

UN NOUVEAU PROBLÈME POUR L'ENVIRONNEMENT GLOBAL : L'AUGMENTATION DE L'OZONE TROPOSPHÉRIQUE

GÉRARD MÉGIE

Résumé du rapport de l'Académie des Sciences
sur l'ozone et les propriétés oxydantes de la troposphère,
par Gérard Mégie, correspondant de l'Académie des Sciences,
responsable du groupe de travail.

Les problèmes de l'effet de serre additionnel et de la diminution de la couche d'ozone stratosphérique ont fait l'objet de nombreuses études et rapports de synthèse au niveau national et international. Un troisième problème d'environnement global émerge aujourd'hui au sein de la communauté scientifique, qui concerne l'augmentation de la concentration d'ozone et des photo-oxydants dans la basse atmosphère. Resté moins connu des décideurs et des médias, ce problème complexe met en jeu à la fois les mécanismes physico-chimiques et météorologiques, et ses conséquences directes concernent aussi bien les équilibres climatiques et les écosystèmes végétaux que la santé des populations.

Par ailleurs, dans la mesure où les principaux constituants impliqués dans l'augmentation des concentrations d'ozone à l'échelle globale sont les oxydes d'azote, émis principalement dans les pays du Nord par les transports, il importe de prendre rapidement en compte cette nouvelle donnée scientifique dans la définition des stratégies économiques de réduction des pollutions globales.

Le Comité de l'environnement et la section des sciences de l'univers de l'Académie des Sciences ont donc pris l'initiative de rédiger un rapport sur le problème de l'augmentation de la concentration d'ozone dans la troposphère. Un groupe de travail a été chargé de sa rédaction, et le rapport final vient de paraître

sous la forme d'un document de 250 pages intitulé "Ozone et propriétés oxydantes de la troposphère : Essai d'évaluation scientifique", paru aux Éditions Lavoisier. Il s'agit là du premier effort de synthèse d'un problème qui concerne toutes les échelles d'espace, de l'échelle des pollutions locales à celle de la Planète, dans un domaine scientifique en pleine évolution. C'est un résumé de ce rapport qui est présenté dans le texte qui suit.

L'accroissement démographique et le développement des modes de production industriel et agricole et des moyens de transport induisent depuis près de deux siècles un changement de la composition chimique en gaz traces de l'atmosphère. L'augmentation à des rythmes de l'ordre de quelques dixièmes de pour cents par an du gaz carbonique, du méthane, du monoxyde de carbone et plus généralement de tous les hydrocarbures, des oxydes d'azotes, des constituants soufrés et organo-halogénés, a trois conséquences principales sur les équilibres globaux de l'environnement terrestre. Deux d'entre elles, l'effet de serre additionnel et la diminution de la couche d'ozone stratosphérique ont fait l'objet de nombreuses études et rapports de synthèse au niveau national et international. La troisième, qui concerne l'augmentation de la concentration d'ozone et des photo-oxydants dans la troposphère, partie inférieure de l'atmosphère comprise entre le sol et une altitude de 10 à 15 kilomètres où s'effectue l'essentiel des activités humaines, est restée jusqu'à aujourd'hui moins connue des décideurs et des médias. Ceci tient largement à la complexité d'un problème, qui met en jeu à la fois

ABSTRACT : A new problem for global environment - the increase of tropospheric ozone

Demographic growth, industrial development, expansion of agricultural and transportation practices are inducing several global environmental problems. Among these, the additional greenhouse effect and the depletion of the stratospheric ozone layer have been assessed by several state-of-the-art scientific reports at the international level (WMO, UNEP, IPCC). A third global environmental problem is presently emerging in the scientific community, which concerns the increase in tropospheric ozone and photo-oxidants concentrations in the lower atmosphere. This problem is rather complex as it involves simultaneously the chemical and dynamical processes in the earth's troposphere, and as its potential consequences are of importance for the climatic balance through the radiative properties of ozone, and the ecosystems

stability and the population's health through its oxidizing properties. As the main constituents responsible for the observed increase at the global scale are the nitrogen oxides mainly emitted by the transportation activities in the northern hemisphere industrialized countries, such compounds should be taken into account in the global reduction of emissions of potential greenhouse gases. The french *Académie des Sciences* has recently issued a scientific report devoted to this particular problem. Published as a 250 pages book entitled *Ozone et propriétés oxydantes de la troposphère* by Lavoisier ed. (Paris), it includes a 25 pages english summary. It addresses the various problems related to the tropospheric ozone issue, including global and local aspects, atmospheric processes and potential consequences.

les mécanismes physico-chimiques et météorologiques, et dont les conséquences directes concernent aussi bien les équilibres climatiques et les écosystèmes végétaux que la santé des populations.

L'ozone, O_3 , est constitué des mêmes atomes que l'oxygène moléculaire O_2 . C'est un constituant très minoritaire de l'atmosphère terrestre, dont la concentration maximum, vers 25 km d'altitude ne dépasse pas quelques millionnièmes (ou ppmv) de la concentration totale. Les neuf dixièmes de l'ozone atmosphérique sont contenus dans la stratosphère, produits par le rayonnement solaire ultra-violet de courtes longueurs d'onde. Cette "source" naturelle est équilibrée par un ensemble de réactions chimiques complexes, aujourd'hui modifiées par les émissions anthropiques des chlorofluorocarbures, et à un degré moindre de méthane et des oxydes d'azote. Une partie de l'ozone ainsi formé à haute altitude pénètre dans la troposphère, du fait des échanges verticaux et horizontaux des masses d'air. À cette origine dynamique, se superpose une production directe d'ozone dans la basse atmosphère par photo-oxydation en présence d'oxydes d'azote de toute une série de précurseurs, composés organiques volatils, hydrocarbures, monoxyde de carbone, méthane. La fraction d'origine anthropique de cette source photochimique devient aujourd'hui de plus en plus importante.

Cette existence d'une formation photochimique d'ozone a été depuis longtemps mise en évidence dans les atmosphères urbaines et péri-urbaines des grandes cités fortement polluées (Los Angeles, Milan,

Athènes, Mexico, New-York...). L'ozone ainsi formé localement, contribue à l'augmentation des concentrations mesurées aux échelles régionale et globale. Les observations expérimentales en apportent la preuve. En effet, la comparaison des concentrations d'ozone mesurées à la fin du XIX^e siècle et au début du XX^e siècle dans plusieurs stations de l'hémisphère nord (Observatoire météorologique du Parc Montsouris à Paris, Observatoire du Pic du Midi dans les Pyrénées, Observatoire de Montecalieri en Italie) et de l'hémisphère sud (Montevideo en Uruguay, Cordoba en Argentine), avec celles mesurées aujourd'hui montrent que le niveau d'ozone dans l'atmosphère libre a été multiplié par quatre dans l'hémisphère Nord, et par près de deux dans l'hémisphère Sud. Ceci correspond à un taux de croissance régulier, supérieur à 1,5 % par an dans l'hémisphère Nord, qui reflète la dissymétrie dans la distribution des sources, plus de 80 % des précurseurs polluants étant émis dans l'hémisphère Nord et dans les régions tropicales.

La distribution spatiale et temporelle de l'ozone dans la troposphère est contrôlée par quatre processus principaux :

- la production photochimique qui résulte de l'oxydation de constituants précurseurs d'origine naturelle ou anthropique – méthane CH_4 , monoxyde de carbone CO , composés organiques volatils ou COV – en présence d'oxydes d'azote et de rayonnement solaire ;
- la destruction photochimique ;
- les échanges de masse d'air entre la stratosphère et la troposphère ;

■ la destruction à la surface terrestre et sur les plantes.

Les deux premiers sont directement influencés par les activités humaines et l'importance des différentes voies d'évolution chimique dans les mécanismes généraux de la pollution photo-oxydante dépend principalement de la concentration des oxydes d'azote NO_x . Lorsque la concentration relative en NO_x reste inférieure à quelques dizaines de pptv (parties par trillions soit un millième de milliardième de l'abondance totale), l'ozone est détruit. Lorsque la concentration relative des NO_x reste comprise entre quelques dizaines de pptv et quelques ppbv, l'oxydation de CO , CH_4 et des COV conduit par un mécanisme de réaction en chaîne à la production d'ozone. Compte tenu du niveau actuel de concentration des oxydes d'azote dans l'atmosphère, l'expérience montre que les atmosphères les plus reculées observables sur Terre, correspondent à une zone de transition entre ces deux cas. L'importance relative de la production d'ozone dépend alors de la proximité des sources continentales d'oxydes d'azote et de la présence d'hydrocarbures. Il importe d'ailleurs de constater que, la végétation étant également une source de composés organiques volatils, des niveaux "naturels" d'ozone très élevés peuvent être observés dans les zones de forte productivité biogénique. Enfin, lorsque la concentration relative des NO_x est supérieure à quelques ppbv, les réactions d'oxydation se ralentissent et les oxydes d'azote deviennent alors des inhibiteurs de la production d'ozone. Ceci explique notamment que dans les atmosphères polluées, les concentrations les plus élevées d'ozone soient observées, non pas au centre de la zone polluée où les concentrations en oxydes d'azote et en hydrocarbures sont les plus importantes, mais plutôt sous le vent des grandes agglomérations à des distances de plusieurs dizaines de kilomètres.

Méthane, monoxyde de carbone, composés organiques volatils et oxydes d'azote sont donc directement impliqués dans la production photochimique de l'ozone dans la troposphère. Or, tous ces constituants ont des sources à la fois naturelles et anthropiques.

Pour le méthane et le monoxyde de carbone, on estime actuellement la contribution anthropique à près des deux tiers des émissions annuelles totales de ces constituants dans l'atmosphère. Pour le premier, il s'agit principalement de sources liées aux pratiques agricoles et à la décomposition bactérienne de la matière organique (surfaces inondées des rizières, ruminants, couverts de déchets). Le second provient de la combustion incomplète des matières organiques et combustibles fossiles (hydrocarbures, charbon, bois), et de l'oxydation du méthane et des hydrocarbures présents dans l'air. Les composés organiques volatils (COV), et parmi eux les hydrocarbures non méthaniques (NMHC), ont des natures et des sources diverses. On trouve ainsi des alcanes, alcènes, alcynes, des composés aromatiques et oxygénés. Mais seulement 10 % de leur source actuelle est liée aux activités humaines. Les sources naturelles sont donc particulièrement importantes, et correspondent principalement aux émissions d'isoprène et de terpènes par la végétation. En ce qui concerne les émissions anthropiques, on constate, à partir des données d'inventaires disponibles, que dans la plupart des pays européens, elles se répartissent approximativement de la façon suivante : 40 % proviennent de l'utilisation des solvants, 40 % des transports, en particulier du transport routier et 20 % de sources diverses (combustion, agriculture, ...).

Les oxydes d'azote enfin ont des sources variées, dont plus de 75 % sont d'origine anthropique. Au niveau mondial, les émissions d'oxydes d'azote dues à la combustion des combustibles fossiles ont augmenté d'un facteur 10 entre 1900 et 1990. En Europe (CEE), ces émissions proviennent pour 36 % des transports, 27 % des centrales électriques et 31 % de l'industrie. En France, les émissions proviennent pour 76 % des transports. Une autre source anthropique, particulièrement importante à l'échelle globale, est liée à la combustion de la biomasse dans les régions tropicales et subtropicales. Enfin, le développement de l'aviation subsonique entraîne une augmentation des rejets de monoxyde de carbone, d'hydrocarbures et d'oxydes d'azote

dans la troposphère et la basse stratosphère (8-12 km) par les flottes civiles et militaires. Ces émissions correspondent aux grands couloirs aériens, et sont principalement localisées aux hautes et moyennes latitudes de l'hémisphère nord.

Les théories de formation photochimique de l'ozone conduisent donc à prévoir une augmentation des concentrations d'ozone dans la troposphère, liée à l'accroissement des sources anthropiques de ses précurseurs. Comme nous l'avons déjà mentionné, plusieurs séries de données, réparties sur plus d'un siècle, montrent que, dans les latitudes moyennes de l'hémisphère Nord, l'ozone a augmenté d'un facteur supérieur à 4 depuis la fin du siècle dernier, passant en valeur moyenne de 10 ppb en 1874 à environ 50 ppb actuellement. On constate ainsi une cohérence globale des tendances mesurées, avec une accélération probable de cette tendance sur les deux dernières décennies. La variation saisonnière de la concentration d'ozone montre également une différence importante entre le début du siècle et la période actuelle. Elle présente un maximum au printemps pour la période 1874-1894, alors que pour les données récentes le maximum se poursuit jusqu'en été. Ceci peut également être interprété comme la signature d'une influence prépondérante de la source stratosphérique au siècle dernier et de la prépondérance actuelle de la source photochimique. Dans l'hémisphère sud, on peut supposer *a priori* que les teneurs pré-industrielles étaient équivalentes à celles de l'hémisphère nord. Ceci est confirmé par une analyse récente de mesures anciennes effectuées en Uruguay (Montevideo, 1883-1885) et en Argentine (Cordoba, 1886-1892). Si l'on considère les valeurs actuelles moyennes de l'ozone troposphérique dans l'hémisphère sud (20-25 ppbv), celles-ci correspondent à un doublement en un siècle et donc à un taux moyen d'accroissement de 0,7 % par an. Ces variations observées des concentrations d'ozone dans la troposphère sont donc directement reliées à celles des principaux précurseurs, et conduisent à estimer qu'aujourd'hui, environ 80 % de la source d'ozone troposphérique est liée à la production

photochimique directe à partir des différents précurseurs carbonés et des oxydes d'azote.

À cette augmentation à l'échelle globale vient s'ajouter une augmentation de la fréquence d'occurrence des épisodes de pollution locales, liée à l'accumulation des précurseurs de l'ozone, oxydes d'azote et composés organiques volatils. Les phénomènes de pollution oxydante ne sont plus seulement le fait de quelques grandes agglomérations, mais se généralisent à l'ensemble des pays développés ou en voie de développement. Les premiers épisodes de forte concentration d'ozone enregistrés dans les régions urbanisées datent de la fin des années quarante dans le bassin de Los Angeles. La situation californienne a empiré durant les années cinquante et soixante au point de servir aujourd'hui de référence en matière de pollution photo-oxydante. La concentration considérable d'ozone atteinte sur ce site tient à l'intervention simultanée de tous les facteurs favorables à des pointes aiguës d'ozone : émissions intenses, fort ensoleillement, température élevée, vents faibles, inversion thermique marquée et durable. Sans atteindre l'extrême gravité de la Californie du Sud, des épisodes de pollution photochimique sévères s'observent régulièrement dans le panache de très nombreuses autres villes des États-Unis, si bien que jusqu'au début des années soixante-dix, on a longtemps pensé que la pollution atmosphérique photochimique était un problème limité à ces grandes régions urbaines des États-Unis. Les premiers épisodes de pollution photochimique décrits en Europe datent de 1971, et concernent les Pays-Bas et la Grande-Bretagne, puis la Scandinavie en 1972. Des épisodes ont été enregistrés par la suite progressivement dans tous les pays d'Europe, en particulier au cours de l'été 1976 en Allemagne, en Grande-Bretagne, mais aussi en France, puis dans les pays méridionaux à Rome, Madrid, et à Athènes. En France la région la plus touchée est probablement celle de Fos-Berre où des concentrations d'ozone très élevées, de 200 à 300 ppbv peuvent être observées dans l'est du bassin. L'ozone formé est transporté jusqu'à 50-100 km sous le vent, touchant notamment des sites naturels comme

les Baux-de-Provence, les massifs du Lubéron ou de la Sainte Baume. En Ile-de-France, le panache de l'agglomération parisienne a fait l'objet d'une étude approfondie qui a montré que les concentrations les plus élevées s'observent régulièrement dans le sud-ouest, avec des pointes pouvant dépasser 150 ppbv à plusieurs dizaines de kilomètres en aval de l'agglomération.

Afin de faire face à cette évolution rapide de la pollution oxydante aux échelles locales, régionales et globales, qui, au rythme actuel conduirait à un doublement des concentrations d'ozone dans la troposphère en moins de 40 ans, plusieurs pays définissent aujourd'hui des normes fixant des valeurs-seuils. Dans un premier temps, les États-Unis ont utilisé pour référence une concentration totale maximale d'oxydants de 80 ppbv ne devant jamais être dépassée. Cette référence étant rapidement apparue comme difficile à satisfaire, elle a été réévaluée en 1978 : référence à l'ozone seul et non plus aux oxydants totaux, augmentation du seuil à 120 ppbv, tolérance de un dépassement par an. Toutefois, aujourd'hui encore, une part très importante des régions les plus peuplées des États-Unis ne satisfont pas, et de loin, la norme fédérale. Il semble cependant que la situation se soit stabilisée, probablement grâce aux mesures anti-pollution sévères qui ont été édictées dans de nombreux États. La Directive 92/72/CEE du Conseil des communautés économiques européennes fixe des valeurs-seuils de 55 ppbv en valeur moyenne sur huit heures pour la protection de la santé, de 100 ppbv en valeur moyenne sur une heure pour la protection de la végétation, de 90 ppbv en valeur moyenne sur une heure pour l'information de la population et de 180 ppbv en valeur moyenne sur une heure pour l'alerte. Mais les tendances séculaires d'augmentation des concentrations d'ozone à l'échelle globale sont également d'une importance capitale pour le respect des normes d'environnement prise pour les régions urbaines. En effet, l'atmosphère libre constitue le réservoir qui approvisionne la couche de mélange. Si la norme régionale est fixée à 120 ppbv d'ozone et que l'atmosphère de fond en contient 50 ppbv, on peut tolérer une sur-

production locale qui génère dans le panache 70 ppbv supplémentaires d'ozone. Dans vingt ans, la concentration d'ozone dans l'atmosphère à l'échelle globale atteindra 75 à 80 ppbv, si la tendance d'augmentation de 1 à 2 % par an se confirme. Ceci ne laisserait plus qu'une tolérance de surproduction régionale de 40 ppbv. Aucune instance locale ou régionale ne pourra alors faire respecter la norme de 120 ppbv, par des mesures acceptables de régulation ou de limitation de trafic. Il apparaît donc clairement aujourd'hui que le type de normes actuellement défini, dont le respect est à la charge des collectivités locales et régionales est insuffisant. Celles-ci devront être complétées par des normes et des actions internationales engageant des politiques de réduction au niveau de la planète entière, et qui devraient concerner en premier lieu les oxydes d'azote, dans la mesure où ces constituants jouent le rôle d'effet déclenchant pour la production d'ozone. On peut d'ailleurs noter que l'une des causes de la réévaluation de la norme américaine, de 80 ppbv pour les oxydants à 120 ppbv pour l'ozone seul, a été l'impossibilité de respecter la norme de 80 ppbv, du fait de l'augmentation de la teneur en ozone d'environ 30 ppbv dans l'atmosphère libre depuis 1960, elle-même liée principalement à l'accroissement des concentrations en oxydes d'azote d'origine anthropique.

Les enjeux pour l'environnement de l'augmentation de l'ozone troposphérique et des constituants photo-oxydants qui lui sont liés, sont particulièrement importants. Tout d'abord, l'ozone est un gaz à effet de serre,

qui de par ses propriétés radiatives dans le domaine des longueurs d'onde infrarouge est près de 1 000 fois plus actif, à concentration égale, que le gaz carbonique. Du fait de l'augmentation de sa concentration dans la troposphère, à des rythmes supérieurs à 1 % par an, la part relative de l'ozone dans l'effet de serre additionnel pourrait être comprise entre 10 % et 20 % actuellement et devrait s'accroître au cours des prochaines décennies. Par ailleurs, les interactions chimiques qui lient ozone, méthane, oxydes d'azote et hydrocarbures induisent un effet indirect de couplage entre le climat et la chimie de l'atmosphère. L'augmentation de la concentration d'ozone, oxydant puissant, a également des conséquences directes sur la santé humaine et les équilibres des écosystèmes végétaux, largement mises en évidence dans les régions polluées. Dans le domaine des effets de l'ozone sur la végétation, les modes d'altération des processus physiologiques principaux et leurs répercussions sur la croissance et le rendement des cultures sont bien établis. Les relations dose-effet, confirmées par des expérimentations à l'échelle internationale, montrent que les concentrations ambiantes se situent déjà dans le domaine des valeurs nocives sur certaines espèces, et qu'une élévation modérée des teneurs conduirait à des effets d'ampleur notable. Dans le domaine des effets sur la santé, les conséquences de la persistance de concentrations élevées d'ozone et de photo-oxydants dans les régions de forte pollution sont prouvées, notamment sur le plan des affections respiratoires pour les populations à

risques. Les effets à plus long terme, en particulier cancérigènes et mutagènes, restent largement incertains.

Certes de nombreuses incertitudes subsistent encore dans notre compréhension des processus et notre capacité :

- à établir des bilans précis à l'échelle globale de l'ozone et de ses principaux précurseurs (oxydes d'azote, hydrocarbures) du fait notamment du manque de données sur les distributions spatiales et temporelles des constituants minoritaires de la troposphère ;

- à localiser et à quantifier avec précision les sources d'émissions naturelles (biogéniques) ou anthropiques des précurseurs de l'ozone.

Nous ne comprenons pas non plus l'ensemble des rétroactions positives ou négatives entre les processus chimiques et climatiques qui déterminent l'évolution des capacités oxydantes de la basse atmosphère, et l'importance relative des différents constituants dans l'effet de serre additionnel induit. Il est également difficile d'établir dans le domaine de la santé des relations dose-effet précises aux basses concentrations, et nous manquons de données sur les effets de synergie liés à l'augmentation des concentrations des différents polluants. Il n'en reste pas moins qu'un certain nombre de faits doivent être considérés aujourd'hui comme bien fondés scientifiquement, qui impliquent une prise en compte immédiate des conséquences potentielles d'une augmentation de la pollution photooxydante dans la basse atmosphère à l'échelle locale comme à l'échelle globale. ■