain (cf partie 1.1). Ces analyseurs ont été à la base des mesures de dépôt que nous avons faites au cours des dernières années dans la cadre du projet **BIOPOLLATM** puis GESBiO3 à Grignon et en différents sites dans la région bordelaise.

Des problèmes récurrents de fonctionnement qui justifient des tests approfondis

Au début de l'expérimentation réalisée à Grignon sur un champ de maïs dans le cadre du projet **BioPollATM**, nous avons installé les deux premiers capteurs à proximité l'un de l'autre sur la parcelle de maïs afin de les tester, et leur comparaison, qui a duré de mi-juin à fin juillet, s'était alors avérée très satisfaisante.

En mars 2003, les deux capteurs ont été installés en forêt landaise au dessus et en dessous du houppier, sur le site du Bray près de Bordeaux. Ces mesures ont duré jusqu'à octobre 2004, mais ont mis en évidence des problèmes récurrents sur le capteur situé à 40 m (noté n°1 ci-après). Ceci nous a conduit à procéder d'octobre 2004 à février 2005 à une

comparaison des 2 capteurs à 40 m. Notons à ce propos que, dès la fin 2003, nous avions commandé un 3^e capteur afin de pouvoir procéder à une comparaison des deux déjà en place sur le site sans qu'il soit besoin d'interrompre l'un des niveaux de mesure. Mais nous n'avons finalement reçu ce 3^e capteur (noté par la suite n°3) qu'au printemps 2005, sans qu'il ait été réellement testé par le constructeur. Il n'a, dès le début, pas fonctionné correctement, et il en est de même pour un capteur du même type acquis par la suite par nos collègues de Grignon (noté par la suite n°4). Nous avons donc procédé récemment à une révision complète des quatre appareils, détaillée dans le second point ci-après, afin de pouvoir disposer enfin d'un parc de capteurs fiables pour la mesure des flux d'ozone.

Comparaison des capteurs n°1 et n°2 durant la campagne CERES2005

Les capteurs n°1 et n°2 ont été comparés au cours de la campagne CERES2005 (rpojet CarboEurope-Regional ; voir ci-après) au dessus d'un champ de maïs dans les Landes. La figure 5 illustre les dysfonctionnements du capteur n°2 au cours de cette expérimentation. Pour ces six jours de comparaison entre les capteurs n°1 et n°2, les valeurs présentées sont des moyennes sur 30 minutes).



Figure 5. Comparaison des capteurs n°1 (en rouge) et n°2 (en bleu) sur le champ de maïs. (a) concentration en ozone ; (b) flux d'ozone ; (c) vitesse de dépôt.

Comme on peut le voir sur la figure 5a, ce n'est pas au niveau de la mesure de concentration elle-même que se situe le problème, le capteur n°2 donnant sensiblement les mêmes valeurs que le n°1. Par contre, la covariance WO₃ (Fig. 5b) obtenue à partir des fluctuations de la concentration d'ozone est beaucoup plus faible pour le capteur n°2 que pour le capteur n°1, et ceci se répercute évidemment dans le calcul de la vitesse de dépôt. Notons néanmoins que la covariance obtenue à partir du capteur n°2 présente une variation qui pourrait sembler cohérente, avec un cycle jour/nuit ayant une allure classique. On note même certains jours (notamment le 195) une nette corrélation avec la covariance donnée par l'autre capteur. On pourrait donc *a priori* penser que le capteur n°2 fonctionne, s'il ne donnait des vitesses de dépôt beaucoup trop faibles. Ainsi, on arrive à des conductances de dépôt d'ozone plus faibles que la conductance stomatique, ce qui n'a physiquement pas de sens.

Révision complète et tests des quatre capteurs rapides d'ozone

Lors des opérations de maintenance effectuées par la suite au laboratoire, nous avons pu déterminer que la sous-estimation des flux d'ozone par le capteur n°2 provenait d'une forte chute de la sensibilité du photo-multiplicateur (qui, après la réaction de chimiluminescence, fournit un signal proportionnel à la concentration d'ozone). Ce problème se traduit par une atténuation des fluctuations rapides de cette concentration, ce qui conduit à une sous-estimation de la covariance entre fluctuations de concentration d'ozone et de vitesse verticale du vent. Cela nous a amené bien sûr à remplacer le photo-multiplicateur défectueux. Et pour ce qui est des mesures effectuées en 2005 sur maïs, et surtout sur la parcelle de haricots où nous n'avons pas de mesures alternatives, nous espérons pouvoir récupérer les données en effectuations d'ozone qui, dans le cas présent, est très inférieure à la pente classique de -5/3. Les mesures effectuées à l'aide du capteur n°1 serviront de référence pour tester la validité de cette méthode de correction des flux pour le capteur n°2, et si celle-ci s'avère valable, nous l'appliquerons ensuite aux données obtenues avec ce capteur sur la parcelle de haricots.

Outre le remplacement du photo-multiplicateur du capteur n°2, nous avons procédé ces derniers mois à de nombreuses opérations de maintenance sur les 4 capteurs que nous avons mentionnés au début de cette section. D'abord il s'agissait de comprendre pourquoi les nouveaux capteurs (n°3 et n°4) n'avaient, dès leur arrivée, pas fonctionné correctement. Pour les deux, le diagnostic fut le même, deux raisons expliquant leur dysfonctionnement. D'une part, la présence d'un composant électronique (condensateur) défectueux (qui n'était d'ailleurs pas du même type que sur les 2 premiers capteurs), provoquant de manière quasi permanente des parasites importants sur le signal physique mesuré. D'autre part, une mauvaise étanchéité au niveau du photo-multiplicateur qui rendait ces capteurs très sensibles à la lumière solaire ; dès lors bien sûr, le signal qu'ils délivraient ne pouvait avoir aucun sens. Une fois ces deux problèmes résolus, les deux nouveaux capteurs ont enfin commencé à délivrer des résultats similaires aux deux autres, et à partir de là, ils ont subi les mêmes opérations de maintenance. Celles-ci peuvent être classées en deux catégories, celles se rapportant à l'étanchéité du circuit de l'air chargé en ozone dans les capteurs, et celles concernant l'électronique des appareils.

- Concernant le premier aspect, nous avons constaté que le circuit présentait de multiples fuites, quasiment à tous les raccords et surtout sur ceux en entrée et sortie de la pompe d'aspiration. Nous avons par conséquent été amenés à nettoyer les éléments de ces deux pompes et, pour les 4 capteurs, à changer l'ensemble des raccords du circuit d'air dont nous avons ensuite vérifié l'étanchéité.
- Concernant l'électronique des capteurs, nous avons constaté de nombreux défauts de soudure (soudures « sèches ») dans les circuits imprimés, en particulier sur les 2 nouveaux appareils. Durant la première phase de tests, l'une des soudures du capteur n°3 a d'ailleurs cédé, ce qui s'est traduit par une panne franche de l'appareil. Si ce type de problème ne s'était pas encore produit sur les capteurs n°1 et n°2, sans quoi nous l'aurions immédiatement constaté, nous avons tout de même jugé préférable de refaire proprement l'ensemble des soudures des circuits imprimés des 4 capteurs.

Après ces différentes interventions, nous avons procédé en mars 2006 à une nouvelle comparaison des 4 capteurs, qui, comme on peut le constater sur les figures 6 et 7, s'est révélée concluante. Nous pensons donc que les quatre appareils sont aujourd'hui en état de fonctionnement optimal. Néanmoins, les nombreux problèmes que nous avons eus jusqu'à maintenant nous incitent à la plus grande vigilance dans le suivi des mesures à venir.



Figure 6. Comparaison des vitesses de dépôt obtenues avec les quatre capteurs, après leur révision complète durant l'hiver 2005-2006.



Figure 7. Comparaison, sur la même période que sur la figure 6, des vitesses de dépôt données par chacun des capteurs avec la valeur moyenne des quatre.

Conclusion sur les tests

Ces différentes comparaisons et tests ont clairement mis en évidence la nécessité d'un effort important d'évaluation des analyseurs et les limites de fiabilité de la solution que nous avions jusque là privilégiée, au delà des délais excessifs de livraison (6 mois à 2 ans !). Cela nous renforce dans notre recherche d'une solution plus fiable en terme de disponibilité des instruments et de réalisation technique (cf partie 1.1 de ce rapport). Il apparaît qu'il sera cependant nécessaire de faire une évaluation approfondie des nouveaux analyseurs avant d'équiper l'ensemble des sites.

Mise en place des différents sites de mesure

L'une des ambitions de ce projet était d'établir un réseau de mesure des dépôts d'ozone sur différents écosystèmes (forêts, prairies et cultures) en France, en se basant sur des réseaux de mesure de flux de CO_2 existant principalement dans le cadre du projet européen CarboEurope-IP.

 Au début du projet GESBiO3, les sites de Bray (forêt de Pin) près de Bordeaux, Hesse (forêt de Hêtres) près de Nancy/Sarrebourg et Grignon (cultures) près de Paris étaient opérationnels pour des mesures de flux de CO₂ et H₂O par la méthode des corrélations. Cependant, seuls les sites de Bray et Grignon disposaient d'analyseurs rapides d'ozone permettant des mesures directes de dépôt (voir partie suivante).

- Un analyseur d'ozone « lent » pour la mesure des concentrations en ozone au dessus du couvert a été acheté et installé sur le site de Hesse en 2005.
- En outre, un analyseur d'oxydes d'azote (NO et NO₂) a été installé sur le site de Bray en 2005 et sur le site de Grignon en 2006. Ce type d'analyseur est utile, voire indispensable pour interpréter les mesures de dépôt, en particulier lors des épisodes de pollution de l'air importante
- Les mesures de flux de CO₂/H₂O ont été mises en place sur le site de Lusignan (prairie) à l'automne 2004 et les mesures sont continues depuis le printemps 2005. Ce dispositif a été installé dans le cadre de l'Observatoire de Recherche en Environnement « Prairie, Cycles Biogéochimiques et Biodiversité) (ORE PCBB ; http://pcbb.ore.fr/).
- Le site de la forêt de Fontainebleau (forêt de Chênes) a été équipé d'une tour instrumentée qui est opérationnelle depuis la fin de l'année 2005. Ce dispositif a été installé dans le cadre du programme CarboRégion soutenu par le programme GICC (APR 2001) et l'Observatoire de Recherche en Environnement « Fonctionnement des écosystèmes forestiers » (F-ORE-T ; http://www.gip-ecofor.org/f-ore-t/).

Les sites de Hesse, Fontainebleau et Lusignan sont prêt à recevoir un analyseur d'ozone rapide dès que ces instruments auront été bien évalués.

Mesures de dépôts d'ozone sur différents écosystèmes depuis 2004

Les différentes expérimentations

Les analyseurs rapides d'ozone ont permis de documenter les dépôt d'ozone sur différents écosystèmes,

- d'une part à Grignon, sur une parcelle sur laquelle est menée une rotation maïs/blé/escourgeon (avec une moutarde de septembre à avril, entre l'escourgeon et le maïs); des mesures de flux de CO₂/H₂O et dépôt d'ozone ont été faites sur la moutarde (automne 2004-printemps 2005), le maïs (printemps-automne 2005) et blé (automne 2005-été 2006). La surface est un sol nu ou des chaumes entre les cultures ou juste après les semis.
- d'autre part dans les environs de Bordeaux sur différents écosystèmes : forêt de Pin maritime, culture de maïs, culture de haricot. Sur certaines périodes, les mesures sur la forêt de Pin ont été faites à deux niveaux : au dessus (40 m) et en dessous (7 m) de la canopée. Les mesures sur culture ont été faites dans le cadre de la campagne CERES (CarboEurope Regional Experiment Strategy) qui s'est tenue de la mi-mai à la fin juin 2005, et se sont poursuivies jusqu'au mois d'octobre (récolte du maïs).

Les différents analyseurs ont également été déplacés temporairement pour des comparaisons et vérification ou réparation. Le Tableau 1 récapitule l'ensemble des mesures faites depuis 2004 avec les 5 analyseurs rapides d'ozone. Dans toutes ces situations, ces mesures étaient faites parallèlement à des mesures de flux de CO_2 et H_2O .

Sur les périodes de mesure effective sur le terrain, les statistiques de fonctionnement sont très variables selon les analyseurs et les sites :

 lors de l'expérimentation de 2002 sur une parcelle de maïs dans le cadre du projet *BioPolLATM*, les 2 analyseurs, suivis quotidiennement avaient eu un fonctionnement satisfaisant pendant la totalité de la période expérimentale (mi-juillet à fin septembre 2002).

- pour les mesures sur forêt de mars 2003 à octobre 2004, des problèmes récurrents de fonctionnement (cf début de la partie 1.3) ont fait que, sur cette période de 20 mois, soit plus de 600 jours, seuls 300 jours de données paraissaient exploitables, mais avec une qualité qui reste douteuse et nous a amené à contrôler et réparer les analyseurs.
- Sur la deuxième série de mesures sur cultures à Grignon, bénéficiant de l'expérience acquise sur Grignon et Bordeaux et les différents test et comparaison faits, le taux de fonctionnement est bien meilleur : fonctionnement effectif pendant 92% du temps et environ 80% de données correctes (mais de qualité variable) sur l'ensemble de la période de 2 ans.
- Pendant l'expérimentation CERES 2005 (mai-juin 2005 et poursuite jusqu'en octobre), l'analyseur No 1 a fonctionné correctement pendant l'ensemble de la période (4,5 mois) mais pas le No 2.

	2004												2005												2006						
mois	J	F	Μ	Α	Μ	J	J	Α	S	0	Ν	D	J	F	Μ	А	Μ	J	J	Α	S	0	Ν	D	J	F	Μ	А	Μ	J	
No1	Forêt niveau haut													Te	sts	Maïs										Τ					
No2	Forêt niveau bas Forêt									orêt	(ha	ut) Tests			Har	icot	Maïs								E	7	7 m	L			
No3																Χ											S	2	2 m	ι	
No4																										Χ	Т				
No5						X			So	ol n	nu -	⊦ m	ou	tarc	le		Maïs							Blé							

Tableau 1 : planning des expérimentations de mesure des dépôts d'ozone. Les « X » indiquent la réception des analyseurs correspondants.

Ces différentes expérimentations et contrôles des analyseurs rapides d'ozone montrent donc bien la nécessité d'un contrôle régulier de ce type d'analyseurs et de se doter de moyen de comparaison entre analyseurs, non seulement en valeurs moyenne, mais aussi en terme de mesure de flux. On peut toutefois penser qu'avec des analyseurs bénéficiant d'une meilleure réalisation technique (qualité des composants et de la construction, mesures en ligne du débit de la température et de la pression pour aider à diagnostiquer puis analyser les situations à problème), et avec l'expérience que nous avons pu acquérir depuis 2 ans, moins de problèmes se poseront à terme. Il paraît néanmoins nécessaire de rester attentifs à ces questions et garder des interactions fortes entre les laboratoires impliqués dans ce réseau afin de développer une expertise forte sur ces aspects méthodologiques.

Quelques exemples de séries de mesure

Les figures suivantes illustrent les mesures de dépôt d'ozone qui ont été réalisées sur les différents sites :



Figure 8. Vitesses de dépôt d'ozone obtenues sur le site du Bray en forêt landaise (pin maritime), au-dessus (fig. 8a) et en dessous (fig. 8b) du houppier de pins, en mai 2006.



Figure 9 : mesures de concentration (a), dépôt (b) et vitesse de dépôt (c) d'ozone mesurées à la fin de l'année 2004 sur le site de Grignon. Avant le 25 août, le sol est couvert de chaumes d'escourgeon. Il a été travaillé en surface le 26 août puis la moutarde a été semée le 2 septembre. Les courbes bleue et rouge de la figure 8a sont des mesures de concentration en ozone faites par AirParif sur 2 sites de l'ouest parisien.



Figure 10. Flux (fig. 10a) et vitesse de dépôt (fig. 10b) d'ozone mesurés sur la parcelle de maïs irrigué du site de la Cape Sud (Gironde) du 30 mai au 5 août 2005.

Les données validées sont actuellement archivées localement . Les données de Grignon sont en plus disponibles sur la base de données de CarboEurope-IP. Lorsque notre réseau de suivi des dépôts d'ozone sera opérationnel, il faudra sans doute mettre au point une manière d'accéder aisément à l'ensemble des données relatives aux mesures de flux de gaz à effet de serre (CO2, N2O, O3) et précurseurs (NOx et peut-être COV) sur nos sites, soit par une base de données indépendante (qui « doublera en grande partie la base de données CarboEurope) soit en établissant des liens avec les bases de données existantes (mais l'ozone et ses précurseurs n'intéressent pas directement CarboEurope-IP).

1.4. Analyse des données et paramétrisation des dépôts d'ozone

Les données de dépôt d'ozone et autres variables mesurées sur nos sites sont destinées principalement à établir et valider des paramétrisation et modèles de dépôt d'ozone. Le travail qui a été conduit dans le cadre de GESBiO3 se situe dans la continuité des travaux de **BIOPOLLATM**, (Cellier et al., 2004) et nous présentons ci-dessous quelques développements récents conduits au cours de l'année 2005.

Analyse et modélisation du dépôt d'ozone sur une parcelle de maïs non irrigué (Grignon, région parisienne, été 2002)

Les résultats présentés ici, basés sur les données d'une expérimentation conduite dans le cadre du projet **BIOPOLLATM** en 2002, ont été obtenus au cours de l'année 2005 et présentés lors du premier congrès du réseau européen ACCENT en septembre dernier (Lamaud *et al*, 2005). Les figures 11 à 14 sont tirées de cette présentation. Ces résultats sont actuellement en cours de publication dans deux articles à soumettre cette année à la revue Atmospheric Environment (Lamaud *et al*, 2006b).

L'objectif de l'expérimentation réalisée à Grignon, comme d'autres qui ont suivi, était d'acquérir une base de données permettant d'analyser et de modéliser le dépôt d'ozone sur un couvert végétal, dans ses différents composantes : dépôt stomatique, dépôt cuticulaire, dépôt sur le sol, destruction de l'ozone par réaction chimique avec les composés azotés. Une première série de travaux, sur lesquels nous ne reviendrons pas ici, a permis d'établir, à partir des données nocturnes, un modèle de dépôt non stomatique combinant le dépôt cuticulaire et le dépôt sur le sol, en s'appuyant sur les travaux antérieurs de Zhang et al (2002, 2003). Ce modèle est ici utilisé pour quantifier la part du dépôt non stomatique dans le dépôt diurne d'ozone, et in fine pour modéliser ce dernier en couplant le modèle de dépôt non stomatique au dépôt stomatique estimé à partir de la conductance stomatique déduite des mesures de flux d'évaporation. Une autre approche utilisée par de nombreux auteurs est d'estimer puis de paramétrer le dépôt non stomatique à partir du dépôt diurne global en lui soustrayant le dépôt stomatique, ce dernier étant déterminé soit à partir du flux d'évaporation mesuré, soit à l'aide d'un modèle classique de conductance stomatique. Si le dépôt non stomatique ainsi estimé et modélisé est validé par les mesures de dépôt nocturne, les deux approches sont sensiblement équivalentes.

Si nous avons fait le choix dans cette analyse d'estimer la conductance stomatique de dépôt d'ozone à partir du flux d'évaporation mesuré (via l'équation de Penman-Monteith (Monteith et Unsworth, 1990)), et non à l'aide d'un modèle, notons que cette approche n'est valable qu'à la condition que le flux d'évaporation provienne exclusivement de la transpiration du couvert végétal et non de l'évaporation d'eau (pluie, rosée) présente à la surface. C'est pourquoi il est nécessaire de procéder à une sélection des données expérimentales de flux d'évaporation, soit à l'aide de mesures de l'humidité de surface, soit à partir de l'humidité relative de l'air (RH), comme c'est illustré dans la figure 11. Dans cette figure, les distorsions qui apparaissent lorsque RH > 70% entre, d'une part la conductance de

dépôt d'ozone (fig. 11a), d'autre part le flux de CO_2 (fig. 11b), et la conductance stomatique g_s , sont dues à une estimation erronée de cette dernière lorsque la surface est couverte d'eau.

De ce fait, l'analyse de la partition entre dépôt stomatique et non stomatique ne porte ici que sur les données pour lesquelles RH < 70%. C'est ce qui est présenté dans la figure 12. Cette figure montre que sur le maïs, en conditions diurnes, la conductance totale g_c du dépôt d'ozone n'est que légèrement supérieure à la conductance stomatique g_s , autrement dit que le dépôt est ici essentiellement d'origine stomatique. Sur la figure 12 est également représentée la conductance non stomatique (g_{ns}) estimée par le modèle basé sur les données nocturnes. On peut constater que les valeurs de g_{ns} estimées de jour par le modèle sont bien compatibles avec le terme résiduel $g_c - g_s$. Dès lors, la conductance totale de dépôt d'ozone (g_c) peut être correctement modélisée par la somme $g_s + g_{ns}$, comme c'est illustré dans la figure 13.

On note néanmoins dans la figure 13 un écart parfois important entre les valeurs de g_c mesurées et modélisées. Ceci peut être dû en partie aux effets de la destruction de l'ozone par réaction chimique, qui ne sont pas pris en compte dans notre paramétrisation. Cette hypothèse est renforcée par le fait que les valeurs de g_c mesurées sont systématiquement plus élevées (d'environ 50%) que celles du modèle lorsque la concentration en NO est supérieure à 1 ppb (Figure 14). La destruction de l'ozone par réaction chimique avec des composés azotés pourrait donc dans ce cas représenter une fraction non négligeable, de l'ordre du tiers, du dépôt.



Figure 11. Conductance totale de dépôt d'ozone (fig. 11a) et flux de CO_2 (avec inversion de signe, fig. 11b), en conditions diurnes, en fonction de la conductance stomatique (g_s) estimée à partir du flux d'évaporation mesuré. Les résultats sont classés en fonction de l'humidité relative de l'air (RH) : en bleu : RH < 70% ; en rouge : RH > 70%.



Figure 12. Conductance totale de dépôt d'ozone $(g_o, en bleu)$ et conductance non stomatique modélisée $(g_{ns}, en noir)$, en conditions diurnes, en fonction de la conductance stomatique (g_s) , lorsque l'humidité relative de l'air est inférieure à 70%.



Figure 13. Comparaison des valeurs mesurées et modélisées de la conductance totale de dépôt d'ozone (g_c), en conditions diurnes sèches (RH > 70%).



Figure 14. Ratio des valeurs mesurées sur les valeurs modélisées de la conductance g_c, en conditions diurnes sèches, en fonction de la concentration en NO.

Analyse des vitesses de dépôt d'ozone et des flux stomatiques à l'aide d'un modèle

Nous présentons ci-dessous une première analyse des données de dépôt d'ozone mesurées sur le site de Grignon en 2005. Ces résultats illustrent en particulier l'évolution des dépôts et vitesse de dépôt au cours de la saison, qui varient en fonction de l'indice foliaire de la culture, des conditions climatiques et du niveau de pollution. Les conductances ont été estimées à l'aide du modèle présenté à l'Annexe 3.

Evolution annuelle des conductances g_c et g_s en 2005

De janvier à avril, le sol était couvert d'une culture intermédiaire de moutarde qui a été détruite naturellement par le gel et le vent au cours de l'hiver. La culture de maïs, semée début mai, et récoltée fin septembre a eu une hauteur maximale d'environ 2,5 m en août (graphique du haut de la figure 15). Le sol était ensuite recouvert des résidus de culture (maïs récolté en grain) pendant environ 3 semaines. Enfin une culture de blé a été semée fin octobre après un travail du sol superficiel.



Figure 15. Evolution journalière médiane des conductances stomatiques (g_s^{O3}) en vert et des conductances de surface (g_c^{O3}) en rouge pour l'ozone pour chaque mois de l'année. Sur le graphique du haut est également donnée l'évolution annuelle de la hauteur du couvert (h_c) . Sur chaque graphe est donné le pourcentage de données valides utilisées pour estimer la médiane de g_c^{O3} . En mai trop peu de données sont disponibles pour estimer g_c^{O3} .

La Figure 15 montre l'évolution horaire médiane des conductances de surface et des conductances stomatiques pour l'ozone pour chaque mois à partir d'avril 2005. On voit que la conductance de surface (g_c^{O3}) est toujours supérieure (en valeur médiane) à la conductance

stomatique indiquant donc une voie de dépôt non stomatique de l'ozone qui peut être du dépôt sur le sol ou sur les surfaces externes des plantes. Dans la phase de croissance rapide du couvert de maïs (juillet), le dépôt d'ozone diurne semble uniquement dû au dépôt stomatique. En revanche il existe tout au long de l'année un dépôt nocturne non nul.

Evolution annuelle des flux et des concentrations d'ozone.

Les conductances de surface et du couvert pour l'ozone ne donnent toutefois qu'une indication sur l'impact potentiel de l'ozone sur les plantes. En effet, pour qu'il y ait impact sur les plantes il faut qu'il y ait concomitance entre de forts flux d'ozone et la présence de végétation. La Figure 16 montre les flux F_{O3} et les concentrations d'ozone $[O_3]$ (avec $F_{O3} = V_d^{O3} \times [O_3]$) en médianes, minimums et maximums mensuels. On s'aperçoit que les pics de concentration d'ozone ont été plus forts en juin qu'en juillet mais que les flux d'ozone ont eux été équivalents en juin, juillet et août (maximums et médianes).



Figure 16 : Flux et concentration d'ozone : médianes et extrema mensuels. La hauteur du couvert est également reproduite afin de visualiser les périodes de plus forts risques pour le couvert

La Figure 17 montre le flux total et le flux stomatique d'ozone cumulé en g m⁻². On voit que la quantité d'ozone absorbée par la surface croît de manière relativement constante entre juin et décembre mais que la fraction absorbée par la plante qui représente une grande partie de la quantité absorbée en fin de période culturale (plus de 80% en septembre), ne représente plus que 70% du cumul des dépôts fin décembre. Ainsi la part des dépôts non-stomatiques d'ozone augmente logiquement en hiver.



Figure 17. Flux total et flux stomtatique d'ozone cumulés sur la période de croissance du couvert de maïs.

1.5. Conclusions et perspectives

La principale difficulté rencontrée dans ce projet a donc été l'impossibilité de trouver des analyseurs rapide d'ozone fiables et avec des délais de livraison raisonnables. La solution envisagée au départ n'est plus possible aujourd'hui. Cela nous a amené à trouver des solutions alternatives et a retardé l'équipement de nouveaux sites.

Un travail plus conséquent que prévu au départ, mais qui sera très utile pour la suite de ce projet, a été conduit sur des procédures de traitement automatisé des données de turbulence, avec une attention particulière sur la correction de l'atténuation des données due au passage dans les tubes de prélèvement pour les analyseurs déportés tels que les analyseurs rapides d'ozone. De la même manière, le travail de comparaison et de vérification des analyseurs disponible s'est révélé plus long que prévu initialement, mais strictement indispensable. Il aura permis en outre d'acquérir une réelle expertise dans la mise au point de ce type d'analyseur qui sera très utile pour la suite de ce projet.

D'une part pour des suivis de flux d'ozone, d'autre part pour les expériences de comparaison, les analyseurs disponibles ont largement été utilisés depuis le début du projet, permettant d'acquérir des séries de données originales qui ont pu, d'ores et déjà, être utilisées pour améliorer nos paramétrisations et modèles de dépôt d'ozone. Ces résultats pourront être utilisés dans le cadre de la thèse de M.-N. Rolland dont le sujet rentrait dans le cadre général du projet GESBiO3 pour l'intégration à l'échelle régionale.

A l'échéance de ce contrat, les deux résultats les plus marquants sont la **disponibilité à court terme de nouveaux analyseurs rapides d'ozone** et l'**acquisition de séries longues de données de dépôt d'ozone sur des couverts végétaux de caractéristiques variées**. Cela devrait permettre à la communauté scientifique de progresser dans la mesure et la paramétrisation des dépôts d'ozone sur les surfaces naturelles.

Pour ce qui concerne le programme GICC-2, nous n'avons pas prévu de demande de financement nouvelle à court terme pour la suite de ce projet, mais il devrait toutefois se poursuivre dans le cadre d'autres projets, le projet GESBiO3 ayant en cela contribué à initier la mise en place d'un réseau de mesure des dépôts d'ozone sur différents écosystèmes. Au delà de la poursuite des actions en cours (suite des mesures sur les deux sites existants, traitement du signal et des données de flux, paramétrisation des dépôts, ...), les priorités seront l'évaluation des nouveaux analyseurs rapides fabriqués par Sextant Technology Ltd. (automne 2006 - hiver 2007) (voir Annexe 1) et, lorsque cette première étape sera achevée, la mise en place d'analyseurs sur d'autres sites sur prairie (Lusignan), forêts de chênes (Fontainebleau) et de hêtres (Hesse).

1.6. Bibliographie

- Aubinet, M., A. Grelle, A. Ibrom, U. Rannik, J. Moncrieff, T. Foken, A. S. Kowalski, P. H. Martin, P. Berbigier, C. Bernhofer, R. Clement, J. Elbers, A. Granier, T. Grunwald, K. Morgenstern, K. Pilegaard, C. Rebmann, W. Snijders, R. Valentini, and T. Vesala. 2000. Estimates of the annual net carbon and water exchange of forests: the EUROFLUX methodology. Advances in Ecological Research, 30.
- Cellier et al. (18 co-auteurs). Projet *BIOPOLLATM*: biosphere et pollution atmosphérique en zone rurale et périurbaine. Rapport de fin de contrat ADEME 02 62 030. 130 pages.
- GIEC, 2001. Bilan 2001 des changement climatiques: les elements scientifique. Rapport du groupe de travail 1 du GIEC. 97 pages.
- Güsten, H., Heinrich, G., 1996. On-line measurements of ozone surface fluxes: Part I. Methodology and instrumentation. Atmos. Environ., 30(6), 897-909.
- Foken, T., F. Wimmer, M. Mauder, C. Thomas, and C. Liebethal. 2006. Some aspects of the energy balance closure problem. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 6:3381-3402.
- Lamaud E., Loubet B., Irvine M., Fléchard C., Zurfluh O., Cellier P., 2005. Measurements and modelling of ozone deposition over a maize crop. First ACCENT Symposium, Urbino, Italy, 12-16/09/2005 (poster + résumé).
- Lenschow D.H., Raupach M.R., 1991. The attenuation of fluctuations in scalar concentrations through sampling tubes. Journal of Geophysical Research, vol. 96: 15259-15268.
- Monteith, J. L., and M. H. Unsworth. 1990. Principles of Environmental Physics. 2 ed. Arnold, New York.
- Webb E.K., Pearman G.I., Leuning R., 1980. Correction of flux measurements for density effects due to heat and water vapour transfer. Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society, 106(447) : 85-100.

Rapports et publications issues de ce projet

Publications dans des revues à comité de lecture (en préparation)

- Lamaud E., Loubet B., Irvine M., Cellier P., 2006a. Non-stomatal ozone deposition over maize, wheat-straw and coniferous forest in dry and wet conditions. A soumettre à *Atmospheric Environment*.
- Lamaud E., Loubet B., Irvine M., Cellier P, 2006b. Ozone deposition over a maize crop : characterization of stomatal and non-stomatal processes. A soumettre à *Atmospheric Environment*.
- Fowler D., Coyle M., Loubet B., Cieslik S., Duyzer J., Grünhage L., Gerosa G., Cape J.N., Cellier P., Tuovinen J.-P., Ammann C., Paoletti E., Burkhardt J., Altimir N., Lamaud E., Ashmore M., Sanderson M., Sitch S., 2007. A review of current understanding of the relative importance of stomatal and non-stomatal sinks for ozone deposition to canopies of vegetation (en préparation pour J. Geophys. Res.)

Colloques

- Cellier P., Loubet B., Zurfluh O., Larmanou E., Irvine M., Lamaud E., 2005. Long term monitoring of pollutants and greenhouse gases over cropland, grassland and forests. 2nd CarboEurope Meeting, Dublin (IR), 10-13/01/2005. (poster)
- Cellier P., Dizengremel P., Castell J.F., Lamaud E., Loubet B., Personne E., Serça D., Bethenod O., Biolley J.P., Chartier M., Chelle M., Cortinovis J., Delacote E., Delon C., Irvine M., Lebard S., Leitao L., Le Thiec D., Roche R., Tuzet A. - 2005 - Dépôt d'ozone sur un couvert végétal: Mécanismes et conséquences. Résultats du projet Biopollatm. *ECCO Ecosphère Continentale*, Vauclin M. (ed.), 1er Colloque de restitution Scientifique, Toulouse, 05-07/12/2005, 151-156.
- Irvine M., Larmanou E., Loubet B., Lamaud E., Zurfluh O., Cellier P., 2005. Continuous measurements of O3 fluxes by covariance over forest and arable cropland in France. ACCENT-BIAFLUX Workshop "Trace gas and aerosol flux measurement techniques, Roskilde (DK), 6-8/04/2005. (poster + résumé)
- Lamaud E., Loubet B., Irvine M., Fléchard C., Zurfluh O., Cellier P., 2005. Measurements and modelling of ozone deposition over a maize crop. First ACCENT Symposium, Urbino, Italy, 12-16/09/2005 (poster + résumé).
- Lamaud E., Loubet B., Irvine M., Cellier P., 2006. Measurement and modelling of ozone deposition over a maize field. ACCENT-BIAFLUX ozone flux workshop. Grignon (France), 11-12 July 2006 (oral presentation).
- Larmanou E., Loubet B., Zurfluh O., Cellier P., 2006. Continuous measurements of CO2, H2O, O3 fluxes by covariance over arable land in France. CarboEurope summer school on "Eddy covariance flux measurements", Namur (Belgium), 10-21 July 2006 (poster).
- Loubet B., Irvine M., Lamaud E., Larmanou E., Fléchard C., Zurfluh O., Cellier P., 2005. Comparison of O3 fluxes measured with eddy covariance and the gradient methods above a maize field. ACCENT-BIAFLUX Workshop "Trace gas and aerosol flux measurement techniques, Roskilde (DK), 6-8/04/2005. (poster + résumé)
- Loubet B., Personne E., Compagnon E., Cellier P., 2005. SurfAtm-O3: a two-layer SVAT model for ozone and heat including within canopy chemistry with NOx. Validation over maize. First ACCENT Symposium, Urbino, 12-16/09/2005 (poster + résumé)

Rapports de stage

- Compagnon E., 2005. Analyse et modélisation du dépôt d'ozone sur un couvert végétal, exploitation des données BioPollAtm 2002 et validation du modèle Surfatm. Stage de fin d'études. Master 2-recherches de Sciences et Technologies INA-PG, Université Paris VI. 43 pp.
- Poirier O. 2005 L'impact de l'ozone sur la photosynthèse d'un couvert de blé. Rapport de Stage, IUT Digne les Bains, Génie Biologique option Agronomie, UMR INRA INAPG Environnement et Grandes Cultures de Grignon, 49 p.
- Rocher V. 2005 Effets de l'ozone sur la photosynthèse et la conductance stomatique d'un couvert de blé. Mémoire de stage, Maîtrise de biologie cellulaire et physiologie, Université Paris 7, UMR INRA INAPG Environnement et Grandes Cultures de Grignon, 18 p. + figures et annexes.
- Abdelouhab M. 2006 Quantification du dépôt d'ozone non stomatique sur un couvert de maïs et de blé. Mémoire de Master de Physique et Environnement, Université Paris 11, UMR INRA INAPG Environnement et Grandes Cultures de Grignon, 30 p.
- Domergue-Schmidt I. 2006 Suivi d'un dispositif expérimental de mesures de flux de polluants (NOx, O3) entre une parcelle agricole et l'atmosphère et mesures associées.
 Rapport de Stage de Master 1, Physique et Applications, Université Pierre et Marie Curie Paris, UMR INRA INAPG Environnement et Grandes Cultures de Grignon, 18 p.
- Ged G. 2006 Suivi d'un dispositif de mesure de flux de polluants entre l'atmosphère et une parcelle agricole. Rapport de Stage de Master 1, UMR INRA INAPG Environnement et Grandes Cultures de Grignon, 11 p.

Annexe 1 : description de l'analyseur rapide d'ozone



New Zealand

Ph:+64(0)4 976 4227

Wellington le 16/05/2006

Contact : Dominique Filippi d.filippi@sextant-technology.net

Introduction

Sextant Technology Ltd développe depuis début 2006 un analyseur d'ozone rapide qui peut répondre aux besoins instrumentaux de l'INRA pour la mesure des dépôts d'ozone sur les surfaces naturelles. Cet analyseur nommé Fast Ozone Analyser fonctionne sur une réaction chemi-luminescente entre l'ozone contenu dans l'échantillon d'air et une pastille de Coumarin. Lors de cette réaction, des photons sont émis dans le visible. Le nombre de photons émis est directement proportionnel au nombre de molécules d'ozone réagissant avec le Coumarin. La détection de ces photons est effectuée par un photomultiplicateur.

Description du Fast Ozone Analyseur

Topologie de l'instrument



Le Fast Ozone analyseur se compose d'une sonde de mesure et d'une centrale d'acquisition. La sonde est constituée d'un boîtier étanche IP67 dans lequel est montée la cellule de mesure et son électronique d'acquisition, ainsi que les éléments nécessaires au prélèvement de l'échantillon (pompe, vanne, débitmètre, filtres...)

La sonde de mesure est reliée a la centrale d'acquisition via un unique câble servant a la fois a l'alimentation électrique de la sonde ainsi qu'a la communication entre ses deux unités via un réseau de terrain de type Controled Area Network.

La centrale d'acquisition a pour utilité de transmettre à l'utilisateur les signaux mesurés par la sonde de mesure sous les formes suivantes : trame de donnée série RS232, signaux analogiques reconstitués et affichages des données sur un écran LCD.

Sonde de mesure

La sonde contient une cellule de mesure étanche à la lumière où a lieu la réaction entre l'ozone et une pastille de Coumarin. Le photomultiplicateur est disposé à la verticale de cette pastille. Une fenêtre optique en fused silica traitée anti-reflet assure l'étanchéité de la cellule de mesure. Les éléments de la cellule sont fabriquées en aluminium pour assurer un bon équilibre thermique dans l'ensemble de la cellule. Leurs faces internes sont traitées au téflon PFA afin de minimiser les réactions entre l'ozone et les surfaces.

La pastille de Coumarin est introduite dans la cellule grâce a un bouchon étanche qui se visse dans le corps de la cellule. Il est à noter qu'un dispositif électronique déconnecte le photomultiplicateur lors d'un changement de filtre ou lorsque le boîtier est ouvert afin de protéger le photomultiplicateur contre toute destruction irrémédiable.



Figure 1 - Vues éclatées de la cellule de mesure

L'étage de mesure met en oeuvre le photomultiplicateur H7826 de Hamamatsu aux performances accrues. Le signal produit par le PM est conditionné et filtré à l'aide d'amplificateurs opérationnels à très faible bruit et stables thermiquement (AD549LH pour la conversion courant/tension, INA114 et AD8674 pour l'amplification et le filtrage).

Après ajustement de l'offset et du gain (réglable par l'utilisateur), le signal est filtré par un filtre passe-bas de Salen Key du 3^{ème} ordre coupant à 500Hz. L'acquisition est confiée à un convertisseur analogique/numérique 24bits Sigma/Delta modèle AD7714ARZ. Un deuxième filtrage passe-bas est réalisé cette fois-ci numériquement par ce convertisseur analogique/numérique à une fréquence de 10Hz (réglable par l'utilisateur).

La cellule de mesure est équipée d'une sonde thermique de type PT1000 et d'un orifice placé légèrement en aval, pour la mesure de la pression (capteur optionnel). Ces informations aussi échantillonnées par le convertisseur analogique/numérique, peuvent être utilisées pour corriger les dérives de l'instrument.

Le débit d'air prélevé est ajusté manuellement à l'aide d'une vanne pointeau. La mesure du débit est réalisé a l'aide d'un débitmètre numérique de type Honeywell 3100 placé en aval de la sonde. Le débit maximum lisible par le débitmètre est de 11/min.

Enfin pour éviter tout problème de condensation dans la cellule, cette dernière est équipée sur ses parois externes de dalles chauffantes qui peuvent être sollicitées en Pulse Width Modulation selon plusieurs stratégies de régulation.

Concernant la réalisation de l'électronique, il est à noter que le boîtier et l'électronique sont traités de manière à minimiser au maximum les perturbations électromagnétiques. Cela comprend le blindage du boîtier avec de la peinture métallisée, l'utilisation de filtres et un routage équipotentiel du circuit avec séparation des plans de masse analogiques et numériques.



Figure 2 - Vue d'ensemble de la sonde de mesure

Centrale d'acquisition

La centrale d'acquisition permet de réaliser l'interface entre la sonde de mesure et l'utilisateur.

Une fois réceptionnées par la centrale d'acquisition, les données sont transmises à l'utilisateur sous différentes formes:

- Les données sont affichées sur un écran LCD à fort contraste, à une fréquence de 2Hz. Il est possible d'afficher simultanément soit la concentration d'ozone et le débit de gaz, soit la température et la pression. La sélection de l'affichage se fait simplement par action d'une roue codeuse.
- Sous forme d'une trame série via le port RS232. Les paramètres sont envoyés à une fréquence spécifiée par l'utilisateur. La trame ASCII se présente simplement sous la forme : « COUNTER, TEMP,PRESSION,DEBIT,OZONE » La valeur COUNTER est incrémentée à chaque acquisition et varie de 0 à 255. Les autres paramètres représentent les valeurs de conversions du convertisseur codées sur 24bits.
- Ou bien sous forme de tensions analogiques grâce a l'utilisation de convertisseurs numérique/analogique 16bits. Il est à noter que, dans ce cas, le signal se retrouve de fait dégradé car la résolution de 24bits du convertisseur analogique/numérique ne peut être conservée.

L'interface utilisateur permet à ce dernier de configurer l'instrument selon son souhait : port série, fréquence d'acquisition 1Hz, 2Hz, 5Hz, 10Hz, stratégie de régulation de température. Dans ce dernier cas on peut envisager 4 modes de régulations: dalles chauffantes toujours allumées, dalles chauffantes toujours éteintes, régulation PID (la consignes est fixée par l'utilisateur sur la centrale d'acquisition), régulation externe qui permet au PC utilisateur d'envoyer une tension de commande aux dalles chauffantes. Cette solution permet à l'utilisateur de développer la stratégie de son choix (par exemple mise en oeuvre des dalles chauffantes uniquement la nuit, PID, logique floue...)

Outre l'interfaçage, la centrale d'acquisition alimente en basse tension 24VDC la sonde de mesure. A cet effet la centrale d'acquisition contient une alimentation industrielle à découpage filtrée et protégée des surtensions, fonctionnant sur le secteur de 110VAC à 240VAC 50Hz/60Hz.

Spécifications du Fast Ozone Analyser

Type : Détection chimie-luminescente Dimension de la sonde de mesure: 260mm x 185mm x 91mm Dimension de la centrale d'acquisition: 280mm x 190mm x 180mm Poids : a déterminer Alimentation centrale d'acquisition: 110VAC a 240VAC 50HZ/60HZ Consommation centrale d'acquisition : 10W min - 60W max Alimentation sonde de mesure : 24VDC (alimentation assurée par la centrale d'acquisition) Consommation centrale d'acquisition : 5W min - 55W max Fréquence d'échantillonnage : 1Hz, 2Hz, 5Hz, 10Hz Temps de réponse réel de l'instrument à 11/min: à déterminer Précision : à déterminer Accuracy : non déterminable sans un standard d'ozone. Bruit typique sur le signal : a déterminer pour 10Hz 5Hz 2Hz 1Hz Dérive de la ligne de base en fonction de la température : à déterminer Dérive du gain en fonction de la température : à déterminer Sorties analogiques : 0 a 5V filtrées, avec impédance de charge de 10k^Ω minimum Mesure du débit : de 0 a 2l/min a +/- 5%

Annexe 2 : procédures d'acquisition et traitement des données

Acquisition et prétraitement des données de turbulence

Les données brutes mesurées pour calculer les flux par la méthode des corrélations ne pouvant être interprétées directement (8 valeurs mesurées à 10-50 Hz), nous avons développé un logiciel d'acquisition et de prétraitement des données qui permet de faire un diagnostic en temps réel du fonctionnement du système et, en partie au moins, de la qualité des données. Ce logiciel a été développé sous LabView et remplit les fonctions suivantes :

- Ce logiciel a été developpe sous Labview et remplit les fonctions suivantes :
- contrôle des instruments (anémomètre sonique, analyseur de CO2/H2O, ozone, autres)
- acquisition d'un signal haute fréquence (plusieurs dizaines de Hz) sur plusieurs capteurs simultanément et stockage des données sur des fichiers à périodicité définie par l'utilisateur (typiquement 30 minutes) selon les formats standards utilisés dans des projets internationaux tels que CarboEurope-IP
- visualisation en temps réel des données brutes permettant de vérifier le bon fonctionnement des différents capteurs (voir figure A2.1)
- calcul des valeurs moyennes des différents variables (figure A2.2) et des statistiques élémentaires (moyenne, moments d'ordre 2 à 4)
- calcul des flux (quantité de mouvement, chaleur, H2O, CO2 et ozone) (figure A2.3) (cette procédure n'est qu'un premier calcul donnant une valeur approchée du flux en vue du contrôle du fonctionnement du système ; le flux définitif validé est calculé ultérieurement suivant la procédure décrite dans la deuxième partie de cette annexe



Figure A2.1 : écran de visualisation des données mesurées en ligne. La vraisemblance des données est indiquée par l'allure générale des différents signaux et leur cohérence (voir en particulier les analogies entre les mesures de température, H2O, CO2 et, dans une moindre mesure, ozone et vent vertical, W)



Figure A2.2 : écran de visualisation des valeurs moyennes calculées en ligne. Ces valeurs sont soit des variables de bases, soit des valeurs calculées (vent horizontal,, direction du vent, longueur de Monin)



Figure A2.3 : écran de visualisation des flux calculés en ligne.

Comparé à d'autres logiciels actuellement utilisés dans différents réseaux de suivi des flux, le nôtre présente les valeur ajoutées suivantes, qui ont justifié son développement :

- visualisation en temps réel des données brutes mesurées
- pré-calcul et visualisation des flux permettant un contrôle de fonctionnement du système
- possibilité de gérer et synchroniser plusieurs capteurs indépendant (en cours d'achèvement)

Ce logiciel sera implanté sur plusieurs des sites de notre réseau de suivi des flux d'ozone (à définir avec les gestionnaires de chaque site selon leurs habitudes de travail et souhaits d'évolution).

Traitement des données de turbulence pour le calcul des flux

Le passage des données brutes (mesures de fluctuations à 10-50 Hz) aux flux demande d'effectuer un traitement du signal (calculs des angles de rotation des composantes du vent par rapport à un repère orthonormé normal à la surface et des délais entre capteurs) et d'effectuer un tri sur les données (contrôle qualité), celles-ci pouvant être affectées par le fonctionnement du capteur ou les conditions météorologiques.

Pour aboutir à un traitement moins fastidieux et surtout plus objectif, nous avons développé une chaîne de traitement sous MatLab® qui est schématisée dans la figure A2.4 ci-dessous :



Figure A2.4 : chaîne de traitement des données pour le calcul des flux

Le logiciel réalise les opérations suivantes :

- Etape 1 : Calcul des moyennes des vitesses de vent selon les 3 axes (U, V, W) par pas d'une demi-heure.
- Etape 2 : A partir des vitesses moyennes de vent, détermination des périodes de "planar fit" (de l'ordre de quelques mois). Durant une période de planar fit les coefficients de planar fit sont constants. Ceux-ci changent lorsque le système de mesure est modifié (déplacement du mât, ajout d'un instrument qui perturbe l'écoulement d'air...)
- Etape 3 : Calcul pour chaque période de planar fit des coefficient de planar fit.

- Etape 4 : Effectue une rotation des vecteurs vitesses de vent en utilisant les coefficients de planar fit. Calcul le lag (écart de temps entre la mesure de l'anémomètre sonique et celle de l'analyseur de gaz) pour chaque gaz analysé.
- Etape 5 : A partir des lags, détermination des périodes de "lag" (de l'ordre de quelques mois). Durant une période le lag évolue de manière prévisible (constant, linéaire en fonction du temps...). Il y a changement de période lorsque le lag change brutalement (changement d'un filtre, modification de la longueur d'un tube...).
- Etape 6 : Filtre le lag pour chaque période de lag, et corrige les lags incorrects à partir des données correctes.
- Etape 7 : Effectue une rotation des vitesses de vent en utilisant les coefficients de planar fit. Synchronise les différentes mesures à partir du lag corrigé. Calcul des covariances.

Ce logiciel permet donc de

- déterminer automatiquement les périodes de rotation et calculer les coefficients du « planar fit » (étapes 2 à 4) (la méthode du « planar fit » maintenant préconisée dans le projet CarboEurope-IP)
- déterminer automatiquement les périodes de lag « homogène » et interpoler les lags incorrects (étapes 5 et 6)
- calculer les flux (étape 7)
- calculer les spectres pour chaque période de calcul (30 minutes) en vue de traitements ultérieurs

Des exemples de résultats de la détermination du planar-fit sont donnés dans les figures A2.5 et A2.6



Figure A2.5 : angle de rotation de l'anémomètre sonique pour différentes périodes, déterminé par notre logiciel sous MatLab®



Figure A2.5 : angle de rotation de l'anémomètre sonique pour une période de 5 mois et ajustement d'une transformée de Fourier d'ordre 10 sur ces données

La figure A2.6 montre l'évolution au cours du temps des délais entre l'anémomètre sonique et l'analyseur d'ozone. Le saut brutal vers le 6 septembre correspond à un changement de débit de la pompe d'aspiration, suite à un réglage manuel. On observe pour chacune des période, d'une part une augmentation régulière du délai due à une baisse progressive du débit de la pompe, d'autre part des variations journalières du débit (amplitude de 5-10% du débit) causées vraisemblablement par les variations de température (variations de viscosité et de masse volumique de l'air).



Figure A2.6 : délai (lag) calculé entre les mesures de l'anémomètre sonique et l'analyseur d'ozone rapide.



Figure A2.7 : spectres calculés pour les différentes variables mesurées

La figure A2.7 montre des exemples de spectres calculés pour les différentes variables mesurées sur le dispositif expérimental. Elle met bien en évidence les problèmes rencontrés à haute fréquence avec l'analyseur d'ozone, en raison du temps de réponse de l'appareil et de l'atténuation des fluctuations du signal dans les tuyaux de prélèvement (cf partie 1.2 de ce rapport).

Procédures automatiques de tri des données

En amont du traitement des données en vue du calcul des flux, nous avons également mis au point des procédures automatiques sous MatLab® destinées à éliminer les données aberrantes. Cela s'applique pour le moment aux données de l'analyseur CO2/H2O open path LI7500, qui ne donne pas de données correctes lorsque le capteur est mouillé, après une pluie ou une rosée. La figure A2.8 donne un exemple d'épisode de mauvais fonctionnement. Ces périodes de mauvais fonctionnement représentent environ 30% du temps sur le site de Grignon. Une telle procédure automatique permet de diminuer considérablement le temps passé au traitement et tri des données et à terme, la qualité des données.



Figure A2.8 : exemple de mauvais fonctionnement de l'analyseur CO2/H2O lors d'un épisode pluvieux.

Annexe 3 : modèle de dépôt d'ozone sur un couvert végétal

Schéma de principe du modèle d'échange

Le schéma d'échange pour l'ozone ainsi que celui utilisé pour estimer les flux stomatiques d'ozone est représenté sur la Figure 15. Le schéma pour le flux de vapeur d'eau et pour le flux de chaleur sensible est un schéma de type « grande feuille » qui ne tient pas compte des échanges avec le sol. C'est l'hypothèse classique, valide pour un couvert couvrant (Monteith and Unsworth, 1990).



Figure 15. Schéma de résistance permettant d'estimer la conductance stomatique à partir des mesures de flux de chaleur sensible (H) et latente (LE), et schéma général déchange pour l'ozone incluant un flux nonstomatique et un flux vers le sol qui dépend des résistances de transfert dans le couvert.

Calcul de la conductance de surface pour l'ozone g_c

La conductance de surface pour l'ozone g_c est défini par :

$$g_{c} = \frac{V_{d}(z_{ref})}{1 - (R_{a}(z_{ref}) + R_{b}^{O3}) V_{d}}$$
(A3.1)

où V_d est la vitesse de dépôt d'ozone, $R_a(z_{ref})$ est la résistance aérodynamique et R_b est la résistance additionnelle du couvert. Cette conductance de surface correspond à la somme des échanges stomatiques, non-stomatiques et vers le sol, et revient donc à considérer un schéma de résistance type grande feuille comparable au schéma pour le flux de chaleur sensible.

Calcul de la conductance stomatique du couvert pour l'ozone g_s

La conductance stomatique pour l'ozone est estimée avec à partir des équations suivantes :

$$T(z_{0'}) = T_a(z_{ref}) + (R_a(z_{ref}) + R_b^{Heat}) \frac{H}{\rho_a C_{pa}}$$
 (A3.2)

$$\chi_{s}^{H_{2O}} = \frac{e_{sat}(T(z_{0'})) M_{H_{2O}}}{R_{gas} T(z_{0'})}$$
(A3.3)

$$\chi^{\text{H2O}}(z_{\text{ref}}) = \frac{\text{RH } e_{\text{sat}}(\text{T}_{a}(z_{\text{ref}})) \text{ } M_{\text{H2O}}}{\text{R}_{\text{gas}} \text{ } T(z_{0'})}$$
(A3.4)

$$R_{s}^{H2O} = \frac{\chi^{H2O}(z_{ref}) - \chi_{s}^{H2O}}{E} - R_{a}(z_{ref}) + R_{b}^{H2O}$$
(A3.5)

$$R_{s}^{O3} = \frac{D^{H2O}}{D^{O3}} R_{s}^{H2O}$$
(A3.6)

$$g_s^{O3} = \frac{1}{R_s^{O3}}$$
 (A3.7)

où ρ_a et C_{pa} sont respectivement les masses volumiques et les capacités calorifiques à pression constantes de l'air, e_{sat}(T)est la pression de vapeur saturante à la température T, R_{gas} est la constante des gaz parfaits, $M_{H2O} = 18$ g mol⁻¹ est la masse molaire de l'eau, D^{H2O} et D^{O3} sont respectivement les diffusivités moléculaires de la vapeur d'eau et de l'ozone dans l'air, χ_s^{H2O} et $\chi^{H2O}(z_{ref})$ sont respectivement les concentrations en vapeur d'eau dans la cavité sousstomatique et dans l'air, T(z_0 ') est la température dans le couvert (Figure 3), *H* est le flux de chaleur sensible et E est le flux de vapeur d'eau, RH est l'humidité relative de l'air et T_a sa température.

Lissage de la conductance stomatique par un modèle type Jarvis

L'estimation de la conductance stomatique à partir des équations (A3.1-7) et des données mihoraires donne des résultats bruités et incertains lorsque les flux l'un des termes E, H ou u_* est faible. Afin d'obtenir une conductance lissée et de compléter le jeux de données, un modèle empirique basé sur le modèle de conductance de Jarvis (1976) est utilisé :

$$R_{\rm s}^{\rm O3} = R_{\rm smin}^{\rm O3} \left(1 + \frac{S}{\rm R_g} \right) \tag{A3.8}$$

où *S* et R_{smin}^{O3} sont la pentes et la conductance stomatique minimale. L'équation (7) est une fonction asymptotique de R_g qui varie entre 0 pour $R_g = 0$ W m⁻² et R_{smin}^{O3} quand R_g tend vers l'infini. LA méthode de lissage est basée sur l'estimation des 2 paramètres R_{smin}^{O3} et *S*, par régression linéaire entre R_s^{O3} estimée par (A3.1-7) et $1 / R_g$, sur une période de >2 à 5 jours. Les données (R_g et R_s^{O3}) sont au préalables filtrées pour éliminer les valeurs aberrantes par un filtre récursif qui élimine les valeurs au-delà de 4.5 écart-types. Les valeurs telles que RH > 70% et les périodes de pluie sont également éliminées ainsi que les valeurs faibles de R_g < 50 W m⁻². Les périodes où la végétation est présente sont au préalables sélectionnées.

Annexe 4 : résumé du travail de thèse de M.-N. Rolland (avril 2006)

L'objectif principal de ce projet de thèse est de prédire les émissions de précurseurs d'ozone (NO_x, COV) et dépôts d'ozone, par les écosystèmes agricoles et forestiers en Ile de France et d'évaluer l'importance de ces sources et puits sur les concentrations d'ozone à l'échelle régionale pour différents scénarios. Les processus d'émission et de dépôt de ces polluants sont influencés par les facteurs climatiques et l'utilisation des terres. Les étapes de cette étude sont: (1) l'amélioration de la paramétrisation des émissions de NO_x et COV, et des dépôts d'ozone et la quantification de ces émissions grâce au couplage module d'émission et modèle de cultures ou d'écophysiologie et celle du dépôt d'ozone avec un modèle d'échange solatmosphère et (2) l'intégration de ces données dans un modèle de chimie transport atmosphérique rendant compte des transformations chimiques et des effets climatiques sur les polluants. Le sujet de thèse est lié au projet GESBIO 3, soutenu par le programme GICC phase 2 en 2003. Le sujet a pour ambition d'évaluer la contribution des zones agricoles et forestières dans le calcul de la contribution des gaz à effet de serre à l'échelle régionale en y incluant l'ozone. Ce travail est principalement un travail de modélisation, il repose sur des mesures faites à Grignon et du réseau de qualité de l'air d'Ile de France: Airparif. Différents types de modèles à échelle adaptée sont ou vont être utilisés: le modèle d'émission de NO (Laville et al., 2005), le modèle de culture CERES-EGC (Gabrielle et al. 2006) simulant la dynamique de la culture et du sol, le modèle d'écophysiologie CASTANEA (Université d'Orsay), le modèle méso-échelle CHIMERE (dynamique et chimie des polluants dans l'atmosphère) et le modèle d'échange sol-végétation-atmosphère SurfAtm (échanges de polluants dans le couvert végétal). L'étude est réalisée d'une échelle locale (processus d'émission et de dépôt des polluants) à une échelle régionale (transport et transformations chimiques des polluants).

Dans une première temps, les travaux ont porté sur l'optimisation des émissions de NO par les sols agricoles avec le modèle de culture CERES-EGC (Gabrielle et al. 2006) et dans une seconde, ceux concernant l'impact des émissions biogéniques de NO sur les concentrations de NO₂ et d'O₃ à l'échelle européenne avec CHIMERE (Schmidt et al. 2001).

L'importance des émissions de NO par les sols est clairement posée (projet GESBIO3-GICC2, IPCC). Aussi les mesures faites sur le site de Grignon ont montré que les taux d'émission de NO les plus importants avaient lieu quelques jours après fertilisation, soit des émissions maximales de 300 gN.ha⁻¹.jour⁻¹ en avril 2002 sur une culture de maïs. Le modèle CERES-EGC GICCNO a permis de simuler l'évolution temporelle des émissions de NO pour le sol de Grignon selon les conditions météorologiques (précipitations, température et humidité du sol), les pratiques agricoles (quantité et type de fertilisant, type de culture) et les conditions pédologiques (texture). L'activation et l'intensité des émissions de NO dépendent de ces facteurs environnementaux. La discrétisation du profil de sol dans CERES-EGC GICCNO ne prend pas en compte l'assèchement de la surface et l'interaction de cette surface avec des précipitations. Divers auteurs ont montré la présence de pulses de NO dans de telles conditions. Aussi l'implémentation d'une couche fine en haut du profil de sol a permis de mieux appréhender ces conditions climatiques. CERES-EGC GICCNO modifié répond de façon positive aux modifications des cycles de l'eau et de l'azote, les flux sont activés dès l'humectation de la surface du sol après une période de sécheresse. Les flux de NO sont fortement dépendants de la dynamique des facteurs environnementaux (température, humidité et concentration en ammonium) à la surface. Qualitativement les résultats sont très satisfaisants, quantitativement ils le sont moins.

Les travaux réalisés dans le cadre du projet GICC-1 ont permis de simuler l'évolution temporelle des émissions de NO, grâce à un inventaire des pratiques agricoles effectuées sur la France par région et grâce à l'introduction du facteur humidité dans le calcul du processus d'émission. Un deuxième volet de cette étude était de décrire l'évolution temporelle et spatiale des émissions biogéniques de NO et d'estimer leur impact sur les concentrations de NO₂ et d'O₃ à l'échelle européenne. Les résultats montrent une faible variabilité saisonnière des émissions biogéniques de NO avec l'algorithme GICCNO à la différence du modèle de Stohl. L'impact des émissions biogéniques de NO sur les concentrations d'O₃ n'est pas négligeable puisqu'il est de l'ordre de 0.5 à 2 ppb pour le mois de juin.