L'EVOLUTION DE LA COUCHE D'OZONE STRATOSPHERIQUE

Daniel Cariolle

Météo-France, CNRM

42, avenue Coriolis - 31057 Toulouse

(Cet article est paru dans la revue : Le Courrier ACP-CEE n° 133 mai-juin 1992, publiée par la Commission des Communautés Européennes, 200 rue de la Loi, 1049 Bruxelles, Belgique).

LE ROLE DE L'OZONE, SA DISTRIBUTION, SES SOURCES ET SES PUIITS

Grâce à sa propriété d'absorber le rayonnement ultraviolet solaire de courte longueur d'onde, l'ozone atmosphérique joue un rôle primordial dans la protection de la vie sur terre. La couche d'ozone constitue en quelque sorte le principal «bouclier» protecteur des cellules vivantes, et plus particulièrement de leur matériel génétique.

L'ozone est aussi un composant essentiel du climat car l'absorption du rayonnement ultraviolet solaire réchauffe la stratosphère entre 10 et 40 km d'altitude, et contribue à l'effet de serre dans la troposphère. Toute modification d'origine naturelle ou anthropique de la couche d'ozone aura donc des répercussions sur le climat et la vie à la surface de la terre.

La majeure partie de la couche d'ozone est située dans la stratosphère où 90% de la quantité totale d'ozone est concentrée. Cependant si l'on ramenait l'ensemble des molécules d'ozone rencontrées sur une colonne verticale à la pression et à la température du niveau du sol, la couche obtenue ne mesurerait qu'environ 3 mm d'épaisseur. La concentration est donc toujours relativement faible dans l'atmosphère et dépasse rarement la valeur maximale d'environ 5.10^{12} molécules.cm⁻³. Le maximum de la concentration d'ozone se situe vers 25 km d'altitude près de l'équateur pour descendre progressivement à 16 km aux pôles. Cette distribution résulte de l'existence de la cellule de Hadley, dont la branche ascendante tend à comprimer la couche d'ozone à l'équateur, tandis que les branches subsidentes transportent les masses d'air riches en ozone vers les hautes latitudes et les altitudes plus basses.

La principale source naturelle de l'ozone stratosphérique provient de la photodissociation de l'oxygène moléculaire par le rayonnement ultraviolet de très courte longueur d'onde (200 nm). Cette dissociation produit de l'oxygène atomique qui, par recombinaison, forme l'ozone. L'ozone est alors photodissocié ou se recombine avec l'oxygène atomique. Ce cycle, introduit par Chapman en 1930 permet d'expliquer la présence de l'ozone dans la stratosphère, mais les théories actuelles font jouer un rôle aussi important à d'autres espèces mineures qui contrôlent l'ozone par des cycles catalytiques : les radicaux hydroxylés, azotés et chlorés.

Les radicaux hydroxylés et azotés sont produits naturellement par oxydation de la vapeur d'eau et du protoxyde d'azote (N₂O), un gaz provenant de la dénitrification du sol. Les atomes de chlore sont quant à eux produits par la dissociation du chlorure de méthyle, d'origine naturelle, mais la principale source actuelle est la décomposition par photodissociation des chlorofluorocarbones (CFC), molécules produites par l'industrie chimique ayant des applications dans l'industrie du froid, des mousses expansées, des semi-conducteurs et employées encore très récemment comme propulseur dans les bombes aérosols.

La chimie complète de la stratosphère est en fait beaucoup plus complexe que le schéma simplifié décrit plus haut. Elle met en particulier en jeu un nombre important d'espèces dont les principales sont celles jouant un rôle de «réservoir» vis-

à-vis des radicaux actifs sur l'ozone. On distingue par exemple l'acide nitrique HNO_3 , le pentoxyde d'azote N_2O_5 , l'acide chlorhydrique HCl et le radical ClONO_2 . Au total il faut prendre en compte une cinquantaine de constituants liés par une centaine de réactions si l'on veut décrire d'une façon plus complète la chimie de la stratosphère. Seule la modélisation permet de résoudre numériquement ce système complexe, et de prédire la concentration des espèces mineures et l'évolution à long terme de la couche d'ozone.

C'est au début des années 1970 que les premières interrogations surgissent quant aux risques que feraient courir à la couche d'ozone les vols fréquents d'avions dans la stratosphère. En effet les réacteurs produisent des oxydes d'azote qui par action de cycles chimiques catalytiques détruisent l'ozone. Le projet de supersonique Concorde est alors mis en accusation; les premiers calculs théoriques prédisent une destruction de l'ordre de 20% de la couche sous l'effet d'une flotte d'une centaine d'avions par jour sur le trajet Europe Amérique. Heureusement ces sombres prévisions ne se sont jamais réalisées, la flotte de Concorde est restée très modeste, et des études sur la chimie de l'atmosphère ont conclu en 1977 qu'il existait des réactions importantes qui n'avaient pas été prises en compte dans les premiers calculs et qui conduiraient plutôt à une légère production d'ozone à l'altitude de vol du Concorde, vers 16 km.

Cependant dès 1985 il est apparu que l'analyse des mesures d'ozone recueillies depuis 1958 montrait une décroissance globale de la quantité totale d'ozone, décroissance plus marquée aux hautes latitudes qu'à l'équateur. Très tôt cette diminution a été attribuée au chlore issu de la décomposition des CFC. Les scientifiques avaient dès 1974 prédit une réduction progressive et quasi uniforme de la couche d'ozone due aux rejets dans l'atmosphère des chlorofluorocarbones. Mais depuis on assiste, en plus d'une tendance à l'échelle globale, à une réduction rapide et apparemment localisée à l'Antarctique : le fameux «trou d'ozone». Quelle en est l'origine exacte? Quelle sera son évolution dans les années à venir, que va-t-il se passer en Arctique? Et aux latitudes moyennes?

L'objectif de cet article est de dresser le bilan de l'état de nos connaissances, d'en souligner les limites et de décrire la stratégie que la communauté scientifique compte suivre pour les faire reculer.

LES TENDANCES ACTUELLES

La couche d'ozone stratosphérique a diminué d'environ 1% entre 1978 et 1991.

Ce résultat est basé sur les données du réseau de spectromètres ultraviolets Dobson de l'hémisphère Nord. Il est confirmé par les observations de l'instrument Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) à bord du satellite Nimbus 7 (voir tableau ci-dessous, source : Scientific assessment of Ozone Depletion, 1991).

Tendances de l'ozone total (% sur dix ans)					
Saison	TOMS1979-91			Réseau sol : 26° N-64° N	
	45° S	Equateur	45° N	1979-1991	1970-1991
déc.-mars	-5,2±1,5	+0,3±4,5	-5,6±3,5	-4,7±0,9	-2,7±0,7
mai-août	-6,2±3,0	+0,1±5,2	-2,9±2,1	-3,3±1,2	-1,3±0,4
sept.-nov.	-4,4±3,2	+0,3±5,0	-1,7±1,9	-1,2±1,6	-1,2±0,6

Dans l'hémisphère Sud la décroissance observée par TOMS est encore plus marquée et possède une variation saisonnière importante avec l'apparition du trou d'ozone au-dessus de l'Antarctique au printemps austral. Dans cette région il se crée durant la longue nuit polaire un vortex où les masses d'air sont très froides et restent relativement isolées des latitudes moyennes. Début septembre, à l'arrivée des premiers

rayons du soleil, l'ozone décroît rapidement, la diminution atteignant 50 à 60% à l'intérieur du vortex fin octobre. Ce scénario s'est reproduit pratiquement tous les ans depuis 1980, les années 1985, 1987, 1989, 1991 étant associées à la formation de minima d'ozone très marqués, entre 100 et 150 unités Dobson (voir figure 1). Il existe donc une modulation dans l'apparition de ce phénomène qui semble lié à l'oscillation quasi biennale présente dans la basse stratosphère.

TOMS OZONE TOTAL, 4 OCTOBRE 1990

Figure 1
Champ d'ozone mesuré par l'instrument
TOMS le 4 octobre 1990
(unités Dobson).
source : McPeters and Krueger,
NASA/GSFC

LE «TROU D'OZONE» AU-DESSUS DE L'ANTARCTIQUE ET SON EVOLUTION A MOYEN TERME

Dès 1985 l'attaque par le chlore libéré par les chlorofluorocarbones est la principale hypothèse avancée pour expliquer cette rapide décroissance de la couche d'ozone. D'autres causes possibles mettent en jeu un éventuel changement dans le transport de l'ozone des basses latitudes vers le pôle.

Une première campagne de mesure, appelée NOZE (National Ozone Experiment) mise sur pied en 1986 par la National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) à partir de la station de McMurdo en Antarctique, a permis les premières mesures dans le vortex polaire de constituants mineurs impliqués dans la chimie de l'ozone. Cette expérience a révélé la quasi-disparition de l'ozone sur une couche relativement mince entre 14 et 27 km, et la prépondérance de la chimie des chlores qui se traduit par une concentration anormalement élevée du radical OCIO.

Pour confirmer et élucider complètement le phénomène, la National Aeronautic and Space Administration (NASA), en coopération avec la NOAA, a organisé une vaste campagne de mesure durant les mois d'août et septembre 1987, regroupant des scientifiques américains des principaux laboratoires de la NASA et de la NOAA, anglais du Meteorological Office et français de Météo-France. En plus des moyens au sol déjà mis en œuvre lors de la campagne de mesure de 1986, des moyens aéroportés et satellitaires ont été utilisés. En particulier deux avions instrumentés basés à Punta Arenas à l'extrême sud du Chili, un ER2 (dérivé de l'avion U2) et un DC8, ont fourni des mesures d'un grand nombre d'espèces chimiques sur une gamme d'altitude et de latitude où la décroissance de l'ozone est maximale.

Cette année-là encore le «trou d'ozone» était au rendez-vous, les premiers signes d'une décroissance de l'ozone étant apparus début septembre. A la fin du même mois les contenus en ozone avaient atteint leur niveau le plus bas jamais enregistré : 120 unités Dobson contre environ 300 unités, contenu normal mesuré dans les années 1970. Les vols depuis Punta Arenas ont été un succès complet avec l'obtention d'un jeu de données dont l'analyse a demandé plusieurs années.

L'ensemble des résultats obtenus, et maintenant publiés dans la revue *Journal of Geophysical Research* des mois d'août et novembre 89 (plus de 60 articles), montre clairement que la chimie du chlore est bien la cause principale de la destruction de l'ozone, avec notamment des mesures de la concentration du radical ClO cent fois plus élevées que les mesures correspondantes des latitudes moyennes. Les conditions météorologiques extrêmes rencontrées dans le vortex polaire, avec des températures très froides qui avoisinent les -100°C et la présence de nuages stratosphériques polaires, semblent être autant de facteurs qui accentuent l'efficacité des cycles chimiques destructeurs d'ozone. En particulier la présence de particules de glace favorise les réactions hétérogènes qui conduisent à la libération du chlore actif Cl et ClO à partir du chlore contenu dans les espèces réservoirs HCl et ClONO₂.

L'analyse de l'évolution de la concentration de certains gaz à l'état de trace démontre aussi que l'hypothèse de la formation du minimum d'ozone polaire par une redistribution de la quantité d'ozone depuis le pôle vers les latitudes moyennes est elle aussi à écarter. Au contraire il faudrait plutôt craindre une «dilution» du trou d'ozone vers les moyennes latitudes.

ET L'ARCTIQUE ?

Une des questions soulevées par ces résultats est bien évidemment de savoir si un tel phénomène peut se produire dans l'hémisphère Nord. Fort heureusement dans notre hémisphère le vortex polaire d'hiver est décentré vers la Scandinavie et les masses d'air ont des trajectoires qui les amènent successivement dans le jour et la nuit polaire. Le résultat est que l'air contenu dans le vortex polaire est plus chaud d'environ 20°C en moyenne que dans l'hémisphère Sud, et qu'en conséquence les nuages polaires sont beaucoup moins fréquents.

Deux campagnes internationales baptisées CHEOPS II et III (CHEmistry of Ozone in the Polar Stratosphere) se sont déroulées pendant les hivers 88-89 et 89-90 à partir de la base de Kiruna (Suède). Des scientifiques du Service d'Aéronomie du CNRS, du Laboratoire de Météorologie Dynamique de Palaiseau, du Laboratoire d'Optique Atmosphérique de Lille, du Max-Planck Institut d'Heidelberg et du KFA de Jülich ont procédé à diverses mesures de constituants mineurs et de particules de glace à partir de ballons lancés par les équipes du Centre National d'Etudes Spatiales (CNES, France) avec le support des prévisions de température de Météo-France. Parallèlement une campagne en Arctique AASE-I (Airborne Arctic Stratospheric Expedition), symétrique de celle réalisée en Antarctique par la NASA, a eu lieu en janvier et février 89.

Les résultats de ces campagnes ont montré que la chimie du vortex de l'hémisphère Nord est également altérée, que les quantités de chlore actif ClO et OClO étaient d'ores et déjà importantes, mais que la réalité d'une diminution de l'ozone demandait encore à être confirmée. On a cependant noté l'existence de masses d'air où la concentration d'ozone était extrêmement basse, et l'on a pu dire que la couche d'ozone paraissait «mitée». Il semble cependant que la dénitrification du vortex n'ait pas été totale, ayant pour conséquence une limitation de l'efficacité des cycles catalytiques destructeurs d'ozone par formation rapide d'oxydes d'azote et réactions du type $\text{ClO} + \text{NO} \rightarrow \text{Cl} + \text{NO}_2$ lorsque les premiers rayons du soleil dissocient les molécules d'acide nitrique.

Pour répondre aux incertitudes qui subsistent sur l'étendue dans l'espace et le temps des processus conduisant à la destruction de l'ozone polaire, il a été décidé de conduire pendant l'hiver 91-92 une campagne de grande envergure : L'European Arctic Stratospheric Ozone Experiment (EASOE). Il s'agit de la plus importante campagne jamais mise sur pied au niveau européen; plus d'une cinquantaine d'équipes y ont participé avec des moyens d'observations depuis le sol, des ballons (depuis Kiruna, Suède), des avions (ARAT pour la France) et les satellites TIROS, TOMS et UARS. Débutée en novembre 1991 elle s'est achevée en mars 92. Cette campagne était financée par les pays membres (Allemagne, Angleterre, France, Italie, Norvège auxquels se sont joints CEI, Finlande et Suède) et sur fonds propres de la CEE. Pendant cette même période une campagne américaine EASOE-II a eu lieu depuis le nord du Canada.

Bien que plusieurs mois soient nécessaires pour interpréter les résultats, les premières analyses sont disponibles; elles confirment les enseignements des campagnes précédentes et font apparaître que :

- les quantités d'ozone en Arctique et aux latitudes moyennes ont été anormalement faibles durant toute la campagne,

- des quantités élevées d'aérosols provenant de l'éruption du Mont Pinatubo ont été détectées et sont susceptibles d'interagir avec la chimie de la stratosphère d'une manière similaire à celle des nuages polaires,

- les mesures de composés chlorés dans la basse stratosphère arctique indiquent que la plupart des composés issus des CFC se trouvent sous une forme active capable de détruire l'ozone avec un rythme pouvant atteindre les 2% par jour à l'altitude de 18 km,

- à cause de la météorologie de l'hémisphère Nord, les zones où la composition chimique de la stratosphère est perturbée s'étendent depuis le pôle jusqu'au nord de l'Angleterre et de l'Allemagne.

Ces résultats bien que préliminaires semblent donc confirmer que la décroissance significative de l'ozone, déjà enregistrée durant la dernière décennie, devrait perdurer et peut-être s'amplifier jusqu'à ce que le chlore injecté via les CFC soit inférieur à un certain seuil que l'on estime à 2 ppbv environ. Malgré la signature du protocole de Montréal, les quantités de chlore total (environ 3 ppbv à l'heure actuelle) doivent encore augmenter jusqu'à un niveau d'environ 4 ppbv à l'horizon 2000 puis passer au-dessous de la barre des 2 ppbv vers 2040, permettant aux cycles chlorés destructeurs de l'ozone d'opérer jusqu'à cet horizon.

De plus, la variabilité naturelle peut conduire à l'apparition d'une situation hivernale dans la stratosphère de l'hémisphère Nord très proche de celle rencontrée dans l'hémisphère Sud, avec un vortex très froid et des nuages polaires fréquents. Sans oublier l'influence indirecte des éruptions volcaniques qui injectent dans la stratosphère des particules pouvant jouer un rôle identique aux nuages polaires vis-à-vis de la chimie de la basse stratosphère. Nous ne sommes donc pas à l'abri de mauvaises surprises quant à l'évolution de l'ozone dans les hautes et moyennes latitudes de l'hémisphère Nord.

LES CONSEQUENCES DE LA DIMINUTION DE L'OZONE STRATOSPHERIQUE

L'augmentation du flux d'ultraviolet atteignant le sol serait la conséquence directe de la réduction de la couche d'ozone. Pour les êtres vivants ce sont les UVB (285-315 nm) qui sont les plus à craindre car ils peuvent induire des cancers de la peau et des mutations génétiques.

Figure 2
Variations simultanées
des UV-B
et du contenu total d'ozone
à Melbourne, Australie (38° S);
source : Roy et al., 1990, *Nature*,
347, 235-236.

Des analyses récentes montrent que lors des événements à forte réduction d'ozone, le flux ultraviolet est pratiquement doublé, en bon accord avec les calculs théoriques de transfert radiatif dans l'atmosphère (figure 2).

Cependant, les mesures systématiques du flux UV depuis les réseaux sol aux latitudes moyennes n'indiquent pas de tendance systématique sur la dernière décennie. Ce résultat, apparemment contradictoire avec la réduction observée de l'ozone stratosphérique sur la même période, s'explique par le fait que les UV, une fois la couche d'ozone traversée, subissent encore des réflexions et des absorptions par les aérosols et l'ozone troposphérique, ces derniers étant en constante augmentation du fait de l'accroissement de la pollution de fond de la troposphère.

La réduction de l'ozone dans la stratosphère aurait également pour conséquence une perturbation du bilan thermique et donc du climat dans la haute atmosphère. On a mis en particulier en évidence un refroidissement du plus de 10°C de la température à 20 km d'altitude en novembre au-delà de 70°S de latitude pendant la formation du «trou d'ozone» antarctique. C'est la conséquence directe de la réduction de l'absorption du rayonnement UV aux latitudes où l'ozone a été détruit en septembre avant le lever du soleil au pôle. Ce résultat est en bon accord avec les calculs des modèles de circulation générale, notamment celui développé par Météo-France, et montre donc que le climat des hautes couches de l'atmosphère est déjà altéré. Plus globalement au niveau troposphérique, la diminution de l'ozone dans la basse stratosphère devrait renforcer l'augmentation de l'effet de serre dû à l'accroissement des concentrations du gaz carbonique, du méthane et des CFC. Cependant de nombreuses incertitudes subsistent sur l'amplitude de cet effet additionnel.

CONCLUSION

Il ne fait plus de doute que la quantité d'ozone totale a globalement diminué pendant ces deux dernières décennies, et que la forte diminution observée aux hautes latitudes de l'hémisphère Sud, le trou d'ozone, doit être attribuée à l'effet du chlore provenant de la décomposition des chlorofluorocarbones. Le problème de l'évolution de la couche d'ozone a donc une double facette : le court et le moyen terme (les vingt prochaines années), et le plus long terme, vers les années 2050.

A court et moyen terme ce sont les processus de chimie polaire qui sont les plus préoccupants. La destruction de l'ozone des hautes latitudes de l'hémisphère Sud va-t-elle restée localisée? Va-t-elle atteindre les continents habités? Que va-t-il se passer dans l'hémisphère Nord? C'est par la conjonction des campagnes sur le terrain, des mesures satellitaires et de celles obtenues par les réseaux de mesure, des études de cinétique chimique en laboratoire, et de l'intégration de l'ensemble des données recueillies dans les modèles numériques que la communauté scientifique entend aborder ces problèmes.

Les moyens nécessaires sont importants et dépassent souvent le cadre national; la coopération européenne et internationale s'organise donc pour l'exécution concertée des programmes scientifiques.

A plus long terme les simulations des modèles prévoient une lente décroissance de l'ozone au niveau global avec un effet relatif important vers 40 km d'altitude. Cependant les éléments à prendre en compte sont multiples. On peut citer notamment les variations du flux solaire liées au cycle de 11 ans, l'augmentation puis la décroissance de la concentration atmosphérique des chlorofluorocarbones (si le protocole de Montréal est respecté), l'augmentation d'autres espèces sources de radicaux actifs dans la chimie de l'ozone (méthane, hémioxyde d'azote), l'altitude, la fréquence et la quantité d'aérosols injectés par les éruptions volcaniques, et l'augmentation du gaz carbonique conduisant à une décroissance de la température dans la stratosphère (l'opposé de l'effet de serre troposphérique). Ce dernier effet augmentant la production d'ozone dans la haute stratosphère, mais peut-être aussi la fréquence de nuages polaires en partie responsables de la formation du «trou d'ozone».

Comme on le voit les choses sont complexes et les interactions souvent non linéaires. La mise en place d'un système d'observation combinant les moyens spatiaux et les observatoires au sol est donc primordiale pour évaluer les tendances à long terme de l'ozone, valider les modèles prédictifs, et servir de système d'alerte précoce en cas de détérioration de la situation.

En tout état de cause, atteindre les objectifs fixés par la communauté scientifique appellera une forte coopération internationale. Cette coopération se met en place dans le cadre du Programme International Géosphère Biosphère (ICSU*) et du Programme Mondial de Recherche sur le Climat (ICSU et OMM). Elle demandera un effort soutenu, durant les prochaines décennies, de l'ensemble des pays impliqués.

(* ICSU :
International Council of Scientific Unions)