

Programme GICC Gestion et Impacts du Changement Climatique
Séminaire scientifique de restitution
11-12 mai 2006, PARIS

**QUANTIFICATION DES EMISSIONS DES
PRECURSEURS DE L'OZONE PAR MODELISATION INVERSE**

Claire Granier, Gabrielle Pétron et Aude Mieville
Service d'Aéronomie/IPSL
Paris

Philippe Ciais et Philippe Bousquet
Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement/IPSL
Gif-sur-Yvette

Communication présentée par Aude Mieville

Les modifications des distributions des différents gaz à effet de serre depuis le début du siècle ont conduit à une augmentation significative du forçage climatique. Environ 62% de l'effet de serre anthropique est dû à l'augmentation des concentrations en CO₂, 20% est dû à l'augmentation des concentrations en méthane, 4% et 14% de ce forçage étant dus aux augmentations respectives des concentrations du protoxyde d'azote (N₂O) et des différents chlorofluorocarbures. De plus, l'augmentation de la concentration d'ozone dans la troposphère due à l'augmentation des émissions du méthane (CH₄) et des autres hydrocarbures, du monoxyde de carbone (CO) et des oxydes d'azote a conduit à un forçage supplémentaire de 10 à 15% depuis le début du XX^{ème} siècle, lié à la production d'ozone dans la troposphère. Ces chiffres montrent que l'ensemble des perturbations directes et indirectes liées à l'augmentation des concentrations des gaz à effet de serre direct et de l'ozone dans la troposphère doit être pris en compte dans les évaluations des changements climatiques et dans les propositions de réduction des émissions des gaz à effet de serre. Dans ce cadre, l'objectif de notre projet était de quantifier les émissions de deux précurseurs de l'ozone troposphérique, le monoxyde de carbone (CO) et le méthane (CH₄). La détermination précise des émissions de ces gaz aux échelles régionales et globales pourra alors servir de référence pour l'établissement de mesures de limitation de leurs émissions.

Nous présenterons ici nos travaux sur la quantification des émissions de monoxyde de carbone. CO joue un rôle important dans la chimie atmosphérique pour plusieurs raisons. En présence d'oxydes d'azote et de rayonnement ultraviolet, les réactions d'oxydation de ce gaz conduisent à la formation d'ozone. Dans la troposphère, CO est responsable d'environ 60% de la destruction du radical hydroxyle (OH), l'oxydant le plus efficace de l'atmosphère. L'oxydation par OH représente le principal puits pour de nombreux composés dont le CO, le CH₄, et de nombreux autres gaz à effet de serre émis à la surface. CO a donc un rôle essentiel dans la détermination de la durée de vie du méthane et de nombreuses autres espèces. CO est émis directement à la surface de la terre par les activités industrielles, l'utilisation des combustibles fossiles, et la combustion de la biomasse. Des émissions de CO sont aussi dues à la végétation et à la photooxydation de la matière organique océanique. Environ un tiers de la concentration troposphérique de CO provient de plus de l'oxydation du méthane et des autres hydrocarbures émis soit par la végétation (isoprène, terpènes, etc...), soit lors des activités liées à l'industrialisation ou au transport. La durée de vie moyenne du CO dans la troposphère est d'environ 2

mois, et CO peut donc être transporté sur de grandes distances loin de ses zones d'émissions. Par contre, cette durée de vie est trop courte pour que ce gaz soit uniformément réparti dans la troposphère.

Les sources et les puits de CO sont bien connus qualitativement. Toutefois, le bilan quantitatif de CO aux échelles régionale et globale est toujours incertain. Les émissions de ce composé sont très variables dans l'espace et dans le temps, ce qui rend leur quantification à l'échelle globale difficile, et ne permet pas le développement d'inventaires précis et représentatifs. Depuis quelques années, des mesures effectuées à la surface de la terre ou par des instruments embarqués sur avions ont permis de connaître les principales caractéristiques de CO dans la troposphère. Les instruments embarqués sur satellites fournissent depuis quelques années des informations sur les distributions quasi-globales de quelques espèces chimiquement actives. Le nombre croissant d'observations disponibles, ainsi que les récents développements des modèles globaux rendent désormais possible l'application des techniques de modélisation inverse visant à optimiser les bilans des espèces chimiquement actives. Notre projet avait pour but d'utiliser cet ensemble d'observations, de développer et de mettre en œuvre des méthodes de modélisation inverse pouvant être utilisées pour optimiser les émissions du CO.

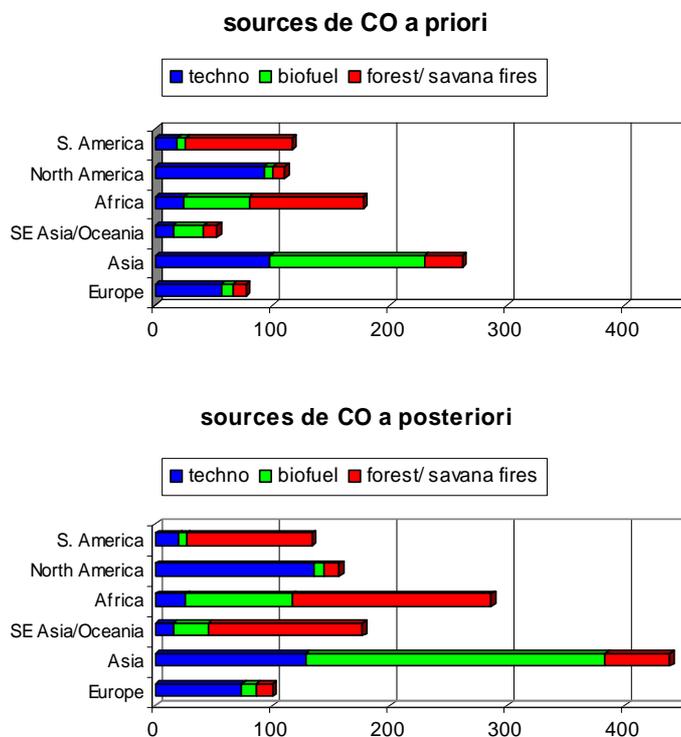
Les modèles de chimie-transport atmosphériques sont couramment utilisés pour l'étude de l'évolution des propriétés physico-chimiques de l'atmosphère à l'échelle globale. Ces modèles utilisent des inventaires d'émissions à la surface de gaz en trace et de particules comme conditions à la limite, et les distributions des composés chimiques pris en compte dans les modèles sont calculées en résolvant les équations de continuité. La composante du modèle résolvant le transport utilise des données provenant des analyses météorologiques pour des années spécifiques ou des données climatologiques. Dans le cadre de la modélisation inverse, les distributions calculées pour un composé sont comparées aux observations disponibles et les différences entre les deux distributions sont utilisées pour optimiser les paramètres les plus incertains, qui sont dans cette étude les émissions de monoxyde de carbone à la surface du globe.

La qualité des mesures de la composition de l'air ainsi que celle des modèles de chimie et transport atmosphériques ont stimulé la mise en œuvre de techniques inverses visant à utiliser les observations pour estimer les paramètres les plus incertains des modèles, et en particulier les émissions de gaz en trace et de particules à la surface du globe. Suivant l'exemple des développements effectués en météorologie en matière d'assimilation de données et les premières applications à la modélisation inverse du cycle du CO₂ dans la troposphère, nous avons développé des outils pour réduire les incertitudes sur les émissions à la surface du monoxyde de carbone. L'approche inverse choisie considère une variable d'état ou inconnue formée par une partition des émissions du gaz. Cette variable d'état est reliée au vecteur contenant les observations par un opérateur linéaire, appelé matrice d'observation. Cette matrice contient les fonctions-réponses aux différents sites d'observations pour chacun des flux de la partition d'émissions choisie. Le problème de la détermination des sources globales d'un traceur à partir d'observations de sa distribution dans l'atmosphère est un problème sous-contraint. Pour pouvoir déterminer une solution unique, la solution du problème inverse est cantonnée dans un voisinage autour d'une estimation *a priori* de la variable d'état. On parle alors d'inversion bayésienne. Des incertitudes ou erreurs sur l'estimation *a priori* et sur les observations sont fixées. L'étendue du voisinage dans lequel la solution se trouve est directement reliée à l'incertitude sur l'estimation des émissions *a priori*. Plus cet *a priori* est incertain et plus les erreurs sur les observations sont faibles, plus l'inversion pourra établir une estimation optimale «éloignée» de l'*a priori* afin de rapprocher les grandeurs simulées des observations.

Dans le cadre de ce travail, nous avons développé des méthodes de modélisation inverse que nous avons appliquées à deux types d'observations. Nous présenterons les premiers résultats que nous avons obtenus, en utilisant dans un premier temps, des observations climatologiques recueillies par un ensemble de stations de surface, avec lesquelles nous avons optimisé les moyennes mensuelles des émissions des composés observés.

La deuxième étape du projet a consisté à adapter notre méthode pour qu'elle puisse utiliser le grand nombre d'observations fournies par les observations satellitales. Nous avons pour cela étudié les

récentes distributions du monoxyde de carbone par l'expérience MOPITT embarquée sur la plateforme spatiale TERRA. Nous avons pu valider nos résultats par un ensemble d'observations indépendantes. La figure montre par exemple les émissions a priori et les émissions optimisées en utilisant les observations de MOPITT pour différentes régions du monde, sur la période avril 2000 – mars 2001.



Bilan des émissions de CO *a priori* (haut) et *a posteriori* (bas). La source anthropique directe de CO est de 874 Tg CO/an *a priori* et de 1214 Tg CO/an *a posteriori*.

Les résultats que nous avons obtenus ont ainsi contribué à une meilleure quantification des émissions à la surface du CO, sur lesquelles existent de grandes incertitudes. Nous avons ainsi mis en évidence par exemple une sous-estimation des émissions anthropiques en Asie, et déterminé des émissions plus précises des émissions dues à la combustion de la biomasse. En utilisant les émissions déterminées par modélisation inverse, nous avons de plus obtenu un bien meilleur accord entre les résultats des simulations effectuées au moyen d'un modèle de chimie-transport et les observations.

