

**Développement d'un inventaire cohérent
de la distribution des gaz à effet
de serre et de leurs précurseurs
sur la période 1900-2003
et application aux émissions futures.**

**Rapport final
Mai 2007**

Claire Granier et Aude Mieville
Service d'Aéronomie/IPSL

Catherine Liousse et Bruno Guillaume
Laboratoire d'Aérodynamique

**SECONDE PHASE DU PROGRAMME
"GESTION ET IMPACTS DU CHANGEMENT
CLIMATIQUE" (GICC-2)**

I- Introduction

Depuis la fin du XIX^{ème} siècle, le développement de l'industrialisation et de l'agriculture intensive ainsi que la déforestation à grande échelle ont conduit à l'émission dans l'atmosphère de grandes quantités de gaz en trace et de particules, ce qui a eu pour conséquence de modifier sa composition. L'accroissement des concentrations des différents gaz à effet de serre depuis le milieu du 19^{ème} siècle a conduit à une augmentation du forçage climatique net estimée à 1.6 Wm^{-2} [de 0.6 à 2.4 Wm^{-2}] [IPCC, 2007]. L'augmentation de la concentration d'ozone dans la troposphère due à l'augmentation des émissions de ses précurseurs (le méthane, le monoxyde de carbone CO, les oxydes d'azote NO_x et les composés organiques volatils COVs) a conduit à une augmentation supplémentaire de 0.35 Wm^{-2} [de 0.25 à 0.65 Wm^{-2}] du forçage climatique depuis le début du siècle [IPCC, 2007]. Ces calculs montrent que l'ensemble des perturbations directes et indirectes liées à l'augmentation des concentrations du méthane, des précurseurs de l'ozone et de l'ozone dans la troposphère doivent être pris en compte dans les évaluations des changements climatiques et dans les propositions de réductions des émissions des gaz à effet de serre. Le forçage radiatif dû à l'augmentation des concentrations en ozone a une incertitude encore élevée. Ce gaz à effet de serre, qui a une assez courte durée de vie, est produit uniquement par des processus photochimiques. L'évolution de la concentration en ozone est mal connue, de même que celles de ses précurseurs : elle dépend en grande partie de l'évolution de leurs émissions, qui ne peuvent encore être quantifiées avec précision.

De même notre connaissance de l'impact radiatif des particules, qu'elles soient d'origines biogénique ou anthropique, est encore assez pauvre. Même si des avancées ont permis d'améliorer les estimations données dans le nouveau rapport de l'IPCC [2007], soit un forçage direct moyen de -0.5 Wm^{-2} [de -0.9 à -0.1 Wm^{-2}] du à l'impact des sulfates, du carbone suie et du carbone organique, de grandes incertitudes demeurent encore sur l'estimation de l'impact climatique du mélange d'aérosols et tout particulièrement sur les composantes aérosol carboné et aérosol désertique. Une des principales causes de ces incertitudes provient là encore d'une connaissance encore limitée des émissions et de leur évolution.

L'objectif principal du projet était de mettre au point une méthodologie pour construire un inventaire cohérent et validé des émissions des gaz à effet de serre, des précurseurs de l'ozone et des aérosols pour la période 1900-2003. Cette méthodologie pourra alors être appliquée par la suite pour développer des inventaires futurs à partir de scénarios du type IPCC.

Plusieurs inventaires ont été développés par différents groupes, aussi bien en France que dans différents autres pays pour différentes conditions ou périodes, en prenant en compte différentes hypothèses et en appliquant différentes méthodes. Ces inventaires, qui considèrent différentes périodes, différentes régions et différentes hypothèses ne peuvent à l'heure actuelle être utilisés tels quels sur de grandes périodes typiques de l'échelle climatique du fait de leur manque de cohérence. Notre but a été de développer une méthodologie dans laquelle ces différents inventaires des émissions des espèces gazeuses et des aérosols seront détaillés et évalués, pour permettre la construction d'un seul inventaire cohérent et validé de tous les composés

chimiques importants pour la période 1900-2000. Cette méthodologie pourra alors être appliquée au calcul des émissions futures pour différents scénarios futurs de l'évolution des émissions.

II. Méthodologie

Les travaux que nous avons effectués concernent à la fois la quantification des émissions d'origine anthropique (c'est-à-dire les émissions résultant des activités humaines : production électrique, transports, industries, etc...), et des émissions liées à la combustion de la biomasse (feux de forêts et de savane, feux agricoles). Les composés gazeux que nous considérons sont le dioxyde de carbone (CO_2) et le méthane (CH_4) qui sont des gaz à effet de serre émis directement à la surface, ainsi que les précurseurs de l'ozone (l'ozone est un autre gaz à effet de serre) qui sont le monoxyde de carbone (CO), les oxydes d'azote (NO_x), et un nombre significatif de composés organiques volatils (COVs). Concernant les espèces particulaires, nous considérons les émissions du carbone suie (BC), des aérosols organiques (OC) et du dioxyde de soufre (SO_2), précurseur des aérosols sulfatés. Il faut noter que les COVs sont à la fois des précurseurs de l'ozone et des aérosols organiques.

II.1 Qu'est ce qu'un inventaire 'cohérent' ?

Pour une source d'émissions donnée (par exemple la production thermique d'énergie électrique, ou des feux de forêts tropicales), on peut associer un facteur d'émission de CO_2 , qui représente la quantité de CO_2 émise, pour une quantité de combustible brûlé (charbon ou fioul pour une centrale thermique, bois pour des feux de forêt). A cette quantité de combustible brûlé, correspond également une quantité de CO, NO_x , COVs, etc... émis dans l'atmosphère. Plusieurs méthodes de calcul existent afin de déterminer ces facteurs :

- Dans certains inventaires, toutes les émissions de gaz traces peuvent être calculées grâce à des « rapports d'émissions » par rapport au CO_2 émis (rapport CO/ CO_2 par exemple). Ces rapports d'émissions sont spécifiques à chaque source d'émission, et à chaque combustible (combustibles fossiles ou biologiques). De la même manière, il existe des rapports d'émission entre les aérosols émis (SO_2 , carbone suie carbone organique) et le CO_2 émis, qui permettent de calculer les émissions d'aérosols.

- Dans certains protocoles expérimentaux, les facteurs d'émission sont estimés à partir du carbone qui est brûlé, carbone calculé à partir des données de CO et CO_2 .

Jusqu'à présent, certains groupes de recherche ont travaillé sur le développement d'inventaires d'émissions d'aérosols, d'autres ont travaillé sur l'inventaire des émissions des gaz. Dans ce cas, l'inventaire des gaz et l'inventaire d'aérosols émis ne sont pas cohérents, car ils ne correspondent pas nécessairement à la même quantité de CO_2 associée.

Au cours des dernières années, plusieurs modèles de chimie-transport (CTMs) ou de chimie-climat (CCMs) prenant en compte à la fois les composés gazeux et les aérosols ont été développés. Il est donc maintenant important de disposer d'inventaires prenant en compte de façon cohérente les gaz et les aérosols.

L'inventaire développé dans le cadre de ce projet calcule toutes les émissions de gaz et d'aérosols à partir de la même quantité de CO₂ émise ; ainsi, il est intrinsèquement 'cohérent'.

II.2 Emissions anthropiques

La détermination des émissions anthropiques a été effectuée pour la période 1860-2000. Elle est basée sur la méthode mise au point pour les espèces carbonées BC et OC pendant la première phase du projet GICC [Lioussé et al.]. Dans le cadre de ce projet GICC, la méthode a tout d'abord été améliorée suite aux commentaires des rapporteurs du journal ACPD/ACP dans lequel l'étude a été publiée [Junker and Lioussé, 2006]. Cette méthode a été ensuite utilisée pour le développement d'un inventaire des composés gazeux sur la même période, 1860-2000.

La méthodologie que nous avons développée pour calculer les émissions utilise deux méthodes différentes pour déterminer les inventaires d'émission de 1950 à 2000 et de 1860 à 1949. Les émissions sont tout d'abord calculées pays par pays puis spatialisées sur une grille de 1 degré de résolution à partir de carte de densité de population. La carte utilisée est basée sur celle développée en 1984 par le Goddard Institute for Space Studies (Université Columbia, New York). Des modifications ont été apportées à cette carte pour tenir compte de certaines évolutions d'importance (modifications des frontières à la fin de la seconde guerre mondiale, le démantèlement de l'Union Soviétique, etc...).

II.2.1 1950 à 2000

Notre méthode est basée sur celle décrite par Cooke et al. [1999], qui est fondée sur la base de données statistiques des Nations Unies [United Nations Energy Statistics Database, UNSTAT : <http://unstats.un.org/unsd/>]. Cette base de données fournit des informations très détaillées sur la consommation de combustibles fossiles ainsi que sur l'utilisation que les différents pays en font. Face au manque de données sur les facteurs d'émission (EF) des différentes combinaisons fuels/activités/pays, des simplifications ont été réalisées afin de pouvoir utiliser ce vaste ensemble de données dans un inventaire global. Ces simplifications ont été établies en fonction des facteurs gouvernant la variabilité des EF.

- les combustibles ont été classés suivant trois types principaux d'utilisation, et les facteurs d'émission correspondants ont été définis à partir des valeurs de la littérature, d'expériences récentes et/ou issues de confrontations entre différents travaux existant à l'échelle internationale (cf tableaux 1 et 2) : 1) Utilisation industrielle pour laquelle un facteur d'émission EF_{ind} est déterminé, 2) un facteur d'émission domestique EF_{dom} , 3) un facteur d'émission dit « combiné » qui correspond au trafic pour les fuels liquides et à la moyenne géométrique de EF_{ind} et EF_{dom} quand l'utilisation industrielle ou domestique est inconnue pour les fuels solides et gazeux.
- Afin de tenir compte de l'avancée technologique des différents pays, les facteurs d'émission, pour des combinaisons identiques de type de fuels et de

son utilisation ont été divisés en trois classes en fonction du niveau de développement des différents pays 1) pays développés, 2) pays semi-développés et 3) pays en voie de développement.

Un schéma simplifié de la méthode utilisée décrite dans Junker et Liousse [2006] est présenté sur la figure 1.a. La méthode utilisée ici est plus simple que celle utilisée dans d'autres études comme celle de Bond et al. [2004] qui utilise un facteur d'émission spécifique pour chaque combinaison de type de fuels/utilisations/technologies de chaque pays. Ces méthodes plus précises ne peuvent cependant être utilisées dans leur complexité que pour les années les plus récentes, et pour les pays pour lesquels on dispose d'informations détaillées.

II.2.2 1860 à 1949

La méthode utilisée pour la détermination des émissions des 1860 à 1949 est décrite dans Junker et Liousse, 2006 et dans le rapport GICC 1 de Liousse et al. La méthode a été améliorée dans le cadre de cette nouvelle étude.

Nous avons utilisé la méthode décrite dans le paragraphe précédent, mais avec des simplifications, car les données sur l'utilisation des combustibles ne sont pas disponibles pour la période étudiée. Les données de consommation sont obtenues à partir des données de production des fuels de Etemad et al. [1991], et des données sur les échanges commerciaux des différentes années étudiées de Mitchell et al. [1992, 1993 et 1995] (ces dernières données n'étaient pas prises en compte dans le rapport GICC1). Nous avons ensuite estimé de façon globale l'utilisation des fuels suivant les trois classes « industriel », « domestique » et « combiné » (trafic) sur la base de l'extrapolation de tendances déterminées à partir des données de la base UNSTAT, en utilisant de plus des informations détaillées dans quelques cas. Le schéma de cette méthode est décrit dans la figure 1.b [Junker et Liousse, 2006]

Nous avons de plus apporté une modification à la méthode initiale développée par Cooke et al. [1999] : pour la période antérieure à 1939, nous n'avons considéré que deux classes de développement, semi-développé et en voie de développement.

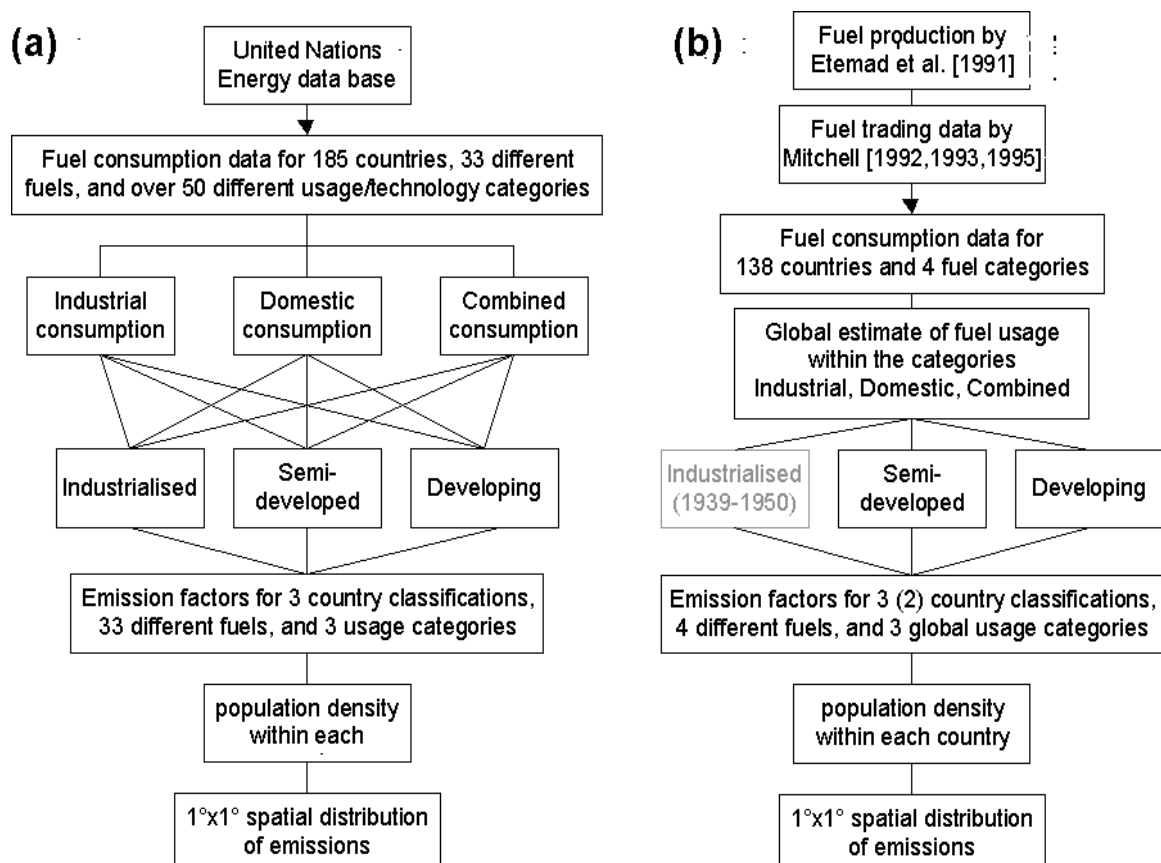


Figure 1 Schémas décrivant les méthodes utilisées pour déterminer les inventaires sur les périodes (a) 1950-1997 et (b) 1860-1949 [d'après Junker et Liousse, 2006].

II.2.3 Choix des facteurs d'émissions

En ce qui concerne l'estimation des facteurs d'émission un traitement différent a été porté aux espèces particulières et gazeuses.

L'évolution des facteurs d'émission au cours des années a été prise en compte pour l'aérosol carboné seulement. La figure 2 montre les variations des facteurs d'émission au cours du temps pour l'utilisation industrielle du charbon, du diesel et de l'essence ainsi que pour le trafic pour les pays développés et en voie de développement. Les valeurs considérées pour l'année 1997 sont rassemblées dans le tableau 2. Le détail de ces estimations est décrit dans Junker et Liousse [2006].

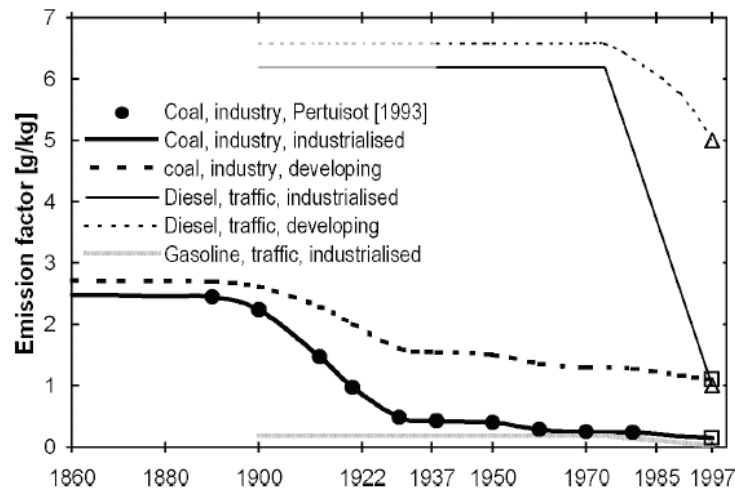


Figure 2 : facteurs d'émission de BC (en g/kg) pour l'utilisation du charbon et des fuels liquides utilisés dans ce travail, comparés à ceux donnés par Pertuisot [1993]. Les facteurs d'émission pour l'année 1997 [Cooke et al., 1999] sont indiqués par les carrés (charbon solide) et les triangles (diesel). Les lignes représentant EF_{trafic} pour l'utilisation du diesel sont indiqués en gris pour les années antérieures à 1938, car l'utilisation du diesel dans les véhicules était seulement expérimental à cette époque.

Pour CO₂, CO, et NO_x (oxydes d'azote) des valeurs constantes au cours du temps ont été considérées pour l'instant (tableaux 1 et 2), constituant une première estimation des tendances historiques de ces émissions.

CO2 (CO2 g/kg)	Tous secteurs
Fioul solide	2483 (a)
Bois de chauffage	1550 (b)
Charbon de bois	2611 (b)
Tourbe	2611
Aviation	3212 (a)
Diesel/fioul domestique	3108 (a)
Moteurs à essence	3168 (a)
Gaz (Naturel, GPL, ...)	2435 (a)

Table 1: facteurs d'émission de CO₂ pour différents types d'utilisation

(a) : <http://reports.eea.eu.int/EMEPCORINAIR3/en/>

(b) : Andreae et Merlet, 2001

	CO			NOx			BC			OC		
	Com	Dom	Ind	Com	Dom	Ind	Com	Dom	Ind	Com	Dom	Ind
charbon												
Dévelop.	13,6	45 ^a	4,1 ^a	3,85	2,02 ^a	7,34 ^a	0.46	1.39	0.07	0.66	2.92	0.07
Semi-Dev.	24,6	73,8	8,2	6,97	3,31	14,7	0.82	2.28	0.30	1.19	4.77	0.30
En voie dév.	47,3	73,8	30,3	13,4	3,31	54,3	1.58	2.28	1.1	2.29	4.77	1.1
Bois de chauffage												
Dévelop.	20,7	63 ^d	6,8 ^d	1,84	1,1 ^{ad}	3,1 ^{ad}	0.67	0.75	0.6	2.02	2.25	1.8
Semi-Dev.	20,7	63	6,8	1,84	1,1	3,1	0.67	0.75	0.6	2.02	2.25	1.8
En voie dév.	24,8	75,6	8,16	2,21	1,33	3,67	0.81	0.9	0.72	2.43	2.7	2.16
Charbon de bois												
Dévelop.	200	200 ^e	0	5,97	5,97 ^e	0	0.75	0.75	0.75	2.25	2.25	2.25
Semi-Dev.	200	200	0	5,97	5,97	0	0.75	0.75	0.75	2.25	2.25	2.25
En voie dév.	200	200	0	5,97	5,97	0	0.75	0.75	0.75	2.25	2.25	2.25
Tourbe												
Dévelop.	200	200	0	5,97	5,97	0	0.3	0.67	0.13	2.71	6.07	1.21
Semi-Dev.	200	200	0	5,97	5,97	0	0.3	0.67	0.13	2.71	6.07	1.21
En voie dév.	200	200	0	5,97	5,97	0	0.3	0.67	0.13	2.71	6.07	1.21
Aviation												
Dévelop.	6 ^b	6	6	14 ^b	14	14	0.1	0.1	0.1	1.15	1.15	1.15
Semi-Dev.	6	6	6	14	14	14	0.1	0.1	0.1	1.15	1.15	1.15
En voie dév.	6	6	6	14	14	14	0.1	0.1	0.1	1.15	1.15	1.15
Diesel												
Dévelop.	7,4c	0,24 ^a	4	6,88 ^c	3,3 ^a	5	1	0.07	0.2	0.5	0.05	0.15
Semi-Dev.	14,8	0,31	5,8	13,8	4,29	7,25	2	0.09	0.28	1	0.07	0.21
En voie dév.	37	1,2	13,3	34,4	16,5	16,6	5	0.35	1	2.5	0.25	0.75
Moteurs à essence												
Dévelop.	9,76 ^c	4,55 ^c	4,55 ^c	9,76 ^c	4,55 ^c	4,55 ^c	0.03	0.03	0.03	0.1	0.1	0.1
Semi-Dev.	48,8	22,7	22,7	48,8	22,7	22,7	0.15	0.15	0.15	0.73	0.73	0.73
En voie dév.	48,8	22,7	22,7	48,8	22,7	22,7	0.15	0.15	0.15	0.73	0.73	0.73

Table 2: facteurs d'émission de CO, NOx, BC et OC pour différents types d'utilisation;
Comb = Combiné (ou trafic) ; Dom = Domestique ; Ind = Industriel

Notes: (a) <http://www.aeat.co.uk/netcen/airqual/naei/annreport/annrep96>

(b): http://www.ipcc-nggip.iges.or.jp/public/gp/bgp/2_5_Aircraft.pdf

(c): <http://www.ipcc-nggip.iges.or.jp/public/gl/guidelin/ch1ref4.pdf>

(d): <http://www.transport.govt.nz/business/multimodal/environment/vehicle/hapinz/28.php>

(e): Andreae et Merlet, 2001

II.3 Emissions dues a la combustion de la biomasse

II.3.1 Algorithme utilisé dans la première phase du projet

Données utilisées

L'algorithme initial développé pour estimer les émissions de CO₂ utilise en entrée les données de pixels de feux dérivées de l'instrument satellital ATSR; ces données sont aussi appelées World Fire Atlas (WFA) . L'instrument ATSR est un radiomètre qui mesure le rayonnement reçu par la terre dans le visible et l'infrarouge. Lorsque le radiomètre reçoit un rayonnement dans l'infrarouge supérieur à un certain seuil, il y a détection d'un feu. La résolution de cet instrument est de 1km environ ; cet instrument satellite permet donc d'obtenir des cartes globales de 'pixels de feux' (ou feux actifs) à 1km. Les autres points chauds (associés à des puits de pétrole, ou des volcans par exemple) sont également détectés, et constituent des fausses alertes, car ils ne correspondent pas à des feux (de forêt ou de savane) ; au contraire des feux, ponctuels, ces derniers sont observés quasiment en continu, et peuvent ainsi être éliminés.

Une carte de distribution de la végétation est également nécessaire : Nous avons utilisé la carte CLM3.0 [<http://www.cgd.ucar.edu/tss/clm/index.html>] : elle fournit le pourcentage de chaque PFT (« Plant Functional Type ») à une résolution de 0.5x0.5 degrés. La carte CLM3.0 donne la distribution de 17 catégories de PFTs, décrites dans la table 3. Pour une première estimation et parce que de nombreuses incertitudes existent encore sur les facteurs d'émission des gaz et des particules, nous agrégeons ensuite les différents types de PFTs pour obtenir les distributions des deux grandes classes prédominantes : les savanes et les forêts. La table 3 donne les détails des PFTs de la carte CLM3.0, ainsi que l'attribution de ces classes aux catégories « savanes » et « forêts ».

Classes de PFTs pour CLM 3.0	
1	Bare soil + water
2	Tree, needleleaf evergreen temperate tree
3	Tree, needleleaf evergreen boreal
4	Tree, needleleaf, deciduous, boreal
5	Tree, broadleaf, evergreen, tropical
6	Tree, broadleaf, evergreen, temperate
7	Tree, broadleaf, deciduous, tropical
8	Tree, broadleaf, deciduous, temperate
9	Tree, broadleaf, deciduous, boreal
10	Shrub, broadleaf, evergreen
11	Shrub, broadleaf, deciduous, temperate
12	Shrub, broadleaf, deciduous, boreal
13	Arctic grass, C3
14	Non-arctic grass, C3
15	Grass, C4
16	Crop, corn
17	Crops, wheat

Table 3 : Description des 17 PFTs de la carte de végétation CLM3.0. Les PFTs indiquées en jaune font partie de la catégorie « savane », celles en vert sont dans la catégorie « forêt ».

Calcul des émissions de CO₂

La première étape consiste à déterminer le nombre de pixels de feux dans chaque cellule de 0.5x0.5 degrés, pour chaque mois de janvier 1997 à octobre 2003. Le nombre total de feux par type de végétation (forêt/savane) pour chaque année est ensuite calculé en prenant en compte les pourcentages de chaque type de végétation dans chaque cellule. Nous calculons enfin le nombre total de feux par région et par type de végétation, sur la période 1997-2003.

On fait ensuite la supposition suivante: La quantité totale moyenne de CO₂ émis par les feux sur la période 1997-2002 est supposée égale à la moyenne climatologique estimée par Hao et Liu [1994] pour la période 1985-1990, pour les feux de forêts d'une part, et pour les feux de savane d'autre part. Pour chaque type de végétation (forêt/savane), nous déterminons ainsi un facteur F qui donne la quantité de CO₂ émis pour un pixel de feux pour chaque type de végétation brûlée (F_{for} pour les feux de forêts, F_{sav} pour les feux de savane). Les émissions de CO₂ dues aux feux de forêts (savanes) sont alors obtenues en multipliant le nombre de feux de forêts (savanes) dans chaque cellule de 0.5x0.5 degrés par le facteur F_{for} (F_{sav}). Les émissions totales sont obtenues en sommant les émissions de CO₂ dues aux feux de forêts et les émissions de CO₂ dues aux feux de savanes.

Calcul des émissions des autres espèces

Les émissions des autres espèces chimiques sont calculées en utilisant les rapports d'émissions compilées par Andreae et Merlet [2001]. Pour BC et OC, nous utilisons, les facteurs d'émission de Liousse et al. [2004] et de Michel et al. [2005]. La table 3 donne, pour chaque type de végétation brûlée, le rapport émission(espece)/émission(CO₂) pour CO et NO_x, et le facteur d'émission en grammes émis par kg de matière sèche brûlée pour BC et OC.

	CO (mol/mol)	NO _x (mol/mol)	BC (g/kgdm)	OC (g/kgdm)
Feux de forêt : forêts boréales et tempérées	0.102	$2.66 \cdot 10^{-3}$	0.6	6
Feux de forêts tropicales	0.099	$1.41 \cdot 10^{-3}$	0.7	6.4
Feux de savanes	0.062	$3.47 \cdot 10^{-3}$	0.62	4

Table 4 : rapport d'émission de CO, NO_x (tous deux en moles/moles de CO₂) et facteurs d'émission pour BC et OC.

II.3.2 - Inventaire d'émissions 1997-2005 - Nouvel algorithme

Données utilisées

Dans le paragraphe précédent nous avons décrit la méthodologie que nous avons développée à partir du produit de pixels de feux ATSR. Or il a été montré que cette méthode pouvait donner des résultats incomplets. Il s'est révélé alors important de la coupler à d'autres méthodes existantes. C'est ce que nous proposons ici en complément l'approche ATSR avec la méthodologie dite « surfaces brûlées » décrites et utilisées dans Lioussé et al., (2004) et Michel et al. (2005). Une nouvelle version de notre algorithme a donc été développée dans la deuxième partie du projet GICC.

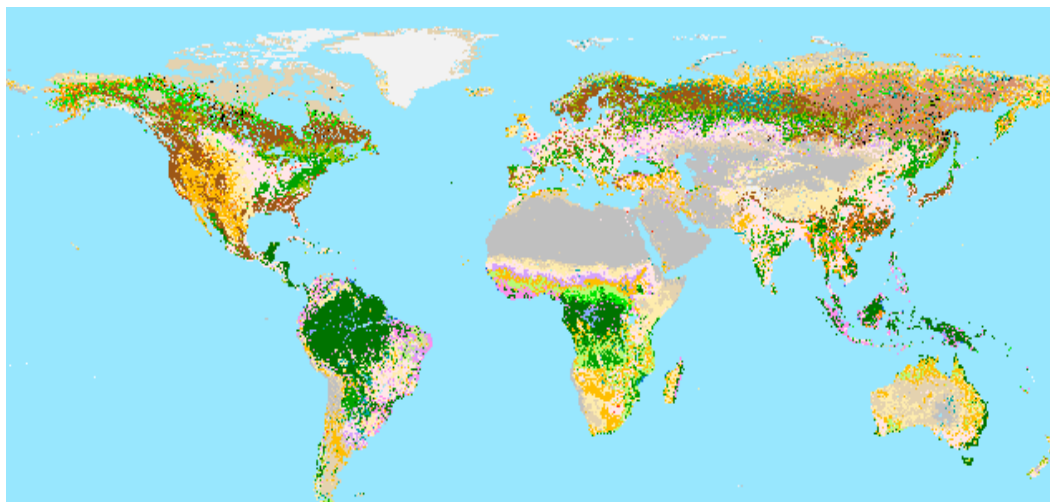
Notre nouvel algorithme estime donc les émissions de CO₂ à partir de deux types de données dérivées d'instruments satellitaires :

- GBA2000 (Global Burnt Area 2000, [Tansey et al., 2004]) : ce sont des données de surface brûlées pour l'année 2000, dérivées de l'instrument SPOT/Vegetation. L'instrument SPOT/Vegetation, lancé en mars 1998, est un radiomètre qui mesure le rayonnement reçu par la Terre dans le visible et l'infrarouge. Il permet de cartographier les surfaces brûlées, avec une résolution de 1 km environ. Pour l'instant, la cartographie des surfaces brûlées à partir de cet instrument n'a été réalisée que pour l'année 2000 ; en effet, les algorithmes de traitement des surfaces brûlées sont complexes et doivent être adaptés à chaque région du monde. Les données de surface brûlées ne sont pour l'instant disponibles que pour certaines années, et ne suffisent donc pas pour réaliser un inventaire d'émissions sur de longues périodes. C'est la raison pour laquelle nous utilisons un autre type de données satellitaires, le WFA..

- le WFA, World Fire Atlas : ce sont des données de pixels de feux dérivées de l'instrument ATSR (Along Track Scanning Radiometer, [Arino et al., 2001]), disponibles pour les années 1997 à 2005 (accessibles à l'adresse <http://shark1.esrin.esa.it/ionia>). La détection des feux par l'instrument ATSR a été décrite au paragraphe précédent.

Une carte de végétation est également indispensable pour déterminer quel type de végétation brûle, lorsqu'un feu est détecté à un endroit donné du globe. La carte utilisée dans cette étude est la carte GLC2000 ([Bartholomé et Belward, 2005]), dérivée de l'instrument SPOT/VEGETATION (à bord du satellite SPOT4). Cette carte comporte les classes de végétation indiquées dans la figure 3.b. Dans notre étude, nous ne prendrons pas en compte les classes « tree cover burnt », « tree cover, regularly flooded, fresh water », « tree cover, regularly flooded, saline water », et « regularly flooded shrub or herbaceous cover », dans lesquelles il n'y a pas de feux (zones inondées ou brûlées). Nous ne considérerons donc que les 14 autres classes de végétation. La distribution de la végétation donnée par cette carte est indiquée dans la figure 3.a.

a)



b)

1	Tree, broadleaf, evergreen
2	Tree, broadleaf, deciduous, closed
3	Tree, broadleaf, deciduous, open
4	Tree, needleleaf, evergreen
5	Tree, needleleaf, deciduous
6	Tree, mixed leaf
7	Tree, regularly flooded, fresh water
8	Tree, regularly flooded, saline water
9	Mosaïque : tree cover /other natural vegetation
10	Tree cover, burnt
11	Shrub, evergreen, closed-open
12	Shrub, deciduous, closed-open
13	Herbaceous cover, closed-open
14	Sparse herbaceous or sparse shrub
15	Regularly flooded shrub or herbaceous cover
16	Cultivated and managed areas
17	Mosaïc : cropland/ tree cover/other natural vegetation
18	Mosaïc : cropland/shrub or grass cover
19	Bare soil
20	Water
21	Snow and ice
22	Artificial surfaces

Figure 3: a) Carte de végétation GLC2000 ([Bartholomé and Belward, 2005]), en haut.
b) Description des 22 classes de la carte GLC2000, dont 18 sont des classes de végétation. Pour notre étude, les classes colorées en jaune seront attribuées à l'écosystème « savane », celles en vert à la « forêt », et celles en orange aux « zones de cultures ».

GLC2000 : Détermination des indices de combustion.

Pour estimer les émissions de CO₂ liées aux feux, nous avons besoin d'informations auxiliaires sur la végétation : les densités de biomasse (BD : Biomass Density), les efficacités de brûlage (BE : Burning Efficiency), et les facteurs d'émission

(EF : Emission Factor en anglais) de chaque type de végétation. Ces valeurs ne sont pas fournies par le producteur de la carte GLC2000.

Afin de déterminer ces valeurs, nous avons adapté les résultats obtenus de densités de biomasse, d'efficacité de combustion et de facteurs d'émission pour chaque classe de végétation de la carte UMD (développée par l'Université du Maryland, [Hansen et al., 2000]) aux classes de végétation de la carte GLC. Nous avons établi pour ce faire, une table de correspondance entre les classes de la carte UMD et les classes de la carte GLC2000, travail complexe réalisé avec l'aide de spécialistes du JRC. Le tableau 5 montre les correspondances faites entre les 2 cartes: cette correspondance nous a permis d'attribuer des valeurs de BD, BE et EF(CO₂) aux classes de végétation de GLC2000.

GLC classes	Corresponding UMD classes	BD (kg/m ²)	BE	EF(CO ₂) g(CO ₂)/ kgdm
Broadleaf evergreen GLC1	Broadleaf evergreen UMD2	23.35	0.25	1580
Closed broadleaf deciduous GLC2	Broadleaf deciduous UMD4	20	0.25	1569
Open Broadleaf deciduous GLC3	Wooded grassland UMD7	3.3	0.4	1613
Evergreen needleleaf forest GLC4	Evergreen needleleaf forest UMD1	36.7	0.25	1569
Deciduous needleleaf GLC5	Deciduous needleleaf forest UMD3	18.9	0.25	1569
Mixed leaf type GLC6	composite	14	0.25	1569
Mosaic : tree cover/other natural vegetation GLC9	Woodland UMD6	10	0.35	1591
Shrub, closed-open, evergreen GLC11	Grassland UMD10	1.25	0.9	1613
Shrub, closed-open, deciduous GLC12	Wooded grassland UMD7	3.3	0.4	1613
Herbaceous cover, closed open GLC13	Open shrubland UMD9 + grass UMD10	1.425	0.9	1613
Sparse herbaceous or sparse shrub cover GLC14	Composite	0.9	0.6	1567
Cultivated and managed areas GLC16	Cropland UMD11 corrigé	0.44	0.6	1515
Mosaic : cropland/tree cover/other natural vegetation GLC17	Composite	1.1	0.8	1594
Mosaic : cropland/shrub or grass GLC18	Composite	1	0.75	1580

Table 5: correspondances entre les classes de végétations des cartes GLC et UMD, et valeurs de BD, BE et EF(CO₂) associées.

Calcul des émissions de CO₂ en 2000 à partir de GBA2000.

La première étape consiste à calculer à partir du produit GBA2000 (surfaces brûlées) les quantités totales de CO₂ émises pour chaque type de végétation (14 classes GLC2000) pour l'année 2000. Ces quantités seront ensuite utilisées pour faire une calibration des pixels de feux ATSR, afin de déterminer la distribution spatiale et temporelle des émissions sur la période 1997-2005.

Pour cette première étape, on superpose les données de surfaces brûlées GBA2000, et la carte de végétation GLC, à 1km (résolution originale des données GBA2000 et GLC2000) : on associe à chaque surface brûlée un type de végétation brûlée. On en déduit alors pour chaque classe de végétation, les émissions de CO₂

associées par le produit :

$$Em(CO_2) = BA \times BD \times BE \times EF(CO_2),$$

où:

Em(CO₂) : Emissions de CO₂

BD : Biomass density = densité de biomasse

BE : Burning Efficiency = efficacité de combustion

EF : Emission Factor(CO₂) = facteur d'émission de CO₂

Le produit BA x BD x BE représente la quantité de biomasse brûlée pour cette classe de végétation; celle-ci, multipliée par le facteur d'émission de ce type de végétation, donne les émissions de CO₂ correspondantes. Nous avons ainsi déterminé pour chacune des classes de végétation, la quantité totale de biomasse brûlée, et les émissions totales de CO₂ en 2000. Les valeurs obtenues sont présentées dans la table 6.

Vegetation Type	Code	Global burned biomass per vegetation type (ktonnes)	CO2 emissions by vegetation type (Tg)
Tree Cover, broadleaved, evergreen	1	315959	499
Tree Cover, broadleaved, deciduous, closed	2	997979	1566
Tree Cover, broadleaved, deciduous, open	3	1153985	1861
Tree Cover, needle-leaved, evergreen	4	456005	715
Tree Cover, needle-leaved, deciduous	5	144849	227
Tree Cover, mixed leaf type	6	29654	46
Tree Cover, regularly flooded, fresh water	7	0	0
Tree Cover, regularly flooded, saline water	8	0	0
Mosaic: Tree Cover / Other natural vegetation	9	466157	742
Shrub Cover, closed-open, evergreen	11	7529	12
Shrub Cover, closed-open, deciduous	12	1238036	1997
Herbaceous Cover, closed-open	13	605256	976
Sparse herbaceous or sparse shrub cover	14	99847	156
Regularly flooded shrub and/or herbaceous cover	15	0	0
Cultivated and managed areas	16	108512	164
Mosaic: Cropland / Tree Cover / Other natural v	17	17748	28
Mosaic: Cropland / Shrub and/or grass cover	18	148806	235
Totals:		5790322	9224
		ktonnes	Teragrammes

Table 6 : Biomasse brûlée et émissions de CO₂ par type de végétation en 2000 (dérivé de GBA2000 et GLC2000)

Calcul des émissions de CO₂ de 1997 à 2005.

Pour le calcul des émissions sur la période 1997-2005, nous utilisons les pixels de feux ATSR. Un pixel de feu ne permet pas d'estimer directement la biomasse brûlée, et donc les émissions de CO₂ associées. Nous allons donc utiliser les résultats précédents, afin d'attribuer des émissions de CO₂ aux pixels de feux

observés.

On calcule dans un premier temps le nombre total de feux ATSR en 2000, observés dans chacune des 14 classes de végétation GLC2000, en superposant la carte de végétation avec la carte de pixels de feux à $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ (la carte GLC ayant été auparavant dérivée à la résolution $0.5^\circ \times 0.5^\circ$). Pour chaque classe de végétation, on a donc un nombre de pixels de feux en 2000, et une quantité totale de CO₂ émis dérivée de GBA2000 (voir paragraphe précédent). On en déduit un facteur F_n , qui représente une quantité de CO₂ par pixel de feu, pour chaque type de végétation n ($n=1,14$).

A partir des cartes mensuelles de pixels de feux à $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ entre 1997 et 2005, on calcule alors le nombre de feux par cellule ($0.5^\circ \times 0.5^\circ$) pour chaque mois et chaque type de végétation, en fonction des pourcentages des 14 types de végétation dans chaque cellule de 0.5° . Les émissions de CO₂ associées à chaque type de végétation sont alors obtenues en multipliant le nombre de pixels de feux dans ce type de végétation par le facteur F_n correspondant, dans chaque cellule de $0.5 \times 0.5^\circ$. Les cartes d'émissions de CO₂ totales sont enfin obtenues en sommant les émissions de CO₂ liées aux différentes classes de végétation.

Afin de calculer les autres espèces chimiques émises (paragraphe suivant), on calcule également d'une part les émissions liées aux feux de forêt, d'autre part les émissions liées aux feux de savanes, et également les émissions liées aux feux dans les zones de cultures (voir le tableau des classes GLC avec l'attribution des 14 classes à la forêt, à la savane, et aux cultures).

Calcul des émissions des autres espèces

Les émissions des autres espèces chimiques sont calculées à partir des émissions de CO₂ (liées aux forêts, aux savanes, et aux cultures), en utilisant une version réactualisée des rapports d'émissions compilés par Andreae et Merlet [2001]. Pour BC et OC, nous utiliserons les facteurs d'émission de Liousse et al., 2004 et Michel et al. [2005]. Ces rapports d'émissions sont disponibles pour les 4 types de végétation suivantes : forêts tropicales/non tropicales, savanes, et cultures. La table 7 donne, pour chaque classe de végétation brûlée, le rapport émission(espece)/émission(CO₂) pour le CO et le NO_x, et le facteur d'émission en grammes émis par kg de matière sèche brûlée pour BC et OC.

	CO (mol/mol)	NO _x (mol/mol)	BC (g/kgdm)	OC (g/kgdm)
Feux de forêt : forêts boréales et tempérées	0.107	$2.80 \cdot 10^{-3}$	0.6	6
Feux de forêts tropicales	0.103	$1.48 \cdot 10^{-3}$	0.7	6.4
Feux de savanes	0.063	$3.55 \cdot 10^{-3}$	0.62	4
Zones cultivées	0.095	$2.42 \cdot 10^{-3}$	0.725	2.1

Table 7 : rapports d'émission réactualisés par rapport à CO₂ pour le CO, le NO_x et facteurs d'émission pour le BC et l'OC.

II.3.3 – Inventaire historique des émissions de feux de 1900 à 2000

Données utilisées

Pour estimer les émissions de CO₂ depuis 1900, nous utilisons la méthode dite « surfaces brûlées » (Lioussé et al., 2004, Michel et al., 2005) : les données historiques de surfaces brûlées sont issues de Mouillot et Field [2005]. Ces données ont une résolution de 1°x1° : pour chaque décennie (1900-1910, 1910-1920, etc..., 1990-2000), elles donnent le pourcentage de surface brûlée par an, dans chaque cellule de 1°, pour les écosystèmes de forêt et de savane. Ces données ne prennent pas en compte les statistiques sur les feux agricoles. Pour notre étude, nous avons converti ces surfaces brûlées en km², pour chaque cellule. On utilise toujours la même carte de végétation GLC2000 dérivée de l'instrument SPOT/VEGETATION décrites dans le paragraphe II.3.2.

Calcul des émissions de CO₂ annuelles pour chaque décennie

Pour cette première étape, on superpose les données de surfaces brûlées historiques, et la carte de végétation GLC : dans chaque cellule de 1°x1°, on calcule une surface brûlée pour chaque type de végétation présent, en appliquant les pourcentages de chacune des classes de végétation présentes dans la cellule. On en déduit alors pour chaque classe de végétation, les émissions de CO₂ associées par le produit :

$$Em(CO_2) = BA \times BD \times BE \times EF(CO_2),$$

où

Em(CO₂) : Emissions de CO₂

BD : Biomass Density = densité de biomasse

BE : Burning Efficiency = efficacité de combustion

EF : Emission Factor(CO₂) = facteur d'émission de CO₂

Le produit BA x BD x BE représente la biomasse brûlée pour cette classe de végétation; celle-ci, multipliée par le facteur d'émission de ce type de végétation, donne les émissions de CO₂ correspondantes.

Comme nous l'avons montré ci-dessus, la mise en correspondance entre la végétation et la carte des surfaces brûlées, disponible seulement à 1°x1°, conduit à une attribution approximative des surfaces brûlées aux différents types de végétation. Dans notre cas, il s'avère que les émissions liées aux feux de forêts sont trop élevées par rapport aux émissions liées aux feux de savane. En outre, la surface brûlée totale pour la dernière décennie (1990-2000) est de 5.65 Millions de km², tandis que d'après les données GBA2000, la surface brûlée totale en 2000 est de 3.6 Millions de km². Ces 2 raisons expliquent l'obtention d'émissions historiques trop élevées, surtout pour les feux de forêts.

Afin de rendre les émissions historiques de la dernière décennie (1990-2000) cohérentes avec les émissions de l'inventaire récent 1997-2005, on applique un facteur correctif d'une part aux émissions de feux de forêts 1990-2000, d'autre part aux émissions de feux de savane 1990-2000, de manière à avoir des émissions

totales pour la décennie 1990-2000 égales aux émissions totales moyennes sur la période 1997-2005 (pour la forêt : 4284 Tg-CO₂ et la savane : 5050 Tg-CO₂), calculées précédemment (paragraphe II.3.2). On applique ces mêmes facteurs à toutes les décennies, pour la forêt et pour la savane séparément.

Calcul des émissions des autres espèces

De la même manière que pour l'inventaire 1997-2005, les émissions annuelles des autres espèces sont calculées à partir des émissions annuelles de CO₂, en appliquant les rapports d'émissions de Andreae et Merlet [2001] indiqués dans la table 7. Pour BC et OC, nous utiliserons les facteurs d'émission de Michel et al. [2005].

Estimation d'émissions de CO₂ saisonnières

Nous avons ainsi obtenu des émissions historiques annuelles pour chaque décennie, mais les données d'entrée ne nous permettent pas de connaître la variation mensuelle des émissions. Les observations au cours de la dernière décennie ont montré une variation saisonnière mensuelle importante des émissions dues aux feux, qu'il est important de prendre en compte pour obtenir des simulations correctes avec des modèles. Pour créer des émissions saisonnières à partir des émissions annuelles, nous avons supposé que la variation saisonnière moyenne au cours de la période 1997-2005 était la même que celle observée pendant les décennies précédentes.

Pour chaque espèce chimique, nous avons calculé la variation saisonnière des émissions de la manière suivante : pour janvier par exemple, nous calculons une distribution moyenne des émissions de janvier (de 1997 à 2005), et une distribution moyenne des émissions annuelles sur la période 1997-2005. On obtient la variation mensuelle pour janvier, en divisant pour chaque point du globe les émissions moyennes de janvier par les émissions moyennes annuelles sur la période 1997-2005. On obtient ainsi 12 cartes qui représentent la variation saisonnière relative des émissions.

Il suffit ensuite, pour chaque décennie, de multiplier la carte annuelle des émissions 'historiques' par la variation saisonnière calculée pour chacun des 12 mois, pour obtenir une carte d'émissions par mois. On obtient ainsi des émissions historiques avec une variation saisonnière, pour chaque décennie de 1900 à 2000.

II.4 Optimisation des émissions de CO par modélisation inverse

Depuis 2000, des observations de la distribution de CO sont effectuées par l'instrument MOPITT à bord de la plateforme spatiale Terra [www.eos.ucar.edu/mopitt]. Dans le cadre d'une coopération avec Gabrielle Pétron, du laboratoire ESRL de la NOAA (NOAA Earth System Research Laboratory), nous avons collaboré à la quantification des émissions de CO par modélisation inverse

sur la période pour laquelle des observations de MOPITT sont disponibles. La technique utilisée est une méthode bayésienne permettant d'optimiser les moyennes mensuelles des émissions de CO sur la période 2000 - 2003 : cette méthode est décrite dans Pétron et al. [2004]. Les résultats que nous avons obtenus seront discutés dans le paragraphe suivant.

III. Résultats

Nous présentons dans cette partie les émissions calculées à partir des algorithmes décrits dans les précédents chapitres. Nous donnerons dans chaque cas les émissions totales calculées ainsi que la distribution globale des émissions des espèces que nous considérons. Nous avons de plus évalué les émissions sur de grandes zones géographiques : afin de pouvoir comparer avec les résultats de la modélisation inverse, nous avons utilisé ces mêmes régions, qui sont indiquées dans la figure 4.

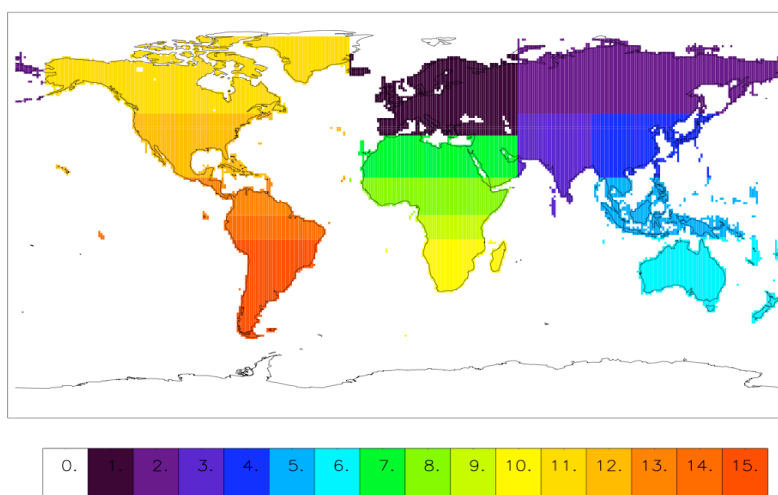


Figure 4 : Régions utilisées pour la modélisation inverse de CO, et pour le calcul des totaux régionaux dans les paragraphes suivants.

III.1 Emissions anthropiques de 1900 à 1997

III.1.1 Emissions anthropiques de 1900 à 1997 calculées par notre algorithme

Les figures 5 et 6 présentent les distributions des émissions de BC (fig. 5) et de CO (fig. 6) pour 4 périodes, 1900, 1950, 1970 et 1997, et la figure 7 représente l'évolution des émissions totales de CO sur certaines régions indiquées sur la figure 3. De grandes différences sont observées entre les émissions de BC des pays industrialisés d'Europe centrale et des pays en voie de développement (ex. l'Inde et la Chine) pour les années 1900, 1950 et 1970. Ce résultat peut être expliqué par l'origine des combustions différentes aux latitudes nord et aux tropiques : en Europe Centrale, ce sont les sources industrielles non-contrôlées brûlant charbon et diesel qui prédominent (de puissants émetteurs de BC) alors que les émissions par les feux domestiques sont prédominantes dans les pays en voie de développement à cette

époque (avec des émissions relativement moins importantes en BC). Ces différences sont moins marquées pour les émissions de CO pour la même période (Figure 6). Ce résultat peut être expliqué par le choix des facteurs d'émission, évolutifs pour BC de 1900 à 1970 et constants pour CO. Entre les années 1970 et 1997, les émissions de CO tout comme celles de BC diminuent en Europe si bien que les émissions de BC en 1997 sont moins élevées qu'en 1900. Cette évolution s'explique par les réductions d'émission imposées dans les nouvelles normes technologiques. En Europe, la décroissance des densités d'émission de CO pendant la période 1970-1997 est quelque peu inférieure à celle du BC.

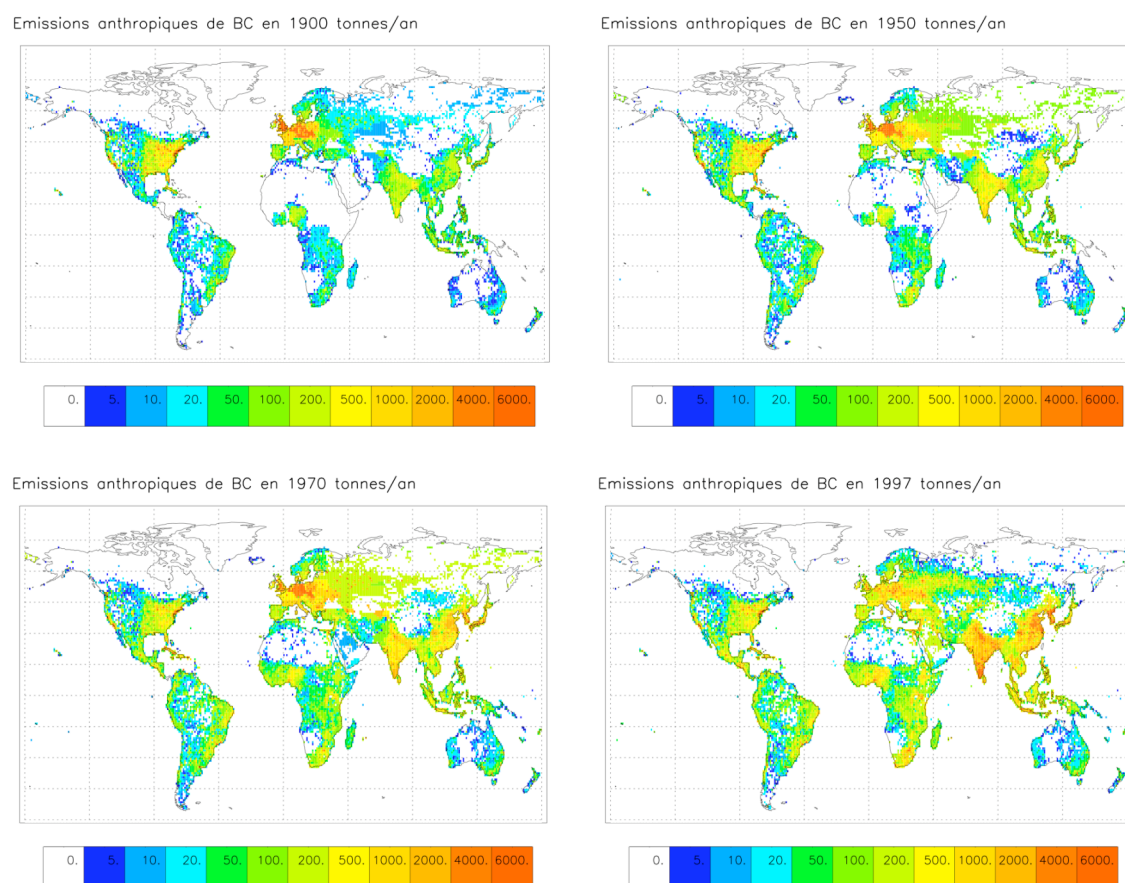
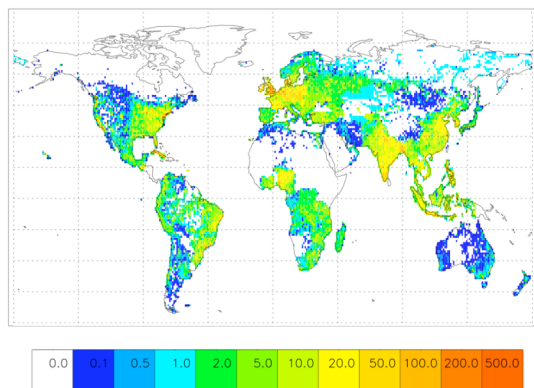


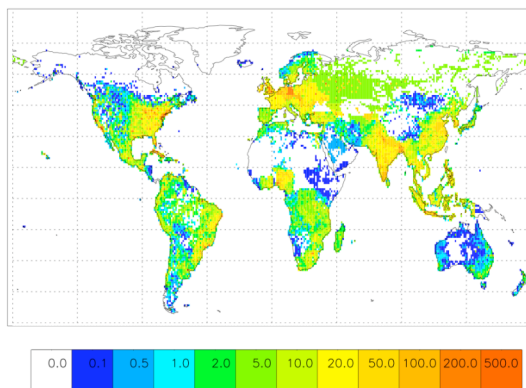
Figure 5 : Emissions anthropiques de BC en 1900, 1950, 1970 et 1997 : les émissions sont données en tonnes/an.

Dans les pays en voie de développement, les densités d'émission du BC et du CO (Figures 5, 6 et 7) augmentent de 1900 à 1997 avec une évolution plus marquée entre 1970 et 1997. En 1997 les émissions de BC sont plus élevées en Inde et en Chine qu'en Europe Centrale et en Amérique du Nord. Par contre, les émissions de CO sont similaires entre les pays industrialisés et les pays asiatiques. Dans notre inventaire, les émissions de CO des pays industrialisés ne diminuent pas autant que les émissions de BC. Cette différence peut être à nouveau expliquée par le fait que les facteurs d'émissions choisis pour BC de 1970 à 1997 tiennent compte de l'évolution technologique alors qu'un facteur d'émission constant a été considéré pour ces premières estimations historiques des émissions des précurseurs d'ozone.

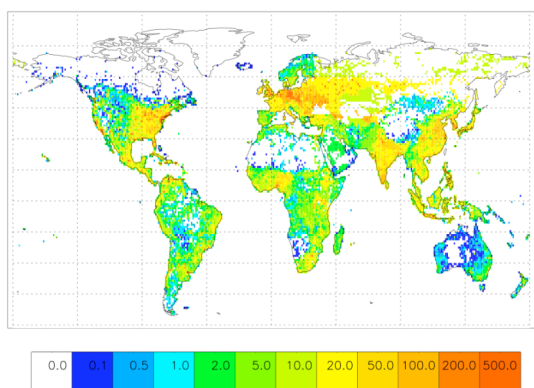
Emissions anthropiques de CO en 1900 tonnes/an



Emissions anthropiques de CO en 1950 tonnes/an



Emissions anthropiques de CO en 1970 tonnes/an



Emissions anthropiques de CO en 1997 tonnes/an

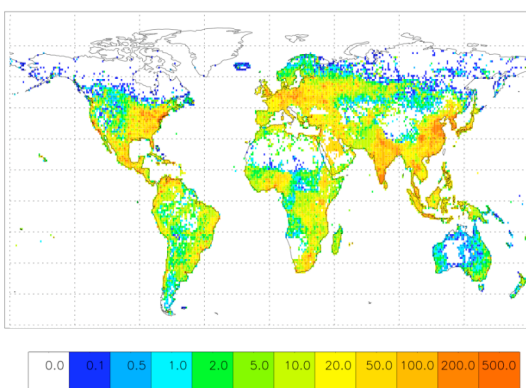


Figure 6 : Emissions anthropiques de CO en 1900, 1950, 1970 et 1997 : les émissions sont données en 1000 tonnes/an.

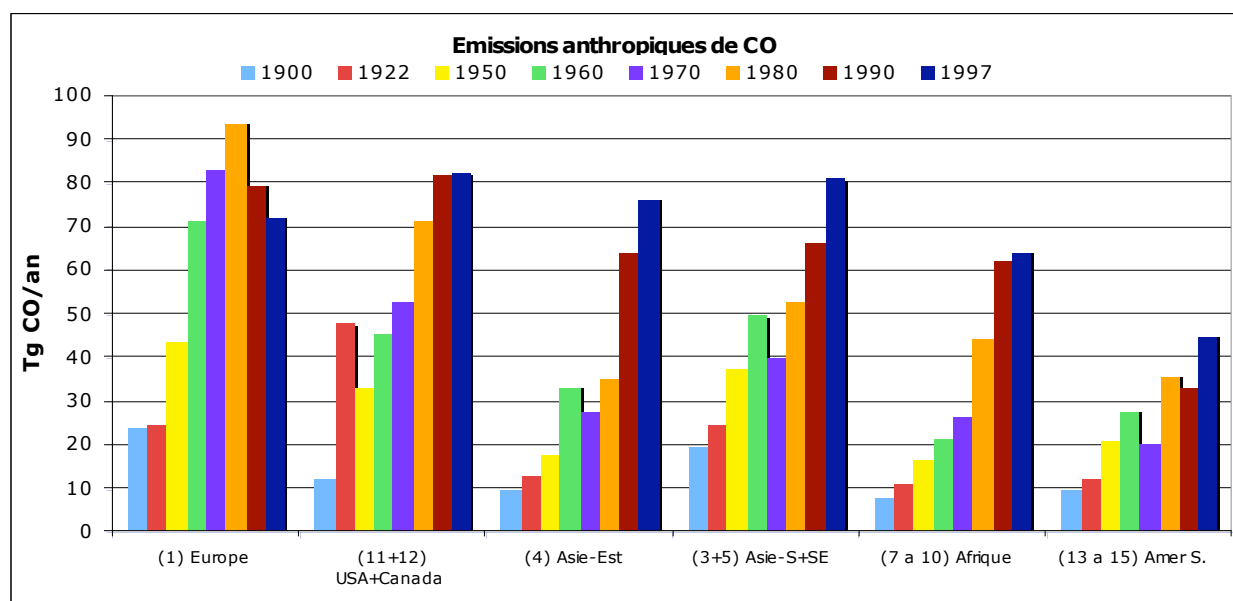


Figure 7 : Evolution de l'émission totale de CO pour plusieurs grandes régions de 1900 à 1997.

III.1.2 Comparaisons avec d'autres inventaires d'émissions anthropiques

Le tableau 8 présente les émissions totales pour CO₂, CO, NO_x, BC et OC pour une sélection d'années. Le tableau indique également les valeurs de la littérature disponibles pour CO₂, CO et NO_x. Nous remarquons ainsi que les émissions totales obtenues par notre étude sont proches de celles de van Aardenne [2001] et d'EDGAR-1990 [Olivier et al., 1999], qui ne considèrent que les composés gazeux. L'écart le plus important entre nos valeurs et les valeurs citées apparaît pour le CO en 1990, notre estimation (403Tg) se situant entre les données de van Aardenne [2001] (349.7Tg) et d'EDGAR [1990] (478.4Tg). Les émissions calculées par notre algorithme pour SO₂ sont, pour toutes les années, légèrement inférieures à celles proposées par HYDE.

	CO ₂ [Tg CO ₂ /an]		CO (Tg CO/an)		NO _x [Tg NO ₂ /an]	
	GICC	HYDE [2001] (EDGAR [1990])	GICC	HYDE [2001] [EDGAR [1990]]	GICC	HYDE [2001] (EDGAR [1990])
1900	2899	4400	88.6	95.7	8.4	6.6
1922	4148	6600	103.2	126.7	13.5	10.8
1950	8108	9900	147.1	201.1	19.1	21.4
1960	11913	14300	198.4	291.2	31.6	34.2
1970	16110	20166	269	357.5	48.4	49.3
1980	20673	24570	360.9	423	68.3	67.4
1990	28313	27133 (23017)	391.8	489.5 (478.4)	89.1	78.9 (81.9)

Table 8 : Emissions de CO₂, CO et NO_x calculées avec notre algorithme et proposées par les inventaires HYDE (de 1900 à 1990) (VanAardenne et al., 2001) et EDGAR (1990). Les valeurs de l'inventaire EDGAR sont données en italique.

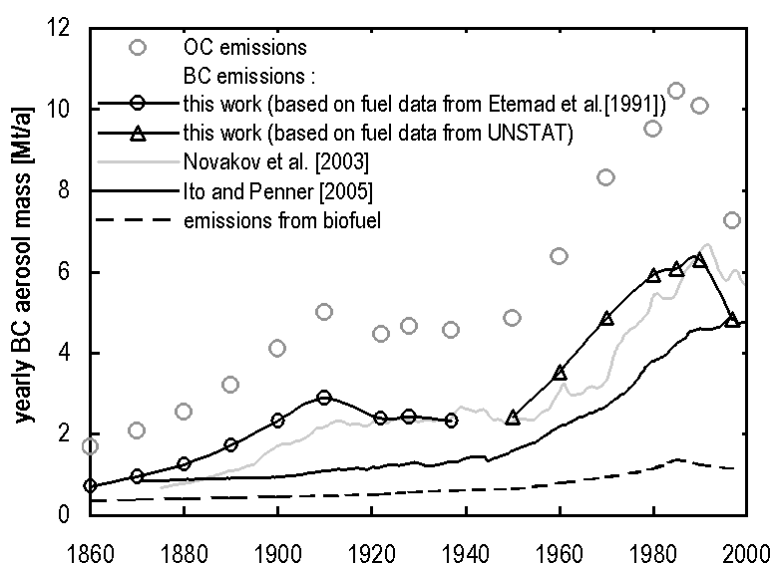


Figure 8 : Comparaison des émissions de BC pour la période 1880-1997 avec d'autres inventaires : inventaire proposé par Ito et Penner (2005), et par Novakov et al., [2003].

Il est à noter que des différences régionales apparaissent entre l'inventaire GICC et HYDE particulièrement en Asie. Une analyse des distributions montre que ces différences proviennent de l'estimation des émissions domestiques : un facteur d'incertitude important existe dans l'estimation des consommations de bois en Asie.

La comparaison des données historiques de BC de 1900 à 1997 obtenues dans notre étude (données sur les fuels de Etemad et données UNSTAT incluant fuels fossiles et feux domestiques) et les études précédentes (Novakov et al. et Ito and Penner pour les fuels fossiles uniquement) est présentée sur la figure 8. De manière générale, notre estimation se situe entre les résultats des deux études citées. Les valeurs présentées dans la figure 8 sont détaillées dans la table 9 ci-dessous.

year	Total GICC		From biofuel		Total of other studies		
	BC [Mt]	OC [Mt]	BC [%]	OC [%]	BC [Mt]	BC [Mt]	BC [Mt]
1860	0.72	1.70	49	58	(a)	(b)	(c)
1880	1.26	2.54	32	44	0.9	0.8	
1900	2.34	4.11	19	31	1.0	1.7	
1922	2.39	4.47	21	32	1.2	2.4	
1937	2.33	4.56	26	37	1.3	2.4	
1950	2.42	4.86	27	40	1.6	2.3	
1970	4.86	8.32	19	34	3.0	3.3	
1985	6.08	10.45	22	38	4.2	5.5	
1997	4.83	7.26	24	39	4.8	6.0	8.0

Table 9 : Emissions totales de BC et OC de 1860 à 1997 en utilisant les données de Etemad et al. [1991] pour la période 1860-1937 les données de l'UNSTAT pour la période 1950-1997. Ces valeurs sont comparées avec les valeurs données par les inventaires suivants : (a) Ito and Penner (2005) ; (b) Novakov et al. (2003) (fossil fuel only) ; (c) Bond et al. (2004)

La figure 9 représente l'origine des émissions de BC en 1997, avec la contribution de différents secteurs pour différentes régions du monde. Sur cette figure est aussi représentée une comparaison avec l'inventaire de Bond et al. [2004]. On peut ainsi constater des différences significatives entre les deux inventaires, en particulier sur la contribution des secteurs « industriel » et « combiné » (trafic).

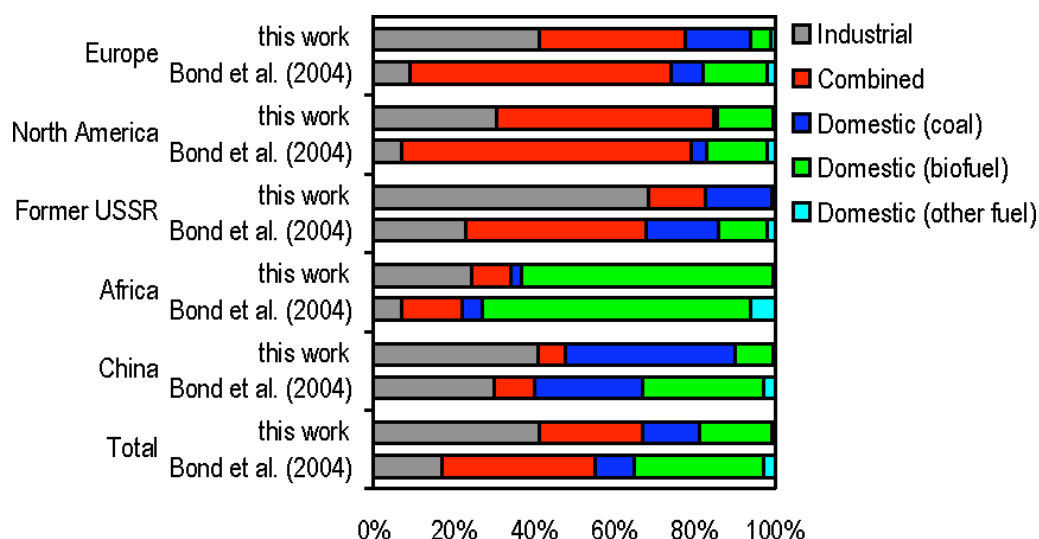


Figure 9 : Emissions de carbone suie pour l'année 1997. Les distributions sont données par secteur et par régions et sont comparées aux valeurs obtenues par Bond et al. [2004].

III.2 Emissions dues à la combustion de la biomasse : Résultats

III.2.1 – Emissions de l'inventaire GICC sur la période 1997-2005

Dans ce paragraphe, nous présentons l'inventaire des émissions liées aux feux pour la période 1997-2005, résultant de la méthode décrite au chapitre précédent. Nous rappelons que cet inventaire est issu de la combinaison des données GBA2000 et ATSR.

Emissions sur la période 1997-2005

La figure 10 montre les émissions annuelles totales liées aux feux de forêts, aux feux de savanes, et aux feux dans les cultures. Les feux dans les zones de cultures représentent une part assez faible des émissions totales : en moyenne 321 Tg-CO₂ environ, soit un peu plus de 3%. Les émissions liées aux feux de forêts sont en moyenne de 4530 Tg-CO₂ (soit 48%), tandis que les émissions liées aux feux de savanes sont en moyenne de 4966 Tg-CO₂ (soit 54%). Cette figure montre également que la variabilité interannuelle des émissions est essentiellement due à la variabilité interannuelle très forte des émissions liées aux feux de forêts.

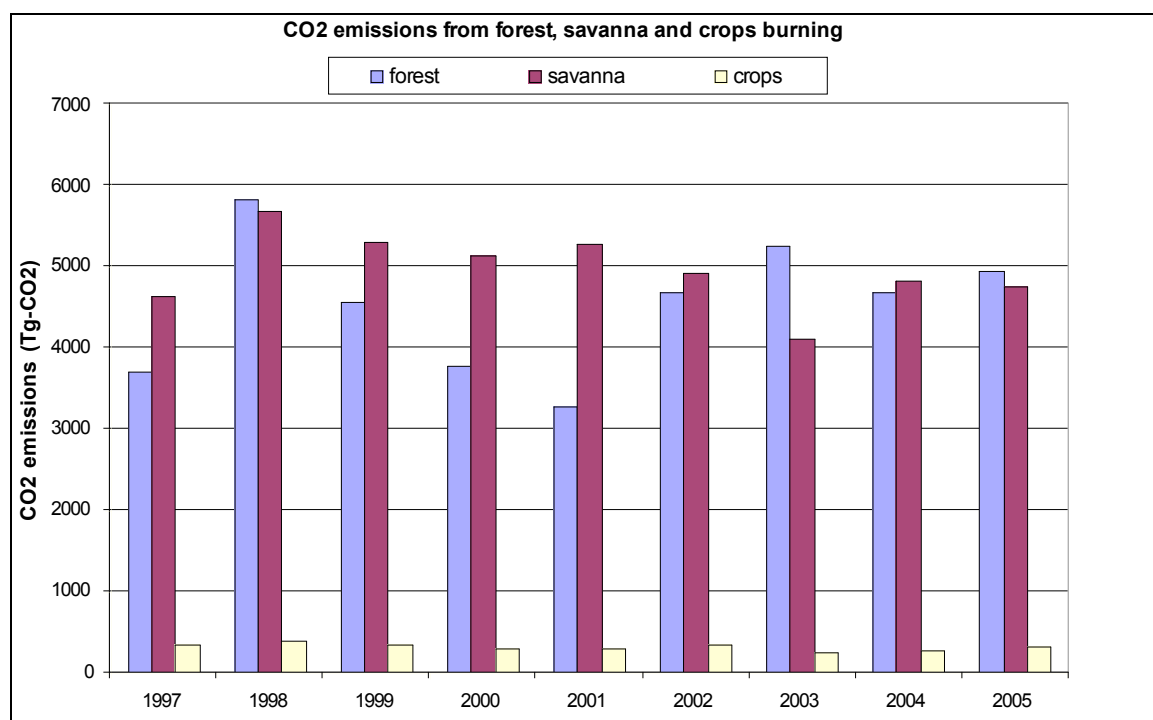


Figure 10: Emissions de CO₂ liées aux feux de forêts, aux feux de savanes, ainsi qu'aux feux de 'cultures', pour chaque année de 1997 à 2005.

Les distributions des émissions de CO₂ pour les années 1997, 1998 et 2000, ainsi qu'une distribution moyenne sur la période 1997-2002 sont données dans la figure 11.

La carte annuelle moyenne montre la distribution spatiale moyenne des émissions pendant la période 1997-2002 : les émissions sont prépondérantes en Afrique et en Amérique du Sud. En Afrique, elles sont surtout localisées dans les zones de savanes ou de savanes arborées et de buissons, situées dans les régions sub-tropicales. En Amérique du Sud, les émissions sont localisées dans les zones Sud de la forêt amazonienne au centre du Brésil et en Bolivie, et dans les zones de savane et buissons au Sud de la forêt amazonienne (paysage de « Cerrado » = paysages de savane arborée, steppe, arbustes). Dans ces paysages de savanes on trouve également beaucoup de zones de cultures. Dans les zones Sud de la forêt amazonienne, les fortes émissions observées résultent des feux de déforestation pour l'expansion de l'agriculture.

On remarque une forte variabilité des émissions entre les différentes années considérées, avec des événements remarquables certaines années : par exemple, en 1998, on peut voir des émissions très fortes dans l'Est de la Sibérie, ainsi qu'au Canada. Ces émissions sont liées à des incendies particulièrement intenses pendant l'été 1998, entre les mois de mai et septembre, comme nous le verrons par la suite (variabilité saisonnière). En 1997, on observe des émissions plus fortes que la normale en Indonésie. L'année 2000, en revanche, est une année sans événement particulier, et plutôt 'faible' en terme d'émissions, comparée à la moyenne.

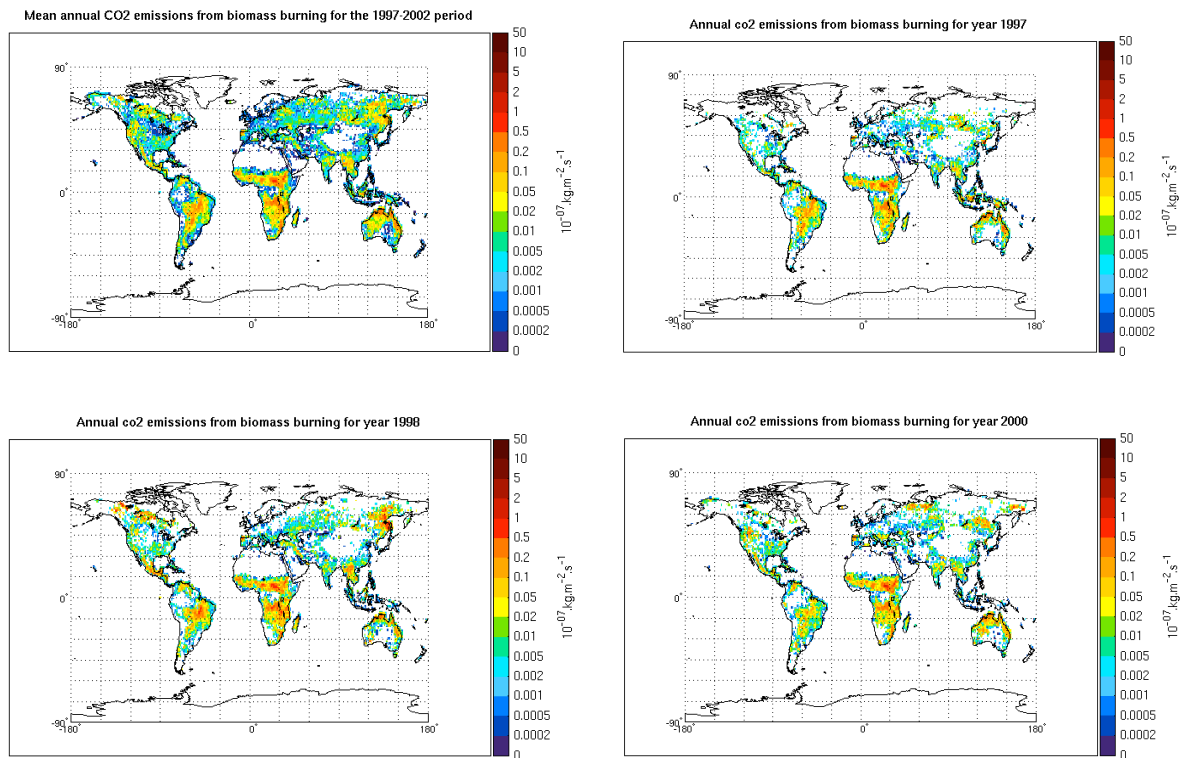


Figure 11. Distribution des émissions annuelles de CO₂ de l'inventaire GICC, sur la période 1997-2002, puis en 1997, 1998, et 2000.

Variation saisonnière des émissions de CO₂

Les émissions mensuelles globales de CO₂ de 1997 à 2003 sont représentées ci-dessous (figure 12). On observe une variation saisonnière des émissions très nette, avec deux pics d'émissions : un premier maximum pendant les mois de décembre-janvier-février, lié aux feux en Afrique de l'Ouest ; un deuxième maximum pendant les mois d'été (août-septembre) lié aux feux en Afrique du Sud, Amérique du Sud, Australie, et dans les régions boréales (Sibérie et Canada).

On observe une grande variabilité interannuelle, avec notamment des émissions très élevées pour certains mois de certaines années :

- l'année 1998 montre des émissions supérieures à la moyenne entre mai et septembre environ. Ces pics sont liés à des incendies particulièrement importants observés pendant l'été 1998 en Sibérie et au Canada, et liés à une intense sécheresse, corrélée vraisemblablement au phénomène El-Nino de 1997-1998.
- l'année 2000 a connu des feux importants en Afrique de l'Ouest, expliquant de fortes émissions pendant les mois d'hiver boréal (décembre-janvier-février, avec un maximum en janvier).
- l'année 2003 a connu également des feux intenses en Sibérie, de mai à juillet environ

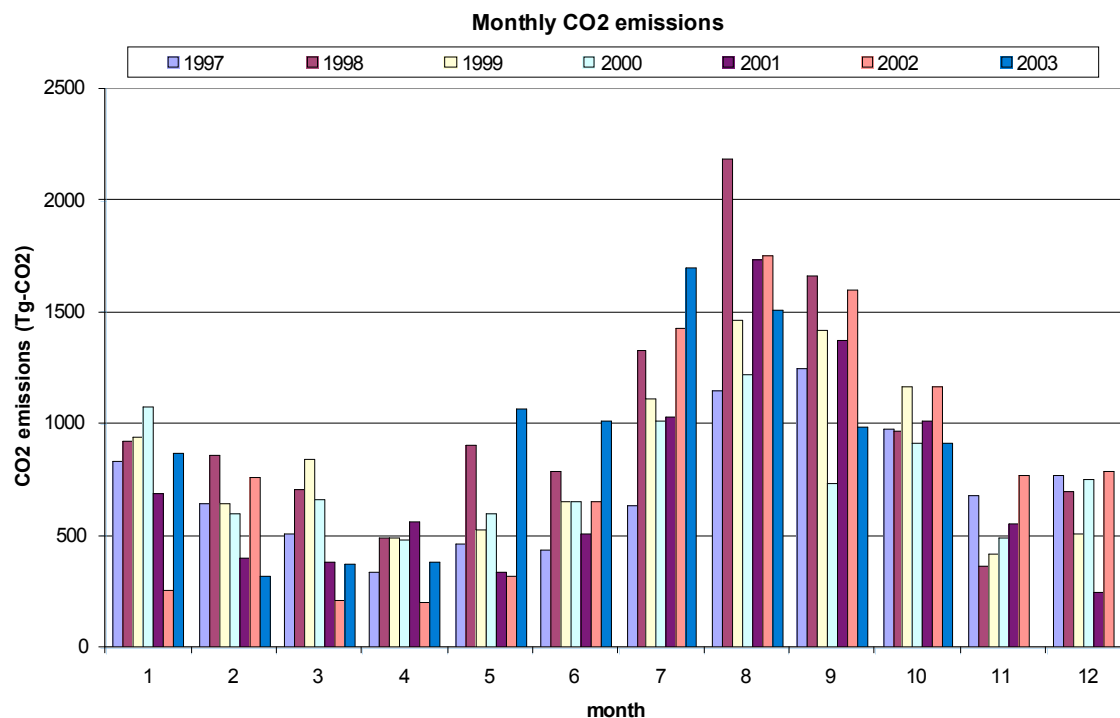
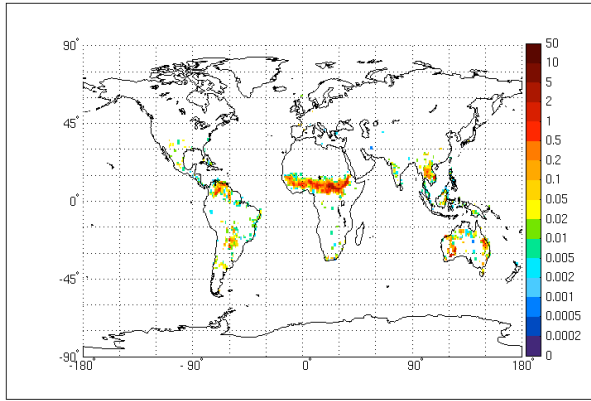


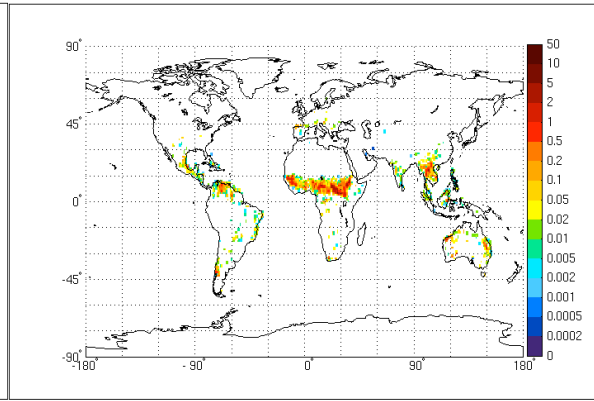
Figure 12 : Emissions de CO2 mensuelles, de 1997 à 2003.

A titre d'exemple, nous présentons dans la figure 13 les cartes d'émissions mensuelles obtenues pour l'année 1998. Ces cartes mensuelles montrent la distribution spatiale et temporelle des émissions. La période décembre-janvier-février est dominée par les feux en Afrique de l'Ouest, tandis que la période de juin à octobre est, elle, dominée par les feux dans les zones tropicales de l'hémisphère Sud (Afrique de Sud, Sud de l'Amérique du Sud, et Australie) ; ces périodes de feux correspondent aux saisons sèches dans chacun des hémisphères. Cette dernière période, notamment de juin à août est également marquée par les feux dans les zones boréales (Sibérie et Canada/Alaska), la période estivale étant la plus chaude et sèche dans ces régions. Les cartes d'émissions de mai à septembre reflètent bien les feux intenses qui ont eu lieu en 1998 dans l'Est de la Sibérie, et leur évolution entre mai et septembre. Enfin, en février-mars, on observe un pic d'émissions en Asie du Sud-Est.

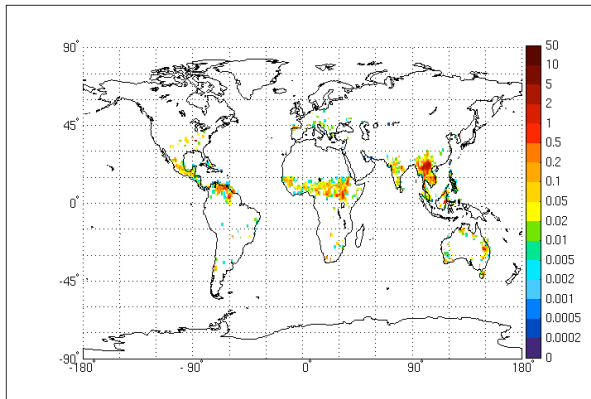
GICC CO2 emission flux from biomass burning, year 1998, month 1



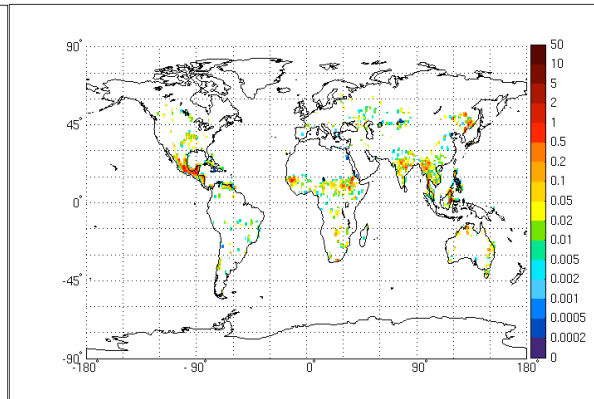
GICC CO2 emission flux from biomass burning, year 1998, month 2



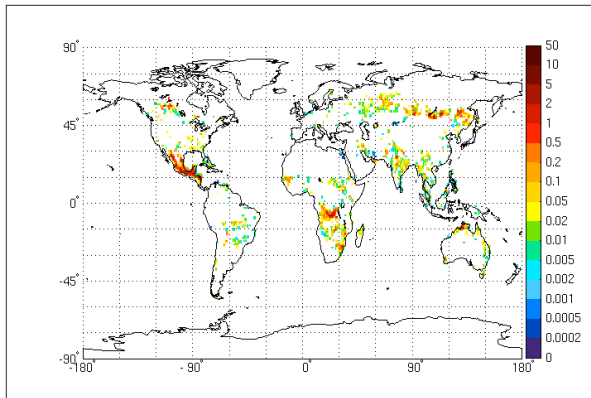
GICC CO2 emission flux from biomass burning, year 1998, month 3



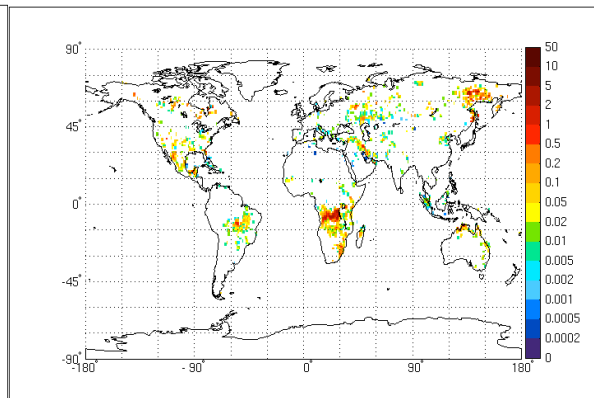
GICC CO2 emission flux from biomass burning, year 1998, month 4



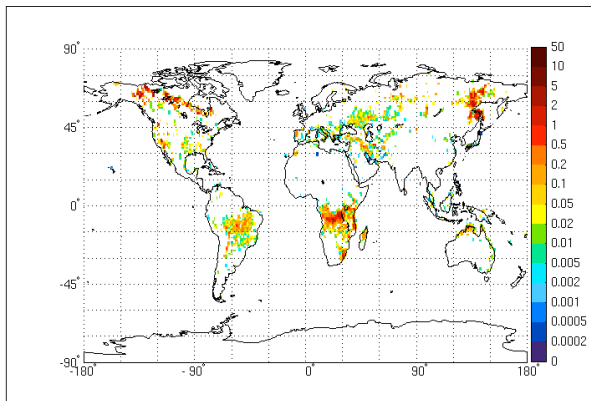
GICC CO2 emission flux from biomass burning, year 1998, month 5



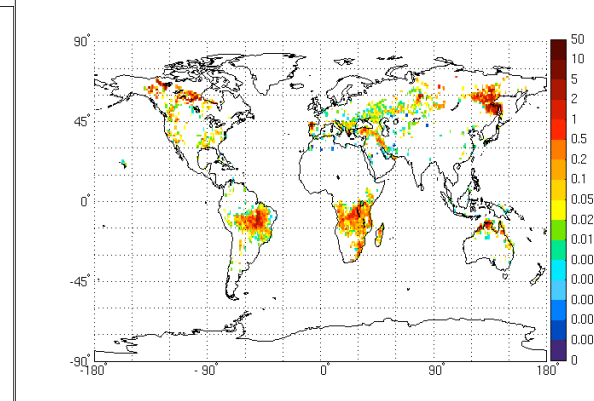
GICC CO2 emission flux from biomass burning, year 1998, month 6



GICC CO2 emission flux from biomass burning, year 1998, month 7



GICC CO2 emission flux from biomass burning, year 1998, month 8



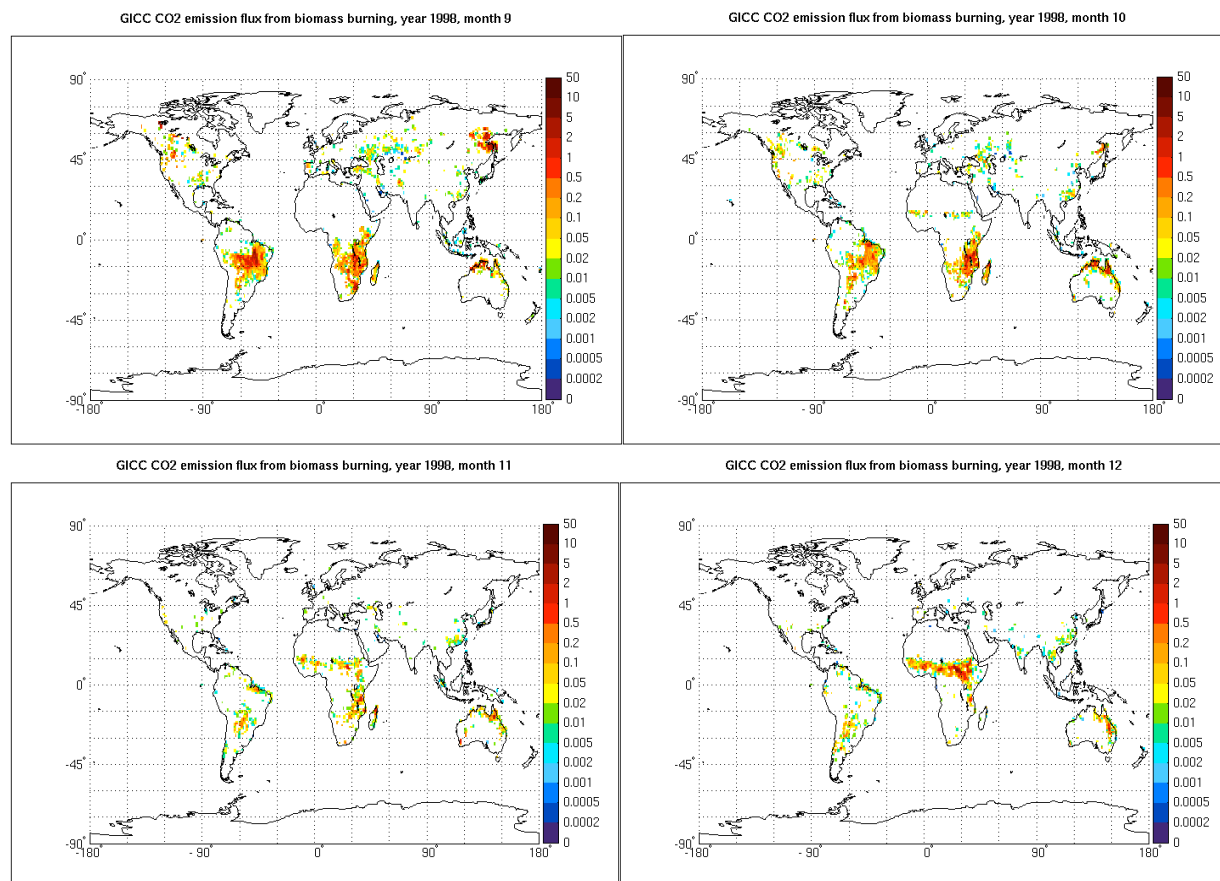


Figure 13. Cartes d'émissions mensuelles de CO2 de l'inventaire GICC, pour l'année 1998.

Répartition des émissions par type de végétation

La figure 14 montre la répartition des émissions pour chacune des 14 classes de végétation GLC2000 considérées (14 classes ; voir figure 3). On voit que les types de végétation qui expliquent la majorité des émissions sont les classes :

- classe 2 : forêts à feuilles caduques
- classe 3 : savanes arborées, ou paysages ouverts avec des arbres à feuilles caduques parsemés
- classe 9 : brousse ou buissons, à feuilles caduques.

Les 2 dernières classes sont très présentes en Afrique (de l'Ouest, et du Sud), ainsi qu'en Australie ; les feux liés à ces 2 types de végétation sont observés majoritairement dans ces régions.

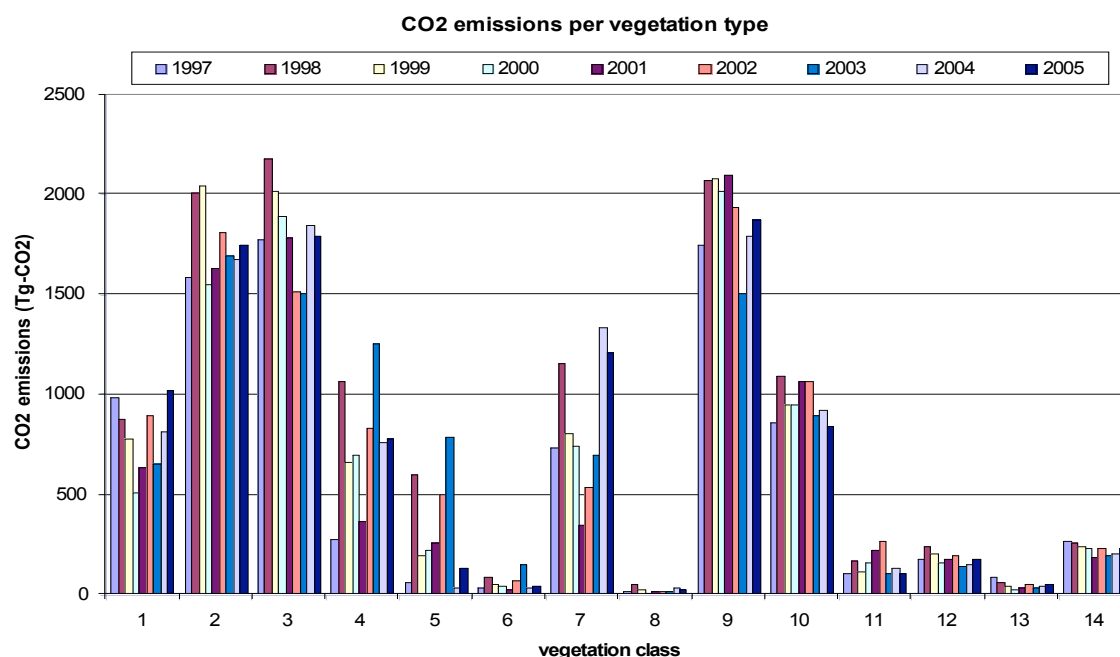


Figure 14: Emissions de CO₂ (Tg-CO₂), liées à chacune des 14 classes de végétation GLC2000, pour chaque année de 1997 à 2005

III.2.2 Comparaisons avec d'autres inventaires

Emissions totales

La figure 15 montre les émissions totales annuelles de notre inventaire entre 1997 et 2003 ; celles-ci sont comparées aux émissions annuelles de l'inventaire GFED [Van der Werf et al., 2006], et aux émissions obtenues par modélisation inverse des observations de CO par l'instrument satellital MOPITT embarqué sur la plateforme TERRA lancée en 2000 [Pétron et al., 2004]. L'inventaire GICC présente des émissions de CO₂ supérieures à l'inventaire GFED tous les ans sauf en 1997, où l'inventaire GFED est supérieur (10760 Tg-CO₂ contre 8720 Tg-CO₂ pour notre inventaire). Cette différence vient essentiellement de l'Indonésie, où des feux de tourbes très importants ont été observés en 1997. Or l'inventaire GFED prend en compte partiellement les feux de tourbe, tandis que notre inventaire ne les prend pas en compte (les données satellitaires n'ont pas été utilisées de façon à pouvoir détecter les feux de tourbe, ces feux se propageant sous terre, sans flamme visible). Sur l'ensemble de la période 1997-2005, la moyenne des émissions de l'inventaire GICC est de 9817 Tg-CO₂, tandis que pour GFED, elle est de 8903 Tg-CO₂, soit une moyenne 910 Tg-CO₂ environ en plus par an.

Notre inventaire présente en revanche des émissions inférieures aux émissions estimées par modélisation inverse du CO mesuré par MOPITT. Ceci pourrait être dû au fait que les feux de tourbe ne sont pas pris en compte de façon suffisante dans les inventaires GICC et GFED, alors qu'elles sont prises en compte entièrement dans les inversions. Par exemple, en 2003, des feux de tourbe importants se sont produits dans la région de Moscou, ce qui pourrait expliquer la différence maximale entre les

émissions données par les inventaires et par l'inverse. Il faut cependant noter que les incertitudes sur les émissions obtenues par modélisation inverse restent elles aussi élevées, par exemple du fait de la difficulté à quantifier de façon précise la production chimique de CO par oxydation des hydrocarbures, notamment biogéniques.

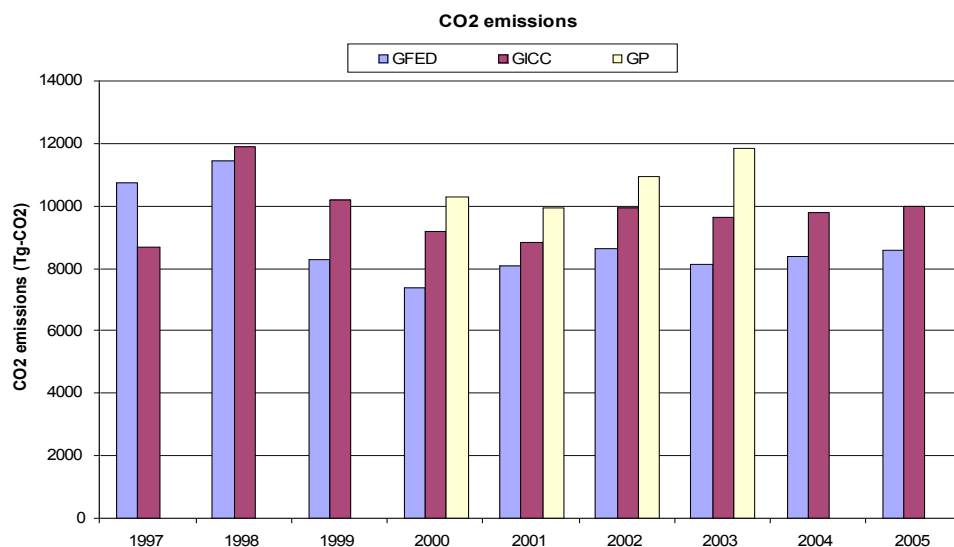


Figure 15 : Emissions totales de CO₂ dues à la combustion de la biomasse entre 1997 et 2003, et comparaison avec l'inventaire GFED et les résultats de modélisation inverse obtenus par Pétron et al. (2004). L'inventaire GFED est en mauve, l'inventaire GICC en bordeaux, et les données obtenues par modélisation inverse en jaune (Pétron G. et al., 2004).

Emissions régionales

Les figures 16 et 17 donnent les émissions de CO₂ annuelles pour les 15 régions définies à la figure 4, et pour les années 1998, 2000, 2003 et 2005 (figure 16), ainsi que sur la période 1997-2005 (figure 17). Nous avons comparé pour chaque année la répartition régionale des émissions de l'inventaire GICC, de l'inventaire GFED, et de l'inventaire obtenu par modélisation inverse du CO [G. Pétron et al., 2004]. Les résultats de la modélisation inverse sont disponibles pour les années 2000 à 2003.

En 1998 et en 2003, on observe les pics d'émissions en Sibérie (région 2), liés aux feux intensifs qui ont eu lieu pendant l'été. Pour le pic de 2003, les émissions GICC en Sibérie semblent surestimées, par rapport aux émissions GFED ou aux résultats de la modélisation inverse. En Amérique du Nord (régions 11 et 12), en 2004 et 2005, les émissions GICC sont également bien supérieures aux émissions GFED. Dans les zones tropicales, on observe aussi des différences régionales. En Afrique, les émissions obtenues par modélisation inverse sont très fortes comparées aux émissions GICC et GFED. Les émissions GICC semblent trop faibles certaines années (2003 et 2005). A l'inverse, en Australie et en Amérique du Sud, les émissions GICC sont plus importantes que les émissions GFED, et sont plus proches des résultats de la modélisation inverse. Une différence importante entre les inventaires GICC et GFED est également observée en Indonésie (région 5), où GFED montre des pics d'émissions certaines années (1997, 1998, 2005), liées aux feux de tourbes, que l'inventaire GICC ne prend pas en compte. Ces différences régionales entre GICC et GFED sont bien visibles sur la figure 17 qui donne les émissions moyennes par région

sur la période entière 1997-2005. Nous approfondirons ces comparaisons dans les prochains mois afin de mieux comprendre les raisons de ces différences.

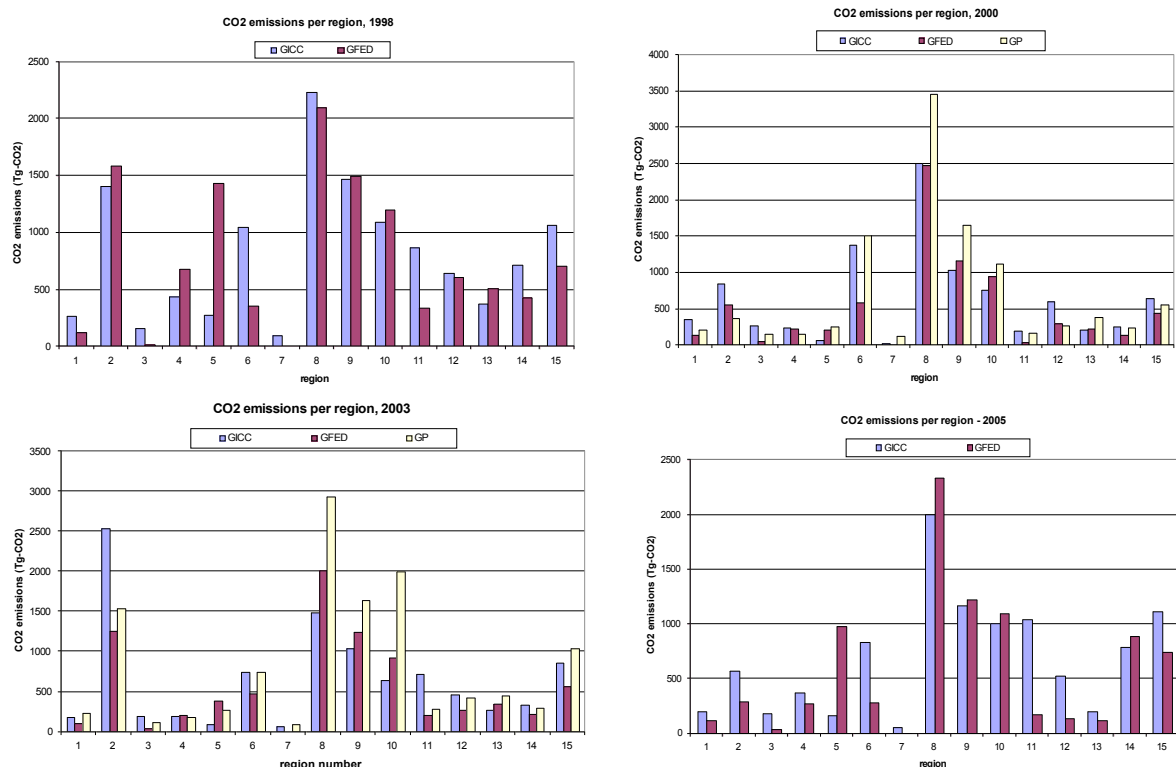


Figure 16 : Emissions de CO2 par région pour les années 1998, 2000, 2003, et 2005. Les émissions GICC sont en mauve, les émissions GFED en bordeaux, et les résultats de la modélisation inverse en jaune.

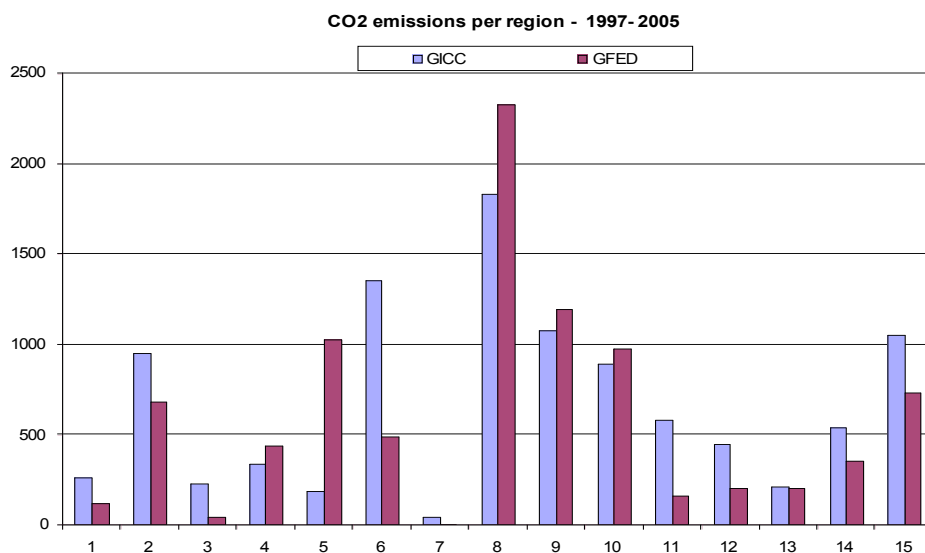


Figure 17: Emissions moyennes de CO2 par région sur la période 1997-2005. Les émissions GICC sont en mauve, les émissions GFED en bordeaux.

III.2.3. Inventaire historique des émissions de feux de 1900 à 2000

Dans ce paragraphe, nous présentons l'inventaire historique des émissions liées aux feux pour la période 1900 à 2000, résultant de la méthode décrite au chapitre précédent.

Distribution des surfaces brûlées et des émissions historiques

La figure 18 montre la distribution des surfaces brûlées établie par Mouillot et Field, que nous avons utilisées pour l'estimation des émissions historiques de CO₂. Ces 4 cartes (1900-1910, 1930-1940, 1960-1970, et 1990-2000) illustrent l'évolution au cours du siècle des surfaces brûlées. On observe une diminution significative des surfaces brûlées dans les zones boréales (Sibérie, Canada et Amérique de Nord) entre le début et la fin du siècle. D'après Mouillot et Field, les feux de forêts, représentant des stocks de carbone importants, ont brûlé $7 \cdot 10^5$ km²/an au début du siècle, essentiellement dans les forêts boréales et tempérées. Les feux de forêts ne représentent plus que $1.5 \cdot 10^5$ km²/an de surfaces brûlées en 1960, et $1.1 \cdot 10^5$ km²/an à la fin du siècle. Cette baisse est la conséquence de la fin d'une période d'intense défrichement, des politiques de suppression des feux, et des moyens de lutte accrus contre ces feux.

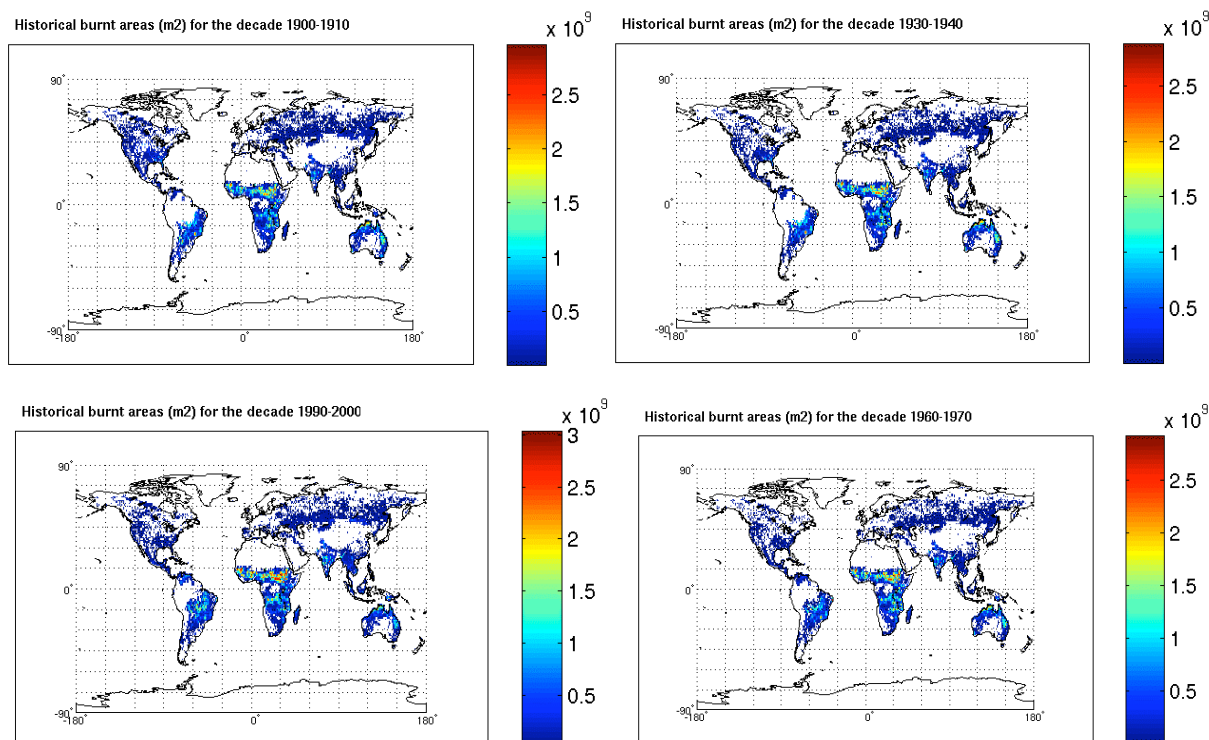


Figure 18: Distribution des surfaces brûlées (en m²) de [Mouillot et Field, 2005], à une résolution de 0.5°, pour les décennies 1900-1910, 1930-1940, 1960-1970, 1990-2000.

On observe en revanche une augmentation des surfaces brûlées en Afrique de l'Ouest, et en Amérique du Sud. En Afrique de l'Ouest, la localisation des surfaces brûlées n'a pas évolué, en particulier dans les régions de savanes. Au contraire, en Amérique du Sud, on voit une nette progression des surfaces brûlées à la limite Sud de l'Amazonie, vers l'intérieur de l'Amazonie. Cette évolution reflète l'utilisation des feux comme moyen de déforestation pour l'expansion de l'agriculture. Il faut cependant noter que peu de données concernant les feux dans les régions tropicales sont disponibles pour les premières décennies du 20^{ème} siècle. Les variations des feux dans ces régions sont donc très incertaines.

La figure 19 montre la variation de la surface brûlée totale entre 1900 et 1990: en 1900, elle est de l'ordre de $5.1 \cdot 10^5 \text{ km}^2/\text{an}$. Elle a diminué jusque dans les années 1920, puis est restée relativement stable au cours des 6 décennies suivantes. La surface brûlée a ensuite augmenté fortement à partir des années 1980, à la suite de la déforestation intense dans les régions tropicales. Les émissions totales de CO₂ reproduites dans la figure 20 suivent les profils temporels des surface brûlées, avec des émissions d'environ 8500 Tg CO₂/an en 1900, une stabilisation à environ 7800 Tg CO₂/an, pour atteindre 9500 Tg CO₂/an dans les années 1990.

Les cartes d'émissions de CO₂, CO et NO_x, obtenues à partir de ces surfaces brûlées sont présentées figures 21 et 22. On observe pour les 3 espèces chimiques une évolution similaire des émissions : les émissions dans les régions Nord (Amérique de Nord, et Sibérie) ont nettement diminué entre 1900 et 2000, tandis qu'elles ont augmenté dans d'autres régions, notamment en Afrique de l'Ouest (zones de savanes), en Amérique de Sud (Sud de la forêt Amazonienne). Les variations correspondantes des émissions annuelles de CO et NO_x sont présentées dans la figure 23.

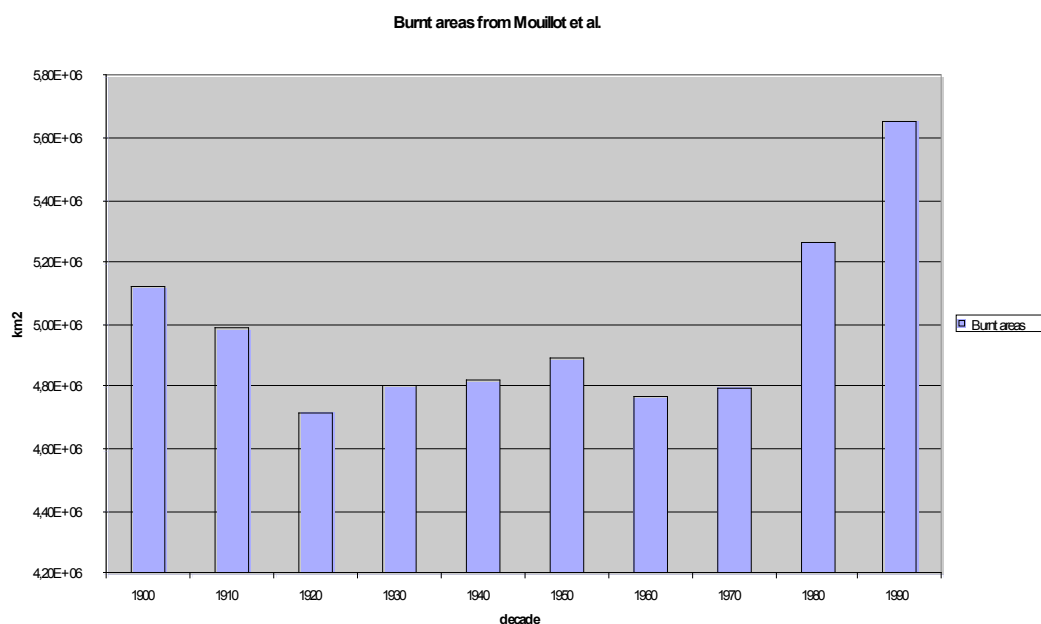


Figure 19 : Variation de la surface brûlée annuelle entre 1900 et 1990

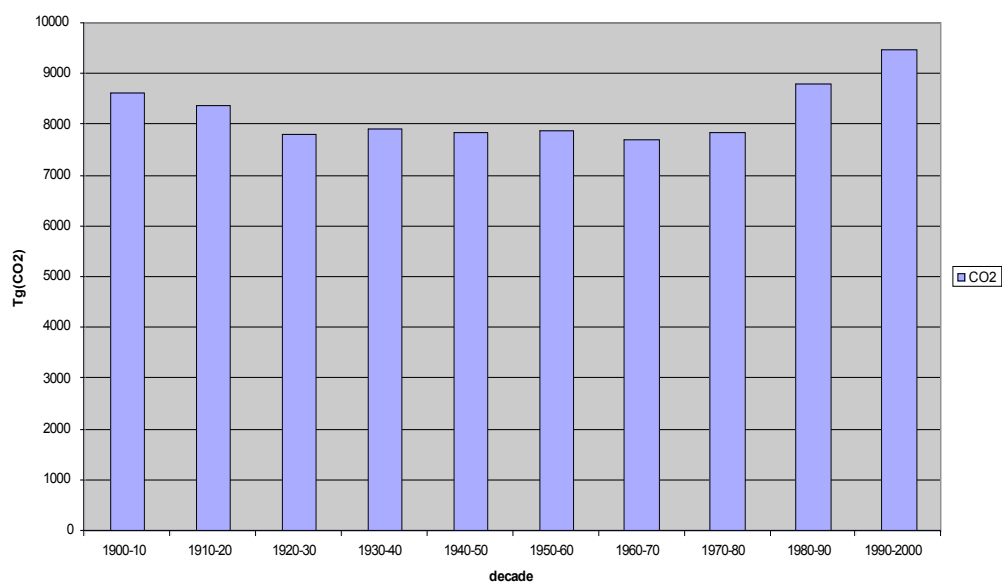


Figure 20 : Evolution des émissions annuelles de CO2 dues à la combustion de la biomasse entre 1900 et 1990.

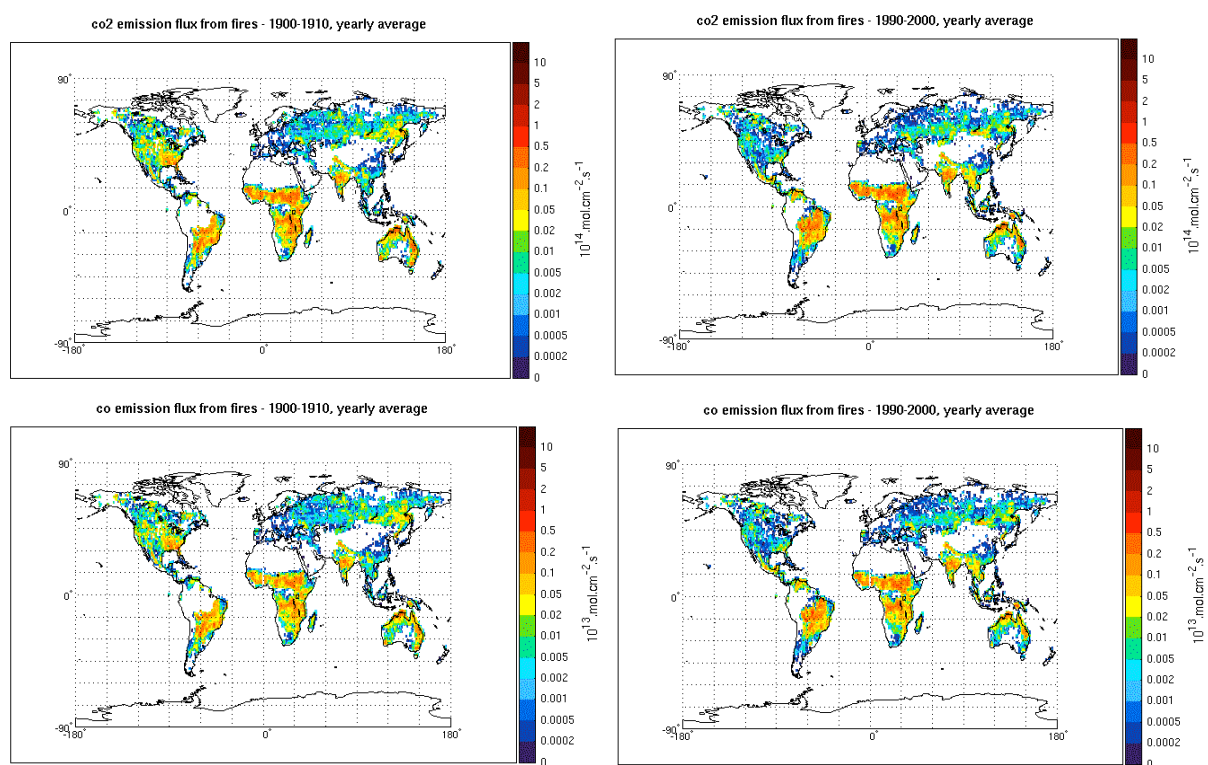


Figure 21: Distributions annuelles des émissions de CO2 et de CO (mol.cm-2.s-1), pour les décennies 1900-1910 et 1990-2000.

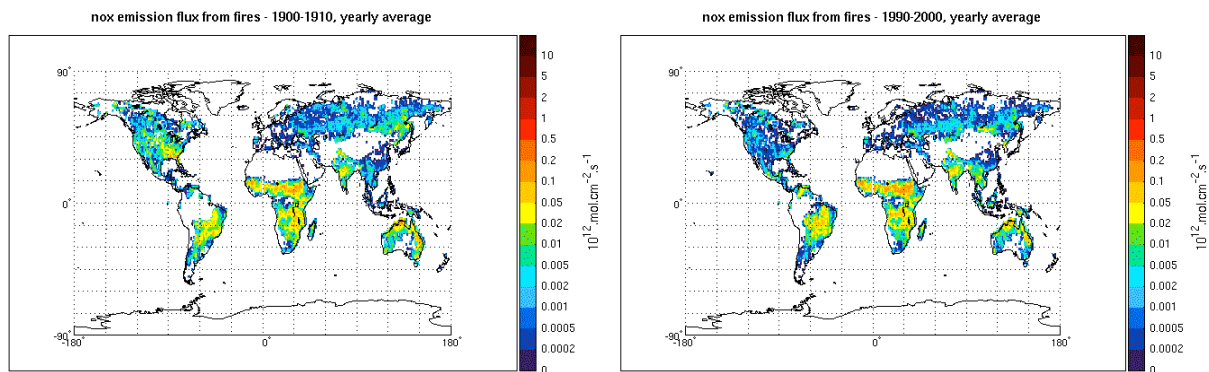


Figure 22: Distribution des émissions annuelles de NO_x (mol.cm⁻².s⁻¹), pour les décennies 1900-1910 et 1990-2000.

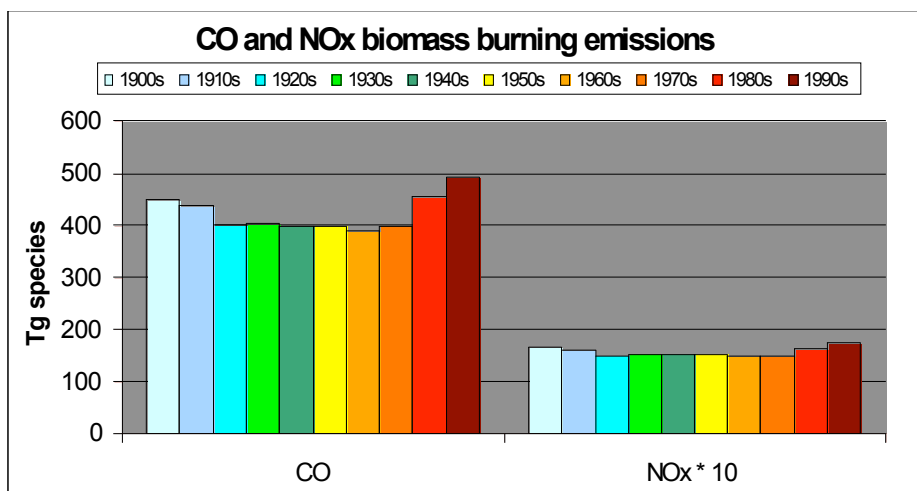


Figure 23 : Emissions annuelles de CO (Tg CO/an) et de NO_x (Tg N/an) dues à la combustion de la biomasse entre 1900 et 1990.

Répartition régionale des émissions pour chaque décennie

La figure 24 indique les émissions de CO₂ pour chacune des 15 régions définies à la figure 4, et pour chaque décennie depuis 1900. On observe, comme le montrent les distributions des surface brûlées, une diminution forte des émissions sur les USA (région 12) et la Russie (région 2) depuis 1900, ainsi qu'une forte augmentation des émissions à la fin du 20^{ème} siècle dans certaines régions comme l'Afrique (régions 8 et 9), et l'Amérique du Sud (régions 13, 14 et 15). Dans les zones tropicales et subtropicales, on observe également une nette augmentation des émissions à la fin du siècle dans les régions d'Asie Centrale/Inde (région 3), Asie du Sud-Est (région 4) et Indonésie (région 5).

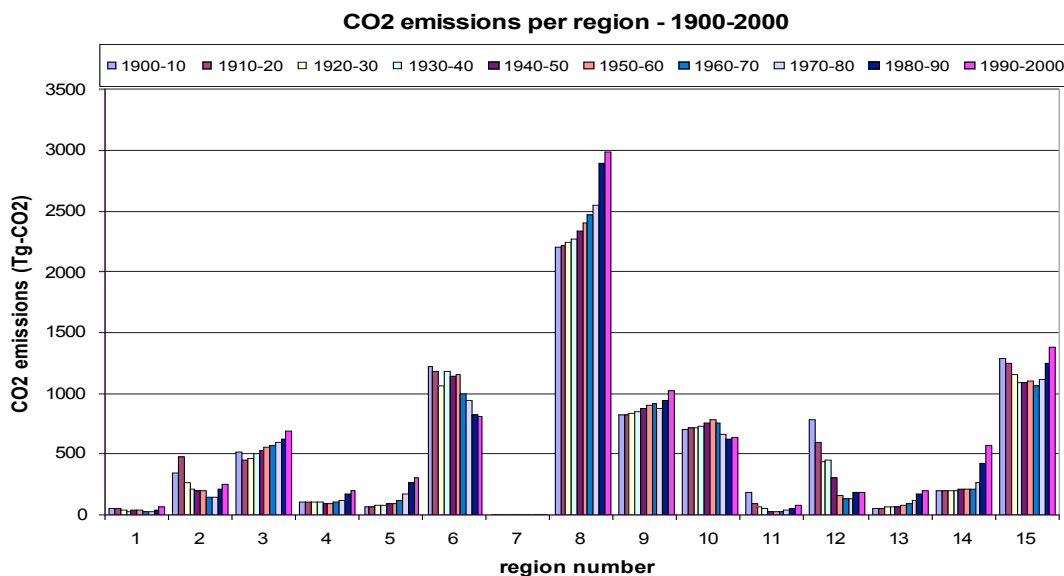


Figure 24 : Emissions de CO2 pour chacune des 15 régions considérées, et pour chaque décennie.

III.2.4 Emissions totales : comparaison avec les inventaires RETRO et MOZART-POET

Nous avons comparé les émissions obtenues par notre inventaire GICC avec les émissions proposées dans l'inventaire RETRO et l'inventaire POET utilisé dans le modèle MOZART. Ces deux inventaires sont actuellement adoptés par la plupart des modèles de chimie-transport utilisés dans les projets français, européens et internationaux.

Les émissions à la surface utilisées dans les différentes versions du modèle MOZART proviennent de l'inventaire POET (Olivier et al., 2003; Granier et al., 2005). Ces émissions sont disponibles sur le portail web d'émissions du projet GEIA (Global Emissions Inventory Activity : www.geiacenter.org). Il faut noter que les émissions de CO ne proviennent pas de l'inventaire POET, mais des résultats d'une modélisation inverse des observations de l'instrument satellital MOPITT en 2000 (Pétron et al., 2004). Le modèle MOZART considère les espèces chimiques gazeuses et particulaires.

Le projet RETRO, qui a conduit au développement d'une base de données d'émissions sur la période 1960-2000 visait à quantifier l'évolution de l'ozone et de ses précurseurs depuis les années 1960. Dans le cadre de ce projet, un nouvel inventaire, appelé inventaire RETRO, a été développé, qui fournit des distributions d'émissions anthropiques et dues à la combustion de la biomasse. Ces émissions sont fournies à une résolution de $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ degrés. Les émissions RETRO ne s'appliquent qu'aux espèces chimiques gazeuses.

La figure 25 montre une comparaison des émissions de CO et NOx fournies par notre inventaire GICC, et les inventaires RETRO et MOZART. Pour SO2 et BC, nous n'avons comparé qu'avec l'inventaire utilisé dans MOZART, les émissions de ces espèces n'étant pas disponibles pour l'inventaire RETRO. Ces comparaisons sont

effectuées sur les émissions totales pour différentes grandes régions du monde. Pour CO, les totaux émis sont de 424, 479 et 687 Tg CO/an pour les inventaires respectifs GICC, RETRO et MOZART.

Si les totaux émis dans les inventaires GICC et RETRO sont relativement proches (différence de 12%), il faut constater une très grande différence avec l'inventaire MOZART, qui est issu de la modélisation inverse. On peut constater que cette grande différence provient des émissions sur la Chine : les valeurs optimisées par modélisation inverse sont environ 3 fois plus élevées que les émissions obtenues en utilisant les statistiques officielles utilisées dans notre inventaire. Des corrections des émissions chinoises ont été apportées au cours des dernières semaines par un groupe japonais. Nous avons obtenu les nouvelles valeurs mi-mai 2007, et nous les utiliserons dans une nouvelles version de l'inventaire GICC, que nous préparerons pendant l'été 2007. Les émissions de NO_x sont relativement proches dans les 3 inventaires, avec un total de 1.43, 1.31 et 1.32 Tg N/an ; les différences les plus importantes sont sur l'Inde et la Chine.

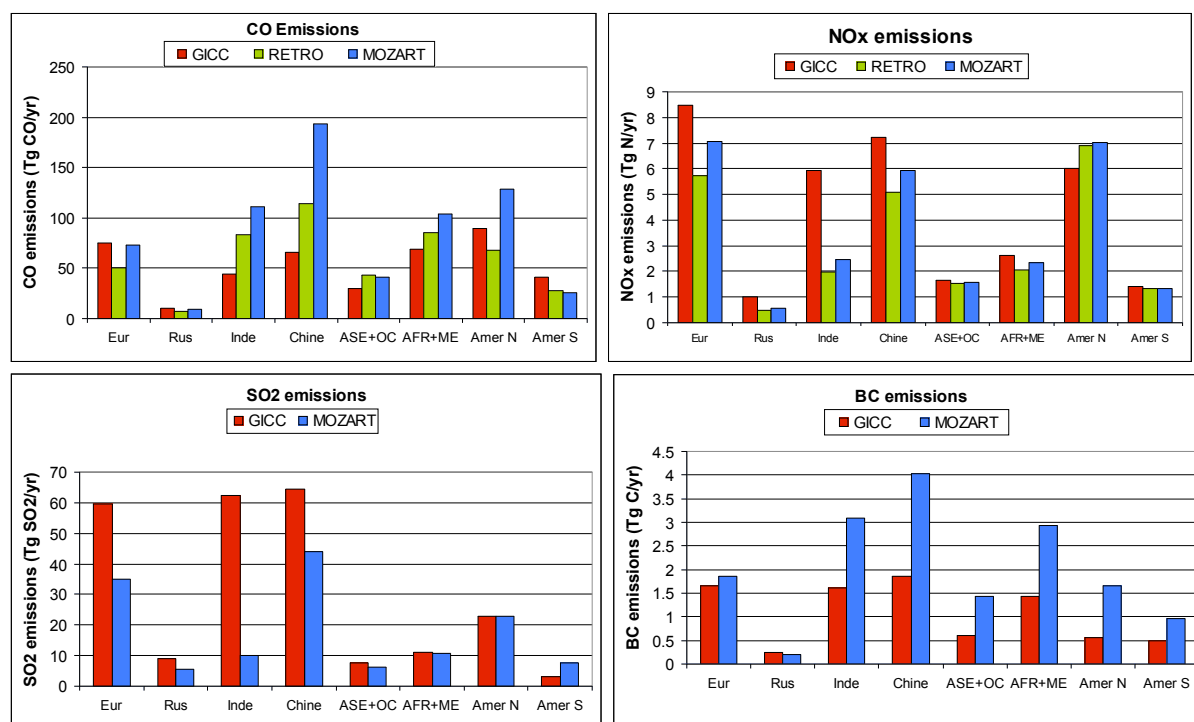


Figure 25 : Comparaison des émissions sur plusieurs grandes régions données par les inventaires GICC, RETRO et MOZART.

Les inventaires de SO₂ et BC montrent de grandes différences. Les estimations utilisées dans MOZART sont basées sur une compilation des émissions effectuées pour le rapport IPCC [2001]. Il faut noter que ces émissions, utilisées dans les modèles MOZART, ne présentent pas de cohérence entre les émissions des gaz et des aérosols, ni entre les émissions de BC, OC et SO₂, et elles n'ont pas été remises à jour.

III.2.5 Emissions africaines: comparaison avec les inventaires existant de BC

La figure 26 montre les émissions de BC par les feux de biomasse à l'échelle de l'Afrique. En noir, sont présentés les résultats de l'inventaire historique GICC et en gris clair ceux de l'inventaire GICC obtenu à partir du croisement ATSR-GBA. Les estimations en blanc sont celles de Lioussé et al., 2004 obtenues pour l'Afrique de 1980 à 1990. Il est intéressant de mentionner que l'ensemble est cohérent.

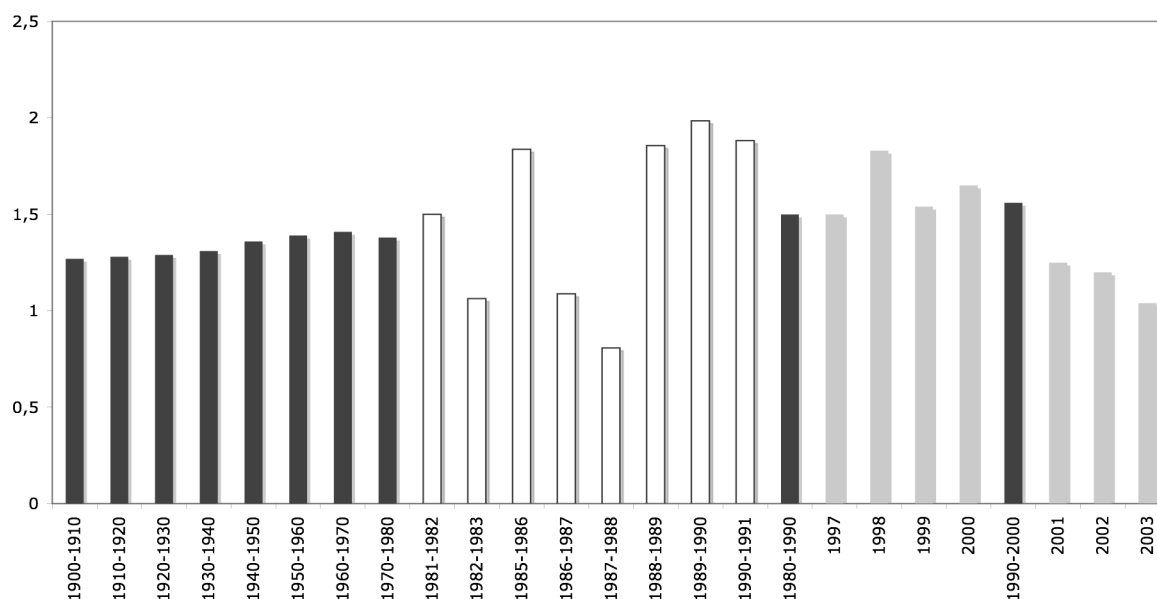


Figure 26 : Emissions de BC par les feux de biomasse à différentes périodes.

Les différences ainsi que celles obtenues à l'échelle globale vont être à présent étudiées en détail. En effet, dans le prolongement de ce travail nous avons organisé une exercice d'intercomparaison international appelé BBSO dont le but est d'essayer de mieux comprendre les différences obtenues dans les inventaires d'émission utilisant divers produits satellitaires. Une description de cet exercice sera bientôt portée sur le portail donnant accès aux travaux sur les émissions du réseau européen ACCENT.

IV. Validation des Résultats

IV.1 Les modèles de chimie-transport utilisés dans le projet

MOZART-4

Les modèles MOZART sont des modèles de chimie-transport détaillés destinés à simuler la composition de la troposphère et de la stratosphère. Le modèle peut être forcé par des champs météorologiques provenant d'analyses ou de réanalyses (fournis par exemple par le National Centers for Environmental Prediction (NCEP) ou

l'European Centre for Medium Range Weather Forecasts (ECMWF)), ou par des champs calculés par des modèles de circulation générale.

Les modèles MOZART (Model for Ozone and Related chemical Tracers, web site: www.gctm.ucar.edu/mozart/) ont été développés principalement au National Center for Atmospheric Research (NCAR, Boulder, USA), et en collaboration avec l'Institut Max Planck de Météorologie à Hambourg, Allemagne, le Geophysical Fluids Dynamical Laboratory (NOAA/GFDL, Princeton, USA) et le Service d'Aéronomie. 3 versions différentes de MOZART sont actuellement utilisées: MOZART-2 est une version troposphérique du modèle, qui a été publiée dans Horowitz et al. [2003]. MOZART-3 est une extension de MOZART-2, qui prend en compte la troposphère, la stratosphère et la mésosphère [Kinnison et al., 2007]. an extension of MOZART-2 into the stratosphere and mesosphere (to be released soon).

MOZART-4 est la version du modèle que nous avons utilisé pour cette étude. Cette version du modèle inclut un grand nombre d'améliorations par rapport à MOZART-2. Le schéma chimique inclut un nouveau schéma chimique d'oxydation des hydrocarbures d'origine biogénique. Le modèle inclut un calcul interactif des émissions des hydrocarbures biogéniques (isoprène, terpènes, alcools), un calcul interactif des processus de déposition sèche, un calcul amélioré des coefficients de photodissociation, en utilisant la paramétrisation FTUV (fast-TUV), basée sur le modèle TUV (Tropospheric Ultraviolet-Visible) model [Tie et al., 2003]. La représentation des aérosols dans MOZART a été incluse d'après les schémas développés par Tie et al. [2001, 2005] : elle inclut le calcul du carbone suie et du carbone organique primaire et secondaire, en séparant la partie hydrophobique et hydrophilique. Les composés gazeux et particuliers soufrés sont aussi pris en compte.

TM4

Le modèle ORISAM-TM4 [Guillaume et al., 2007] est un modèle global de chimie-transport qui permet de simuler les concentrations de gaz troposphériques/stratosphériques et d'aérosols troposphériques. Sa résolution horizontale est de $3^{\circ} \times 2^{\circ}$ et il comporte 9-19 niveaux du sol à 40hPa. Il est forcé par les champs météorologiques issues des réanalyses du centre Européen (archive ERA-40), avec des mises à jour toutes les 3-6 heures. Sa partie TM4 est le modèle de chimie-transport des gaz [Dentener and Crutzen, 1994; Van Velthoven and Kelder, 1996]).

Elle inclut les émissions de NO_x, NH₃, SO₂, CH₄ issues de EDGAR3.2 [Olivier et al., 2003] ainsi que les émissions de COV de POET [Olivier et al., 2003 ; Granier et al. 2005], ainsi que les émissions naturelles de NO_x des sols, de NO_x des éclairs et de SO₂ volcanique. La chimie gazeuse comporte 38 espèces gazeuses [Houweling et al., 1998] et a été augmentée des principaux précurseurs COV d'aérosols organiques (toluène, xylènes, terpènes). Les concentrations d'aérosols sont fournies par le module ORISAM [ORGanic and Inorganic Sectional Aerosol Module, Warren and Seinfeld, 1985; Liousse et al., 2005] qui classe les aérosols suivant leur diamètre dans des sections adjacentes de 0.04µm à 40µm. Ce grand niveau de détail permet de prendre en compte les processus microphysiques des aérosols (coagulation, condensation, nucléation) ainsi que la chimie des aérosols. Les espèces chimiques considérées en mélange interne dans les aérosols sont les organiques en mode fin,

carbone suie (hydrophile/hydrophobe) et carbone organique émis (hydrophile/hydrophobe), les aérosols organiques secondaires (d'origines anthropique/biogénique) et les inorganiques en mode fin (sulfates, nitrates et ammonium) ainsi que le contenu en eau des aérosols. Récemment, plusieurs processus importants ont été ajoutés: les espèces plus grossières, sels marins et poussières désertiques, ainsi que la chimie hétérogène de N_2O_5 , HO_2 , NO_2 et NO_3 (Jacob, 2000), la formation du nitrate en mode grossier [Hodzic et al., 2006] et le sulfate aqueux des gouttes de nuage.

IV.2 Simulations

Nous avons effectué jusqu'à présent deux simulations avec le modèle MOZART et les émissions GICC, une pour les conditions de 1900, et une pour les conditions de 2000. Le but de ces premières simulations est de valider les inventaires d'émissions en comparant les concentrations calculées avec les observations disponibles. Les simulations ont été effectuées pour des périodes de deux ans, et seuls les résultats obtenus pour la deuxième année de la simulations sont conservés. Pour valider notre nouvel inventaire, nous avons comparé les résultats de nos simulations, non seulement avec les observations, mais aussi avec une simulation standard, c'est à dire obtenues avec la version standard des émissions de MOZART.

IV.3 Résultats des simulations

Pour comparer les résultats des simulations avec les observations, nous disposons de des observations effectuées de façon systématique par des réseaux de mesures au sol (CO , par le réseau coopératif NOAA/GMD, appelé dans le passé réseau CMDL), ou les mesures d'ozone par ballon, dans le cadre d'un réseau coordonné par l'Organisation Météorologique Mondiale. Nous disposons aussi de résultats de campagnes d'observations en différentes régions du monde. Les observations effectuées pendant ces campagnes ont été compilées par Emmons et al. [2000].

IV.3.1 Stations de surface

Monoxyde de carbone

La figure 27 présente des observations standard de CO à deux stations NOAA/GMD de moyenne latitude dans l'hémisphère nord. On constate que les résultats obtenus par le modèle dans sa version standard (traits pointillés) sont plus proches des observations que ceux obtenus avec le nouvel inventaire (trait plein). Ce meilleur accord du modèle avec les émissions standard est normal, car les émissions de CO de la version standard du modèle proviennent de résultats de modélisation inverse.

Dans les stations des régions tropicales, les résultats ne montrent pas de différences systématiques : pour certaines stations, les concentrations calculées avec les émissions GICC sont en meilleur accord avec les observations, et pour d'autres

stations, un meilleur accord est obtenu en utilisant les émissions standard. Ceci est illustré par les résultats obtenus aux stations de Mauna Loa et Christmas Island, montrées sur la figure 28.

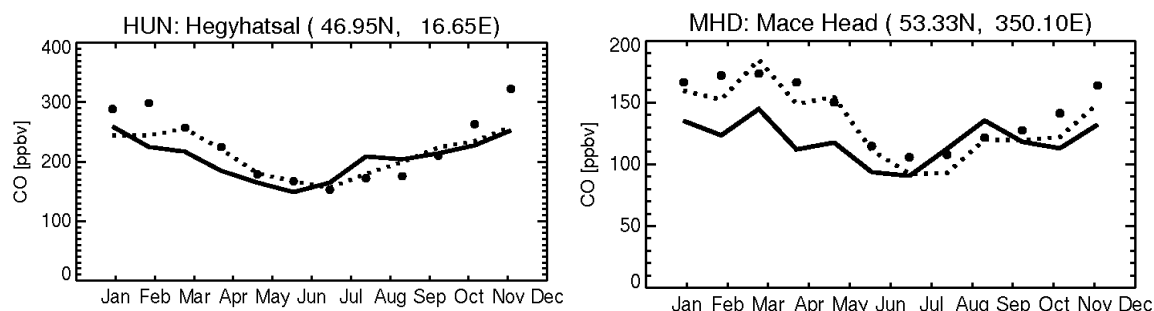


Figure 27 : Observations de CO à la surface par le réseau NOAA/GMD aux stations Hegyhatsal (Hongrie) et Mace Head (Irlande) (points noirs). Concentrations calculées par le modèle MOZART utilisant les émissions GICC (trait plein) et les émissions standard (trait pointillé).

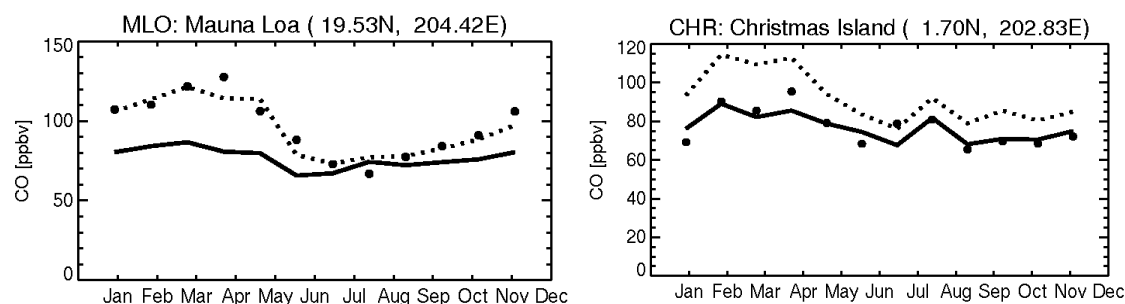


Figure 28 : Observations de CO à la surface par le réseau NOAA/GMD aux stations Mauna Loa (Hawaii) et Christmas Island (Océan Pacifique). Concentrations calculées par le modèle MOZART utilisant les émissions GICC (trait plein) et les émissions standard (trait pointillé).

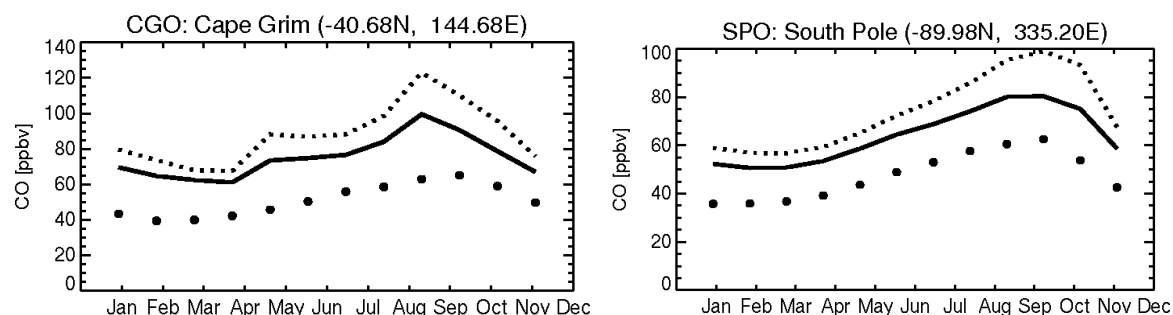


Figure 29 : Observations de CO à la surface par le réseau NOAA/GMD aux stations Cape Grim (Australie) et Pôle Sud (points noirs). Concentrations calculées par le modèle MOZART utilisant les émissions GICC (trait plein) et les émissions standard (trait pointillé).

Aux stations de moyennes et hautes latitudes de l'hémisphère sud, tous les modèles de chimie-transport surestiment actuellement les concentrations de CO par rapport aux observations. On peut cependant constater que les résultats obtenus en utilisant les émissions GICC ne surestiment pas autant les concentrations en CO que

lorsqu'on utilise les émissions standard. Les résultats obtenus par exemple aux stations de Cape Grim et au Pôle Sud sont indiqués dans la figure 29.

SO₂ et SO₄

Il n'existe que peu de mesures systématiques des concentrations de SO₂, SO₄, BC et OC. Nous avons comparé les résultats de nos simulations avec les observations du réseau IMPROVE (Interagency Monitoring of Protected Visual Environments, <http://vista.cira.colostate.edu/IMPROVE/>), qui dispose de stations réparties sur l'ensemble des USA. Dans la plupart des stations de ce réseau, les concentrations en SO₂ et SO₄ calculées sont proches, quel que soit l'inventaire d'émissions utilisé, GICC ou MOZART. Cependant, pour plusieurs stations, un bien meilleur accord avec les observations quand on utilise l'inventaire GICC, en particulier pour SO₂. La figure 30 montre par exemple les concentrations en SO₂ et en SO₄ observées (points noirs) dans le Parc National de Bryce Canyon, ainsi que les valeurs calculées. Les valeurs de SO₂ calculées avec l'inventaire GICC sont proches des valeurs observées, soit entre 0.5 et 1.5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, alors que la version standard du modèle MOZART calcule des concentrations supérieures à 4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

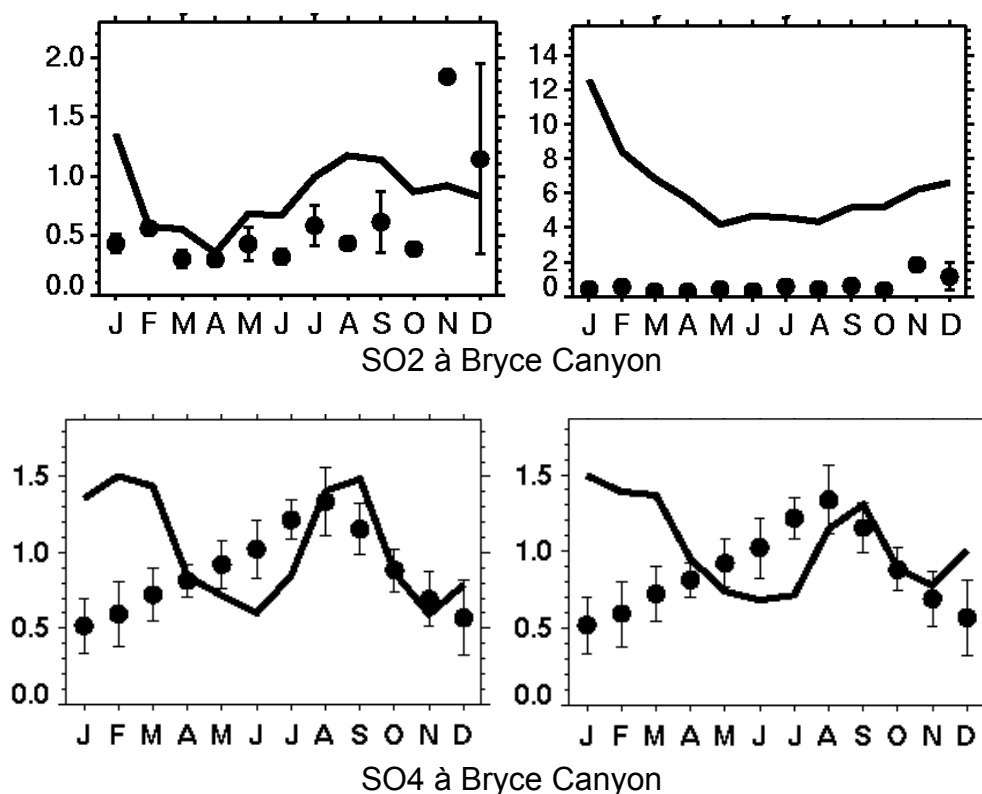


Figure 30 : Concentrations en SO₂ et SO₄ en $\mu\text{g}/\text{m}^3$ calculées observées (points noirs) et calculées avec l'inventaire GICC (colonne de gauche) et l'inventaire MOZART (colonne de droite).

Carbone-suie BC

Des comparaisons entre l'inventaire GICC et les inventaires existant de BC introduits dans les modèles MOZART et TM4 sont en cours. Un exemple de résultat est présenté sur la figure 31 pour un site du réseau IMPROVE (Petrified Forest) et un site d'altitude européen [Pic du Midi, Guillaume et al., 2007]. La comparaison entre observations et modèle TM4 est satisfaisante, tant du point de vue des niveaux de BC que de la variation saisonnière.

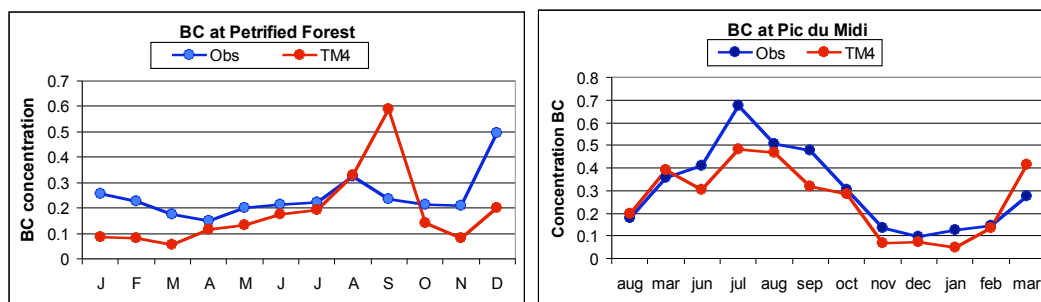


Figure 31 : Concentrations de BC ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) à deux stations, Petrified Forest (USA) et Pic du Midi. Les observations sont indiquées en bleu, et les résultats du modèle en rouge.

La comparaison modèle/mesure sur les sites de mesures Européens, indiquée sur la figure 32, montre tout d'abord une meilleure comparaison avec le modèle régional sur deux grandes villes d'Europe de l'Ouest: Barcelone et Paris. Sur les autres sites d'Europe de l'Ouest, les valeurs fournies par les deux modèles sont le plus souvent comparables. Par contre sur l'Europe Centrale et l'Europe de l'Est, la comparaison est nettement meilleure avec le modèle global ORISAM-TM4, notamment sur l'Ex-Allemagne de l'Est (sites de Melpitz, Halle, Gorlitz, Radebeul, Potsdam), la Hongrie (K-pustza), l'Autriche (Vienne), même si les valeurs modélisées restent encore au moins deux fois inférieures aux valeurs observées. Ces résultats montrent que sur cette région, les calculs effectués avec l'inventaire GICC [Guillaume and Liousse, 2007, et Junker et Liousse, 2006] sont plus pertinents par rapport aux scénarios de Schaap et al., [2004]. Les principales différences entre ces inventaires sont dues en grande majorité aux incertitudes sur les facteurs d'émissions du charbon et du lignite utilisés dans les secteurs industriel et domestique.

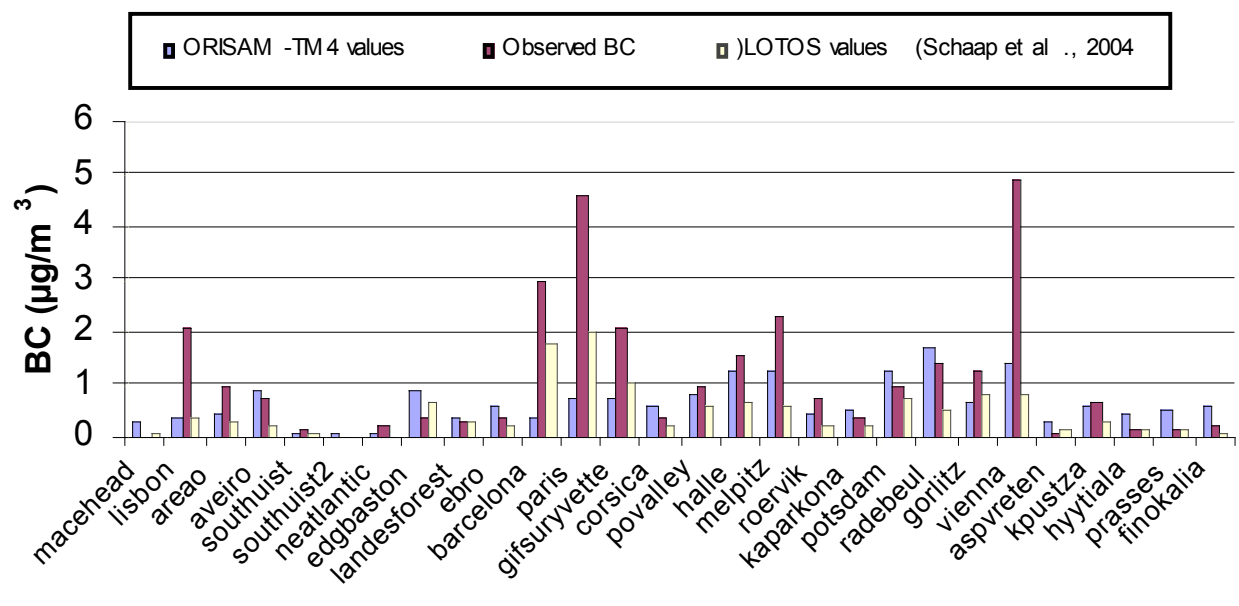


Figure 32 : Comparaison de mesures de BC et de calculs effectués par deux modèles à diverses stations européennes.

IV.3.2 Profils verticaux

Nous avons comparé les concentrations calculées avec des observations de profils verticaux obtenus lors de différentes campagnes. Il faut remarquer que ces campagnes ont été effectuées au cours de différentes années. Nous avons comparé les résultats des simulations avec les observations réalisées pour les mêmes dates.

Monoxyde de carbone

Les profils verticaux des concentrations calculés sont en général, dans les zones de moyennes ou basses latitudes, plus proches des observations quand on utilise les émissions GICC. La figure 33 montre par exemple les concentrations en CO a Tahiti, et a Hawaii. Les profils de concentrations calculés en utilisant les émissions GICC, indiqués en rouge, sont plus proches des observations indiqués par les rectangles.

Par contre, à haute latitude, comme pour les observations avec les stations de surface, les résultats obtenus avec les émissions GICC sont généralement trop faibles par rapport aux observations, comme le montre la figure 33, où les concentrations calculées sont comparées avec les observations recueillies lors de la campagne TOPSE. Les profils calculés avec les émissions standard issues, dans le cas de CO, de la modélisation inverse des observations MOPITT sont en meilleur accord avec les observations.

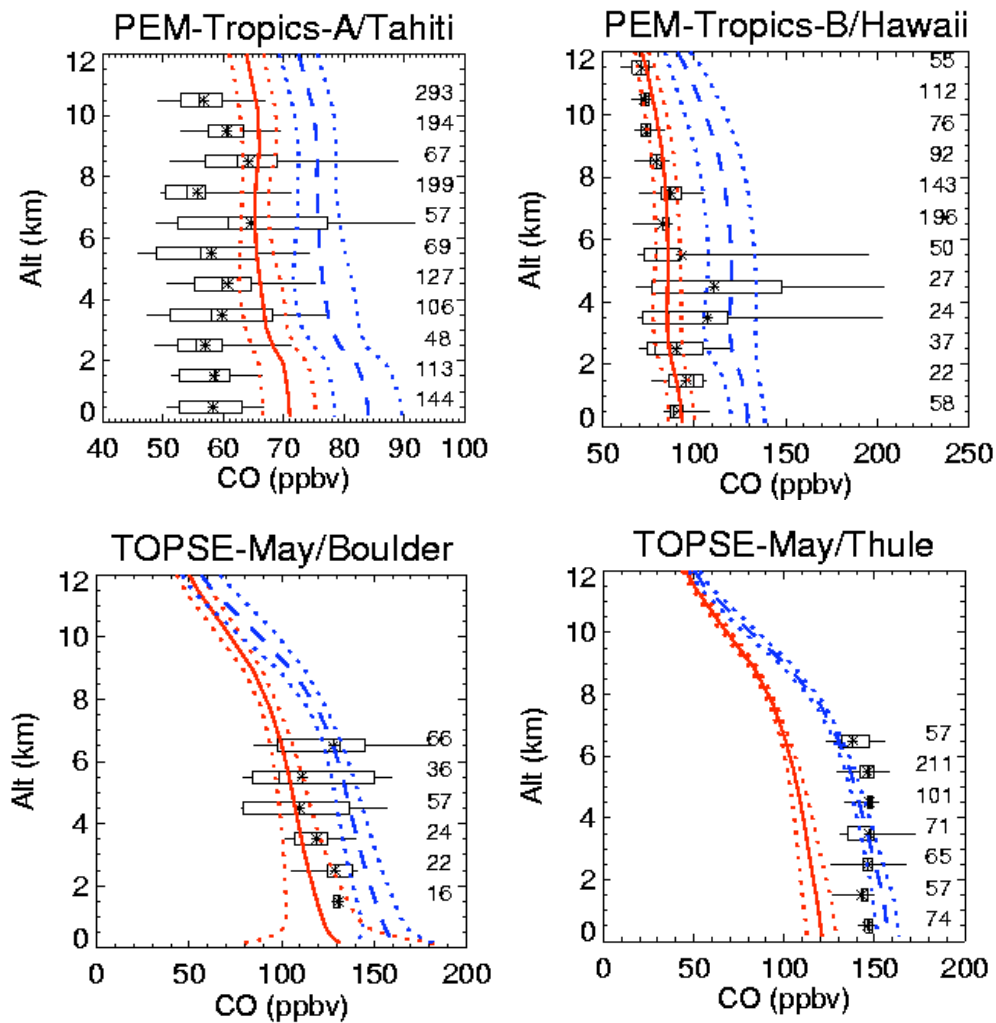


Figure 33: Profils de concentration de CO dans la troposphère, mesurés lors de différentes campagnes. Les concentrations calculées par le modèle MOZART utilisant les émissions GICC sont en rouge, celles obtenues avec les émissions standard sont en bleu.

Oxydes d'azote

Nous présenterons les résultats obtenus pour l'espèce $\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$. Les résultats obtenus pour chacune des espèces NO et NO_2 présentent les mêmes caractéristiques que NO_x . Comme nous l'avons montré précédemment, les émissions des oxydes d'azote sont très proches dans les différents inventaires. En conséquence, les modèles donnent des résultats semblables pour les différents inventaires utilisés.

Dans certains cas, comme dans la figure 34, les concentrations en oxydes d'azote calculées par le modèle sont plus faibles dans la haute troposphère que les concentrations observées. Ceci pourrait être dû à une sous-estimation de la source d'oxydes d'azote due aux éclairs, qui est un phénomène local, très difficile à modéliser de façon quantitative dans un modèle global.

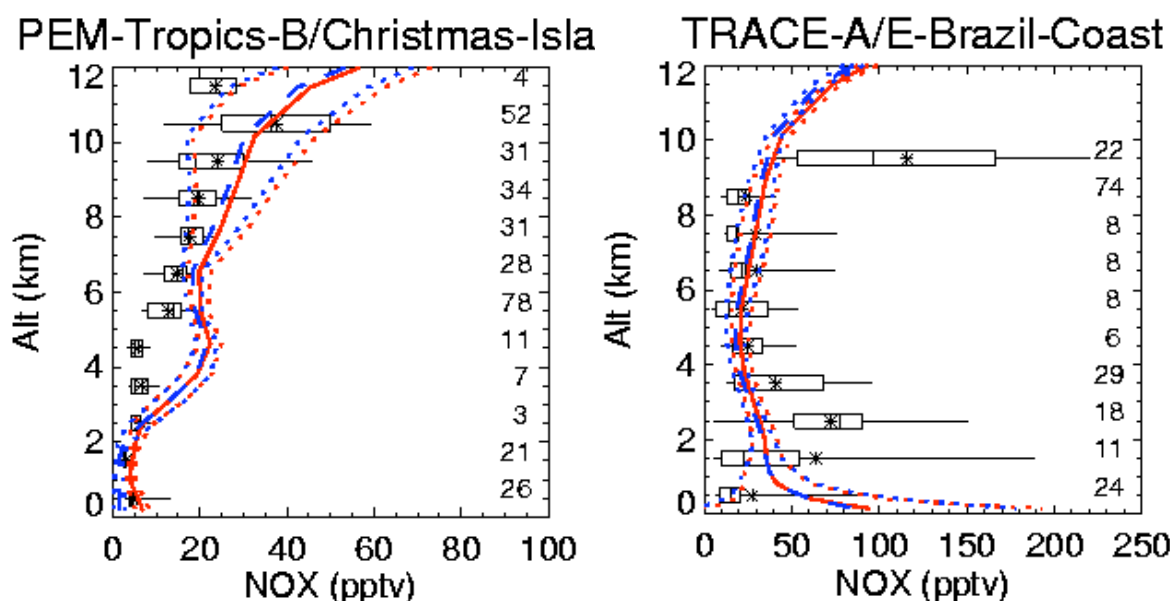


Figure 34: Profils de concentration de NO_x = NO+NO₂ dans la troposphère, mesurés lors de différentes campagnes. Les concentrations calculées par le modèle MOZART utilisant les émissions GICC sont en rouge, celles obtenues avec les émissions standard sont en bleu.

IV.3.Ozone

De nombreuses observations des concentrations d'ozone sont disponibles, soit à des stations de surface, soit par des mesures in-situ effectuées par des ballons-sondes ou par des appareils embarqués sur avion. La figure 35 montre les concentrations d'ozone observées et calculées aux niveaux de 800, 500 et 200 hPa aux stations de Edmonton, Hilo, Pretoria et Syowa.

On ne constate pas de différence significative entre les concentrations calculées en utilisant les deux inventaires. Les concentrations observées et calculées sont en très bon accord à toutes les stations, et à tous les niveaux d'altitude jusqu'à 300 hPa environ. Cependant, aux niveaux proches et au-dessus de la tropopause, on constate une sous-estimation importante des concentrations en ozone. Ceci est dû à un problème dans la prise en compte de l'ozone stratosphérique et de son transport vers la troposphère dans le modèle MOZART-4, dans lequel les altitudes des couches supérieures est trop basse pour une bonne prise en compte de l'ozone stratosphérique.

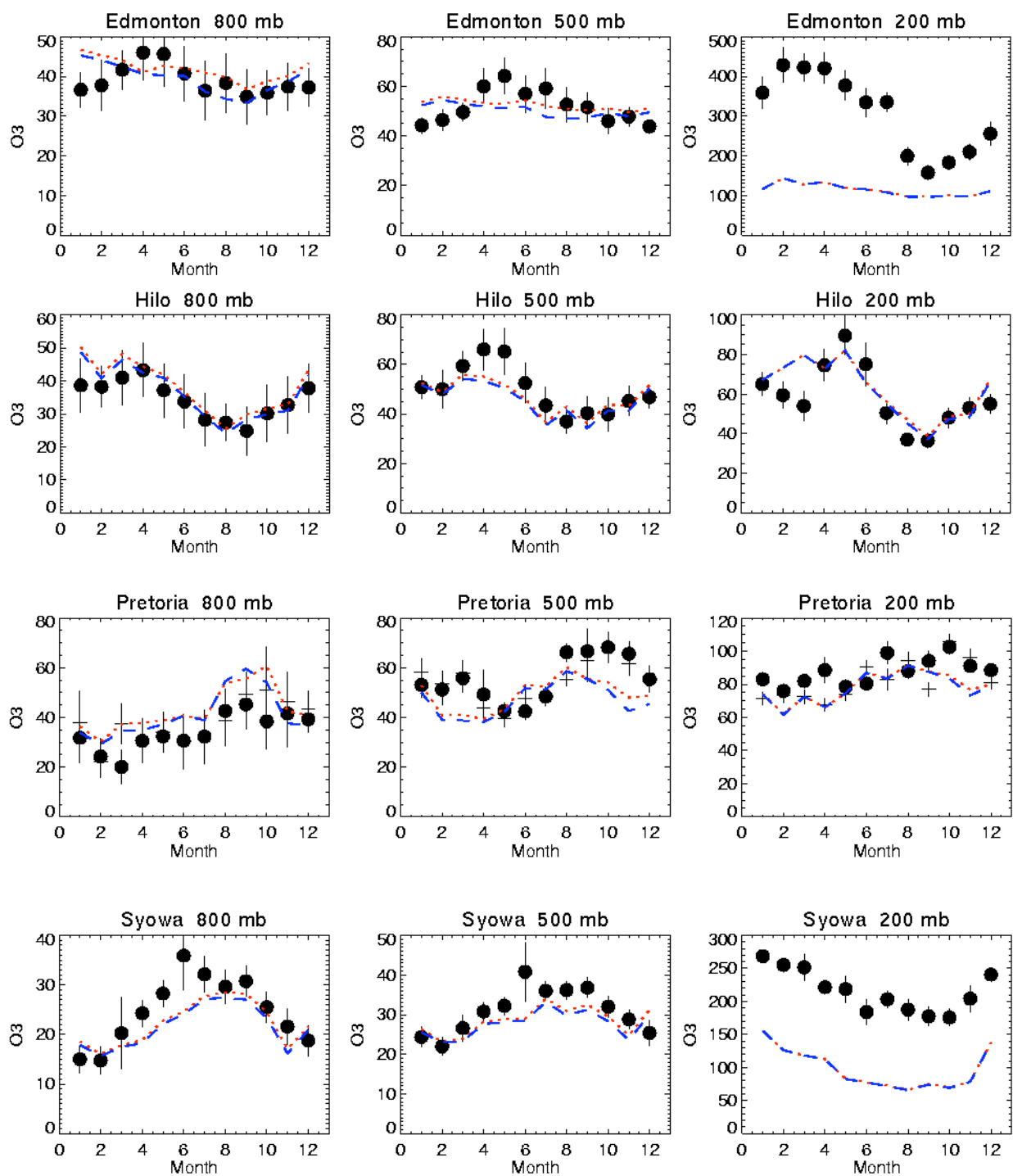


Figure 35 : Variation saisonnière de la concentration en ozone (ppbv) à plusieurs niveaux d'altitude. Les concentrations calculées par le modèle MOZART utilisant les émissions GICC sont en rouge, celles obtenues avec les émissions standard sont en bleu.

V. Conclusions et suite du projet

Nous avons ainsi atteint notre objectif, qui était de développer une méthodologie permettant de déterminer un inventaire des émissions des espèces gazeuses et des aérosols sur la période 1900-2000. Nous avons de plus validé l'inventaire, en utilisant un modèle de chimie-transport. Notre méthodologie est très flexible, et elle pourra ainsi être appliquée au calcul des émissions futures pour différents scénarios futurs de l'évolution des émissions.

Au cours des prochains mois, nous compléterons la validation des émissions en effectuant des simulations sur plusieurs périodes, et notamment les 20 dernières années, pour lesquelles des observations sont disponibles en plusieurs endroits du monde. Nos travaux seront présentés dans différentes réunions françaises, ainsi qu'à des workshops et congrès internationaux. Nous travaillerons, au cours de l'été 2007, à la rédaction de plusieurs articles présentant non seulement l'inventaire que nous avons développé, mais aussi les résultats des simulations que nous avons effectuées.

Une fois ces articles acceptés pour publication, l'inventaire sera inclus dans un portail internet donnant accès à plusieurs inventaires d'émissions. Les formats numériques que nous avons utilisés sont identiques à ceux utilisés pour le portail internet des émissions du réseau d'excellence européen ACCENT, développé dans le cadre du projet international GEIA (Global Emissions Inventory Activity), un projet du Programme International Geosphere-Biosphere/AIMES.

Nous avons déjà présenté les premiers résultats de nos travaux dans des réunions internationales, et plusieurs collègues de laboratoires français et étrangers ont proposé de collaborer avec nous, soit pour des améliorations de la méthodologie utilisée pour développer l'inventaire, soit pour de nouveaux développements par exemple pour prendre en compte de nouvelles espèces chimiques. Le travail que nous avons entrepris dans le cadre de ce projet GICC permettra ainsi à nos deux laboratoires (Service d'Aéronomie et Laboratoire d'Aérodynamique) de collaborer et d'initier de nouveaux projets.

VI. Disponibilité des données : sont-elles organisées en banque de données ?

Comme nous l'avons indiqué au paragraphe V, les résultats que nous obtiendrons seront aussi mis à la disposition de la Communauté Scientifique par l'intermédiaire du projet GEIA (Global Emissions Inventory Activity) du programme IGBP (International Geosphere-Biosphere Program). Cette base de données est accessible soit par le portail internet du réseau d'excellence ACCENT (www.accent-network.org), soit par le site internet du projet GEIA (www.geiacenter.org).

VII. Rapports, publications, thèses, sites Internet, et autres valorisations de l'étude

Granier, C.; Mieville, A.; Liousse, C.; Guillaume, B. ; Gregoire, J.-M.; Mouillot, F., Emissions of gases and aerosols resulting from biomass burning during the 1900-2003 period, EGU General Assembly, Vienna, April 2007.

Junker, C., and Liousse, C.: A global emission inventory of carbonaceous aerosol from historic records of fossil fuel and biofuel consumption for the period 1860-1997, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 6, 4897-4927, 2006.

Konaré, A., C. Liousse, B. Guillaume, V. Yoboué, C. Galy, K. Pienaar, A. Ndiaye, L. Sigha, A. Diop, H. Cachier, F. Solmon, D. Aducko, E. Afiesimama and R. Rosset, Anthropogenic aerosols over Africa, Conférence du projet GEIA, Paris, Novembre 2006.

Liousse, C., C. Junker, J.M. Gregoire, C. Granier and A. Mieville, 2006-9-17: How to access global and regional burnt biomass from satellite observations to derive gases and particle emission inventories. Joint CACGP/IGAC/WMO Symposium, Capetown, South Africa, September 2006.

Liousse, C., C. Junker, B. Guillaume, C. Granier and A. Mieville, 2006-11-9: Global historical emissions of gases and particles for the period 1860-2003. Earth System Science Partnership Open Conference, Beijing, China, November 2006.

Liousse, C., B. Guillaume, C. Junker, C. Granier, J.M. Grégoire, A. Mieville, How to access global and regional burnt biomass from satellite observations to derive gases and particle emission inventories?, Conférence du projet GEIA, Paris, Novembre 2006.

Liousse, C., B. Guillaume, C. Junker, C. Granier, A. Mieville, Global emission inventories of gases and particles from fossil fuel and biofuel consumption for the period 1860-2030, Conférence du projet GEIA, Paris, Novembre 2006

Liousse, C; Guillaume, B; Konaré, A; Grégoire, J.M.; Solmon, F; Poirson, A; Granier, C; Rosset, R; Cachier, H Fossil fuel, Biofuel and Biomass burning emission inventories for gases and particles in Africa with tentative validations with global TM4 and regional RegCM aerosol modeling for the year 2000, EGU General Assembly, Vienna, April 2007.

Liousse, C; Guillaume, B; Junker, C; Granier, C; Mieville, A; Grégoire, J.M., Global emission inventories of gases and particles from fossil fuel and biofuel consumption for the period 1860-2030 with tentative validations with carbonaceous aerosol TM4 global modelling, EGU General Assembly, Vienna, April 2007.

VIII. Références

Andreae, M. O. and Merlet, P.: Emission of trace gases and aerosols from biomass burning, *Global Biogeochem. Cycles*, 15, 955–966, 2001.

Arino, O., Simon, M., Piccolini, I. and J.M. Rosaz, The ERS-2 ATSR-2 World Fire Atlas and the ERS-2 ATSR-2 World Burnt Surface Atlas projects. Proceedings of the 8th ISPRS conference on Physical Measurement and Signatures in Remote Sensing, Aussois, 8-12 January 2001.

Bartholomé, E. and Belward, A.S., GLC2000 : a new approach to global land cover mapping from Earth observation data. *International Journal of Remote Sensing*, vol. 26(9), 1959-1977, 2005.

Bond, T. C., Streets, D. G., et al (2004) A technology- based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion, *J. Geophys. Res.*, 109, D14203, 10.1029/2003JD003697, 2004

Bonan, G. B., Levis, S., Kergoat, L. and Oleson, K. W. 2002. Landscapes as patches of plant functional types: An integrating concept for climate and ecosystem models. *Global Biogeochem. Cy.* 16 (2), 1021, 2002.

Cooke, W. F., C. Lioussé, H. Cachier and J. Feichter, *J. Geophys. Res.* 104 (D18), 22137-22162, 1999.

Dentener F.J. and Crutzen P.J. 1994. A global 3D model of the ammonia cycle, *J. Atmos. Chem.* 19, 331-369.

Emmons, L.K., D.A. Hauglustaine, J-F. Müller, M.A. Carroll, G.P. Brasseur, D. Brunner, J. Stahelin, V. Thouret, A. Marengo, Data composites of airborne observations of tropospheric ozone and its precursors, *J. Geophys. Res.*, 105, 20,497-20,538, 2000.

Etemad, B., Bairoch, P., Toutain, J.-C., and Luciani, J.: Production mondiale d'énergie 1800– 1985, Genève, Librairie Droz, 1991.

Granier, C., J.F. Lamarque, A. Mieville, J.F. Muller, J. Olivier, J. Orlando, J. Peters, G. Petron, G. Tyndall, S. Wallens, POET, a database of surface emissions of ozone precursors, available on internet at <http://www.aero.jussieu.fr/projet/ACCENT/POET.php> , 2005.

Guillaume B., Lioussé C., Rosset R., Cachier H., Van Velthoven P., Bessagnet B., Poisson N., ORISAM-TM4: a new global sectional multi-component aerosol model including SOA formation - Focus on carbonaceous BC and OC aerosols, *Tellus* 59B, 283-302, 2007.

Hansen, M. and Reed, B., Comparison of IGBP DISCover and University of Maryland 1km global land cover classifications. *International Journal of Remote Sensing*. 21, 2000.

Hao W M & M-H Liu, Spatial and temporal distribution of tropical biomass burning. Global biogeochemical cycles, Vol.8, No. 4, 495-503, 1994.

Hodzic A., Bessagnet B., Vautard R. (2006) A model evaluation of coarse-mode nitrate heterogeneous formation on dust particles, *Atmos. Environ.*, 40, 4158-417, 2006.

Horowitz, L., S. Walters, D.L. Mauzerall, L.K. Emmons, P.J. Rasch, C. Granier, X. Tie, J-F. Lamarque, M.G. Schultz, G.S. Tyndall, J.J. Orlando, and G.P. Brasseur, A global simulation of tropospheric ozone and related tracers: Description and evaluation of MOZART, version 2, *J. Geophys. Res.*, 108(D24), 4784, doi:10.1029/2002JD002853, 2003.

Houweling S., Dentener F. and Lelieveld J., The impact of non-methane hydrocarbon compounds on tropospheric photochemistry, *Journal of Geophysical Research*. 103, 10673-10696, 1998.

IPCC, 2007: Climate Change 2007: The Physical Science Basis, Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, S. Solomon, D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K.B. Averyt, M. Tignor, and H.L. Miller eds, Cambridge University Press, United Kingdom and New York, NY, USA, 2007.

Ito, A., and J. E. Penner, Historical emissions of carbonaceous aerosols from biomass and fossil fuel burning for the period 1870-2000, *Global Biogeochem. Cycles*, 19, GB2028, doi:10.1029/2004GB002374, 2005.

Junker, C., and Liousse, C.: A global emission inventory of carbonaceous aerosol from historic records of fossil fuel and biofuel consumption for the period 1860-1997, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 6, 4897-4927, 2006.

Kinnison, D.E., G.P. Brasseur, S. Walters, R.R. Garcia, F. Sassi, D. Marsh, B.A. Boville, P. Rasch, J.F. Lamarque, L.K. Emmons, P. Hess, J. Orlando, G. Tyndall, X.X. Tie, W. Randel, M. Park, L. Pan, A. Gettelman, L. Harvey, C. Randall, C. Singleton, C. Granier, T. Diehl and U. Niemeier, Sensitivity of Chemical Tracers to Meteorological Parameters in the MOZART-3 Chemical Transport Model, *J. Geophys. Res.*, in press, 2007.

Lawrence, P., Globally describing the current day land surface and historical land cover change in CCSM 3.0 using AVHRR and MODIS data at fine scales.

Liousse C., Andreae M. O., Artaxo P., Barbosa P., Cachier H., Grégoire J. M., Hobbs P., Lavoué D., Mouillot F., Penner J.E., Scholes M. (2004) Deriving Global Quantitative Estimates for Spatial and Temporal Distributions of Biomass Burning Emissions, In: *Emissions of Atmospheric Trace Compounds*, ed: Granier C., Artaxo P. and Reeves C., 544, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, The Netherlands, 2004.

Liousse C., Michel C., Bessagnet B., Cachier H. and Rosset R., 0D-Modelling of Carbonaceous Aerosols over Greater Paris focusing on the organic particle formation, *J. Atmos. Chem.* 51 (2), 207-221, 2005.

Lioussé C., A. Konaré, B. Guillaume, F. Solmon and R. Rosset, Impacts of biomass burning carbonaceous aerosol emissions : measurements versus regional modelling, ILEAPS lett., 2006.

Michel, C., C. Lioussé , J.-M. Grégoire, K. Tansey, G.R. Carmichael and J.-H. Woo, Biomass burning emissions inventory from burnt area data given by SPOT-Vegetation satellite for TRACE-P and ACE-Asia case studies, J. of Geophys. Res., 110, D09304, doi:10.1029/2004JD005461, 2005.

Mitchell, B. R.: International Historical Statistics, Europe, 1750–1988, 942 pp., Macmillan, Old Tappan, N.J., 1992.

Mitchell, B. R.: International Historical Statistics, The Americas 1750–1988, 817 pp., Macmillan, Old Tappan, N.J., 1993.

Mitchell, B. R.: International Historical Statistics, Africa, Asia & Oceania: 1750–1988, 1089 pp., Macmillan, Old Tappan, N.J., 1995.

Mouillot, F., and C. B. Field, Fire history and the global carbon budget: A 1°x1° fire history reconstruction for the 20th century, Global Change Biology, 11, 398-420, 2005.

Novakov, T., Ramanathan, V., Hansen, J. E., Kirchstetter, T. W., Sato, M., Sinton, J. E., and Sathaye, J. A.: Large historical changes of fossil-fuel black carbon aerosols, Geophys. Res. Lett., 30, 1324, 2003.

Olivier, J.G.J, J.P.J. Bloos, J.J.M. Berdowski, A.J.H. Visschedijk and A.F. Bouwman, A 1990 global emission inventory of anthropogenic sources of carbon monoxide on 1x1 degree developed in the framework of EDGAR/GEIA. *Chemosphere:Global Change Science*: 1 1-17, 1999.

Olivier J., J. Peters, C. Granier, G. Petron, J.F. Muller, and S. Wallens: Present and future surface emissions of atmospheric compounds, POET report #2, EU project EVK2-1999-00011, 2003.

Pertuisot, M. H., Transfert du carbone atmosphérique dans les neiges et les pluies, dissertation, Université Paris VII, UFR de Chimie, 1993.

Pétron, G., C. Granier, B. Khattatov, V. Yudin, J.-F. Lamarque, L. Emmons, J. Gille, and D. P. Edwards. Monthly CO surface sources inventory based on the 2000-2001 MOPITT satellite data. Geophys. Res. Lett., 31:21107, 2004.

Tansey, K., J.-M. Grégoire, E. Binaghi, L. Boschetti, P.A. Brivio, D. Ershov, S. Flasse, R. Fraser, D. Graetz, M. Maggi. P. Peduzzi, J. Pereira, J. Silva, A. Sousa, and D. Stroppiana, A global inventory of burned areas at 1 km resolution for the year 2000 derived from SPOT VEGETATION data, 2004.

Tie, X., G. Brasseur, L. Emmons, L. Horowitz, D. Kinnison, Effects of aerosols on tropospheric oxidants: A global model study, *J. Geophys. Res.*, 106, 2931-2964, 2001.

Tie, X., S. Madronich, S. Walters, P. Rasch, and W. Collins, Effect of clouds on photolysis and oxidants in the troposphere, *J. Geophys. Res.*, **108**, 4642, doi: 10.1029/2003JD003659, 2003.

Tie, X., S. Madronich, S. Walters, D.P. Edwards, P. Ginoux, N. Mahowald, R. Zhang, C. Luo, G. Brasseur, Assessment of the global impact of aerosols on tropospheric oxidants, *J. Geophys. Res.*, **110**, D03204, doi:10.1029/2004JD005359, 2005.

Tyndall, G., R.A. Cox, C. Granier, R. Lesclaux, G.K. Moortgat, M.J. Pilling, A.R. Ravishankara, and T.J. Wallington, Atmospheric chemistry of small organic peroxy radicals, *J. Geophys. Res.*, **106**, 12,157-12,182, 2001.

Van Aardenne, J., J.F. Dentener, J.G.J. Olivier, C.G.M. Klein Goldewijk and J. Lelieveld, A 1o x 1o resolution dataset of historical anthropogenic trace gas emissions for the period 1890 - 1990. *Global Biogeochemical Cycles* **15**(4): 909 – 928, 2001.

Van der Werf G.R., Randerson JT, Giglio L, Collatz GJ, Kasibhatla PS, Arellano AF Interannual variability in global biomass burning emissions from 1997 to 2004 *ATMOSPHERIC CHEMISTRY AND PHYSICS* **6**: 3423-3441, 2006.

Van Velthoven P.F.J. and Kelder H. 1996. Estimates of Stratosphere-Troposphere Exchange: Sensitivity to model formulation and horizontal resolution. *Journal of Geophysical Research*. **101**, 1429-1434.

Warren D.R. and Seinfeld J.H., Simulations of aerosol size-distribution evolution in systems with simultaneous nucleation, condensation and coagulation. *Aerosol Sci. & Tech.* **4**, 31-43, 1985.