



HAL
open science

L'aérosol de combustion dans une région en grande mutation, l'Asie

Christelle Michel

► **To cite this version:**

Christelle Michel. L'aérosol de combustion dans une région en grande mutation, l'Asie. Océan, Atmosphère. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2005. Français. NNT: . tel-00069797

HAL Id: tel-00069797

<https://theses.hal.science/tel-00069797>

Submitted on 19 May 2006

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

École doctorale Sciences de l'Univers de l'Environnement et de l'Espace

Formation Doctorale Océan, Atmosphère et Environnement

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 20 juin 2005

en vue de l'obtention du grade de

Docteur de l'Université Paul Sabatier

Discipline : Physique et Chimie de l'Atmosphère

par

Christelle MICHEL

Titre :

L'aérosol de combustion dans une région en grande mutation, l'Asie

Composition du jury

| | |
|-----------------------------|---------------------------------------|
| <i>Président :</i> | Robert Rosset |
| <i>Rapporteurs :</i> | Bruno Sportisse Claire Granier |
| <i>Examineurs :</i> | Jean-Marie Grégoire Hélène Cachier |
| <i>Invité :</i> | Bertrand Bessagnet |
| <i>Directeur de Thèse :</i> | Catherine Lioussé |

Mis en page avec la classe thloria.

Résumé

Une source majeure d'incertitude dans l'estimation de l'impact climatique des aérosols est directement lié à notre connaissance des émissions gazeuses et particulaires. Ceci est particulièrement vrai en Asie, où une forte empreinte régionale est observée, avec différents types d'émissions, dépendant de la grande hétérogénéité de végétations et climats (émissions de feux de biomasse) et de l'évolution rapide de la population, de l'urbanisation et de l'industrialisation (émissions de fuels fossiles et de biofuels).

Mon travail de thèse a eu pour but, tout d'abord, de développer un inventaire d'émissions de gaz et particules issues des feux de biomasse pour les campagnes ACE-Asia (Aerosol Characterization Experiment) et TRACE-P (Transport and Chemical Evolution over the Pacific), de mars à mai 2001. Pour ce faire, j'ai mis en œuvre une méthodologie la plus adaptée à mon étude, qui repose sur la cartographie des surfaces brûlées (projet GBA2000 (Global Burnt Area 2000) [Tansey *et al.*, 2005]).

Les résultats de cette étude, ABBI (Asian Biomass Burning Inventory) [Michel *et al.*, 2005] ont été comparés avec un autre inventaire d'émissions de feux de végétation (ACCESS : ACE-Asia and TRACE-P Modelling and Emission Support System) [Streets *et al.*, 2003], construit, non pas à partir des surfaces brûlées, mais à partir des pixels de feux actifs. Cette comparaison illustre les limitations de l'utilisation des pixels de feux dans l'établissement des cartes d'inventaires d'émissions par les feux de biomasse, tout en soulignant l'importance et la pertinence de la méthode retenue dans mon étude. Une comparaison avec les données de l'année 2000, obtenues selon la même procédure, souligne toute l'importance des variations interannuelles.

L'inventaire ABBI a été introduit dans le modèle méso-échelle MésoNH-C couplé au module aérosol ORISAM (ORganic and Inorganic Spectral Aerosol Module) [Bessagnet, 2000]. Une attention particulière a porté sur l'étude du transport des émissions de feux de végétation à travers le continent asiatique. Des comparaisons entre les données simulées et les mesures in-situ et aéroportées ont montré des résultats satisfaisants dans certains cas, mais ont également fait encore apparaître certaines limitations. Des tests de sensibilités ont été effectués pour comprendre l'origine de ces différences, avec tout d'abord une deuxième simulation avec MésoNH-C-ORISAM effectuée avec l'inventaire ACCESS pour

étudier l'impact des émissions de feux. Le module ORISAM dans sa version 0D a été ensuite utilisé pour mettre en évidence de manière détaillée les paramètres contrôlant la formation de l'aérosol secondaire au sein du modèle. Au total, tout en faisant ressortir l'importance majeure des inventaires d'émissions gazeuses et particulaires à l'échelle continentale, ce travail va au delà de ce thème, en montrant notamment l'apport du modèle d'aérosol ORISAM à l'analyse et la compréhension des processus de chimie hétérogène dans les épisodes de pollution affectant l'Asie.

Abstract

One of the main uncertainties in the estimate of the climatic impact of aerosols is linked to our knowledge of gases and aerosols emissions. This is particularly crucial over Asia, where a strong regional fingerprint is observed, with different emission types, depending on the various vegetation and climate conditions (biomass burning emissions) and on the very fast changes of the population and industrialization (biofuel and fossil fuel emissions).

The main goal of this work was first to derive a biomass burning inventory for gases and particles over Asia for the 2001 ACE-Asia (Aerosol Characterization Experiment) and TRACE-P (Transport and Chemical Evolution over the Pacific) campaigns (March to May 2001).

I implemented a methodology that is the most adapted to my study, and based on the burnt area cartography (GBA-2000 project (Global Burnt Area 2000) [Tansey *et al.*, 2005]).

The results of this study, ABBI (Asian Biomass Burning Inventory) [Michel *et al.*, 2005] have been compared with another biomass burning emission inventory (ACCESS: ACE-Asia and TRACE-P Modelling and Emission Support System) [Streets *et al.*, 2003], built from fire counts and not from burnt areas. This comparison shows the limits of the use of fire counts in the emission inventory maps and underlines the importance and the relevance of the method used in my study.

A comparison with the year 2000 emission inventory, obtained with the same method, underlines the importance of the interannual variations.

The ABBI inventory has been introduced in the Méso-NH-C mesoscale model combined with an aerosol module: ORISAM (ORGanic and Inorganic Spectral Aerosol Module) [Bessagnet, 2000]. I have focused in particular on the impact of the burnt vegetation emissions over the asian continent.

Comparisons between simulated and ground and airborne measured data showed satisfactory results in some cases, but showed also some limits. Sensitivity tests have been carried out firstly to test the impact of fire emissions by considering the ACCESS inventory in Méso-NH-C-ORISAM, secondly to highlight the parameters deemed in the model to form secondary organic aerosols by using the ORISAM module in his 0D version.

On the whole, this work emphasizes the major importance of the inventories of gas and particle emissions at a continental scale on atmospheric chemistry. Moreover, it also shows the contribution of the ORISAM module to the analysis and understanding of the heterogeneous chemical processes in the pollution episode in Asia.

Avant Propos

Je tiens tout d'abord à remercier Cathy Liousse pour avoir dirigé mes travaux de thèse. Je lui suis reconnaissante pour avoir su orienter judicieusement mon travail et pour m'avoir laissé une grande autonomie dans mes activités de recherche.

Je remercie tous les membres du jury, particulièrement Claire Granier et Bruno Sportisse pour le temps consacré à ce travail et Robert Rosset pour avoir présidé mon jury de thèse.

Merci également à Jean-Marie Grégoire pour m'avoir accueillie au sein de son équipe au CCR à Ispra et pour ses précieux conseils et sa grande disponibilité. Il a su m'enseigner patiemment les connaissances indispensables sur l'observation satellitale et la détection des feux de végétation.

Je remercie Robert Delmas pour m'avoir accueillie au Laboratoire d'Aérologie pendant ces années de thèse. Merci à tous les membres de l'équipe SAM qui ont contribué de près ou de loin à la réalisation de ce travail, en particulier Céline Mari et Frédéric Cousin. Mes remerciements vont également à Jean-Pierre Pinty, Bertrand Bessagnet et Bruno Guillaume pour leurs conseils scientifiques et leurs aides techniques.

Merci à tous les ITA du Laboratoire pour leur disponibilité et leur efficacité. Je pense notamment à Juan et Didier pour leur aide (et grande patience !) sur MésoNH, Jacqueline, Serge, Laurent et tout le service informatique. Merci également à Annette, Monique, Karine, Gisèle et Marie-Isabelle.

Un grand merci à toute l'équipe Global Vegetation Monitoring : Kevin, Ilaria, Luigi, Stephan, et aux personnes qui ont fait que ce séjour fut des plus agréables : Silvia, Martin, Fréd, Paulo ainsi que les membres des équipes de foot et de volley.

Le laboratoire d'aérologie a été un lieu de vie où pendant plusieurs années j'ai pu y côtoyer des personnes sympathiques et rayonnantes de bonne humeur. J'ai en particulier une pensée chaleureuse pour Frédéric, Jérôme, Paul, Bastien, Aline, Clotilde, Marie-Pierre, Franck, Marc, Philippe, Armand, Sylvain, Véronique et tous ceux que je croisais chaque jour à la pause-café pour avoir supporté mes sautes d'humeur et su m'écouter lors des moments difficiles.

Je remercie affectueusement Frédérik Meleux pour m'avoir encouragée à entamer cette grande aventure et soutenu au cours de ces années. Merci également à Yann pour son écoute et sa présence dans la dernière ligne droite, Kitty et Toinou, pour leur fidèle amitié malgré la distance.

Merci à tous les autres : la Piau-team, l'équipe de foot loisir du LA, le RSSO, le stage Raynaud et ses participants pour tout ces moments agréables partagés.

Enfin, je remercie ma famille pour m'avoir soutenue pendant ce travail.

... Et il y a tous les autres, que j'oublie, mais à tous j'adresse de tout cœur un grand merci pour cette tranche de vie passée ensemble.



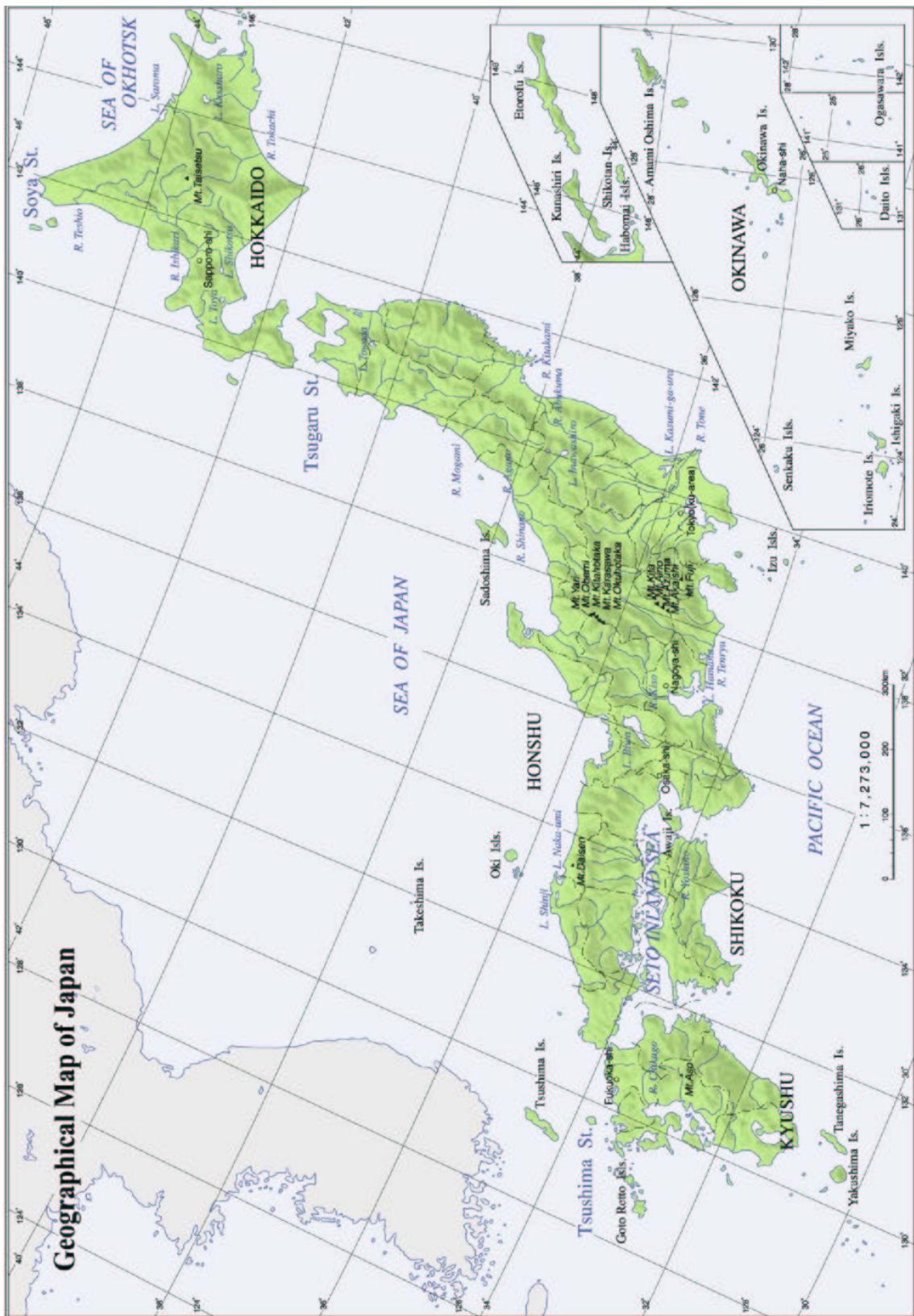


Table des matières

Introduction

Chapitre 1

L'Asie: une région en grande mutation

| | | |
|---------|--|----|
| 1.1 | Importance des émissions de gaz et de particules en Asie | 8 |
| 1.1.1 | Généralités | 8 |
| 1.1.2 | Les feux de végétation | 12 |
| 1.1.2.1 | Origine des feux en Asie | 12 |
| 1.1.2.2 | Combustion et Emissions | 13 |
| 1.1.2.3 | Impact des émissions atmosphériques par les feux de végétation | 15 |
| 1.1.3 | Fuels fossiles et biofuels | 17 |
| 1.2 | Les aérosols en Asie | 20 |
| 1.2.1 | Généralités | 21 |
| 1.2.1.1 | Caractéristiques microphysiques des aérosols | 21 |
| 1.2.1.2 | L'aérosol carboné | 22 |
| 1.2.1.3 | Description des impacts des aérosols | 23 |
| 1.2.2 | Description des études existantes sur l'aérosol en Asie | 27 |
| 1.3 | La campagne ACE-Asia | 30 |
| 1.3.1 | Cadre général de la campagne | 30 |
| 1.3.2 | Moyens mis en place | 31 |
| 1.3.3 | Conditions météorologiques pendant la campagne ACE-Asia | 33 |
| 1.3.4 | Principaux résultats de la campagne | 36 |
| 1.4 | Conclusion | 37 |

Chapitre 2

Développement d'un inventaire d'émissions de feux de biomasse: ABBI

| | | |
|---------|---|----|
| 2.1 | Contexte de l'étude | 40 |
| 2.2 | Développement de l'inventaire d'émissions ABBI | 41 |
| 2.2.1 | Le choix de la méthode: utilisation des cartes de surfaces brûlées obtenues par imagerie satellitale | 41 |
| 2.2.2 | Elaboration des cartes de surfaces brûlées | 42 |
| 2.2.2.1 | Description de la méthode | 42 |
| 2.2.2.2 | Problèmes rencontrés et validation | 43 |
| 2.2.3 | Développement de l'inventaire d'émissions pour les gaz et les parti- cules | 45 |
| 2.3 | Les principaux résultats | 47 |
| 2.4 | Publication | 50 |

| |
|--|
| <p>Chapitre 3</p> <p>Modélisation de l'aérosol carboné</p> |
|--|

| | | |
|---------|--|----|
| 3.1 | Introduction | 70 |
| 3.2 | Présentation du modèle ORISAM | 71 |
| 3.2.1 | Traitement général des aérosols | 71 |
| 3.2.2 | Choix de la représentation granulométrique | 72 |
| 3.2.3 | Le modèle microphysique | 73 |
| 3.2.3.1 | Coagulation | 73 |
| 3.2.3.2 | Absorption et condensation | 74 |
| 3.2.4 | Le modèle thermodynamique pour les espèces minérales | 75 |
| 3.2.5 | Formation des aérosols organiques secondaires | 75 |
| 3.2.5.1 | Description générale | 75 |
| 3.2.5.2 | Modélisation de la formation des SOA | 76 |
| 3.2.6 | Le modèle de cinétique chimique | 80 |
| 3.2.6.1 | Description | 80 |
| 3.2.6.2 | Modification du schéma RACM pour la formation des SOA | 80 |
| 3.3 | Le modèle MésoNH-C | 82 |
| 3.3.1 | Présentation de MésoNH-C | 82 |
| 3.3.2 | Couplage MésoNH-C/ORISAM | 85 |
| 3.3.2.1 | Modification du schéma ReLACS | 85 |
| 3.3.2.2 | Nucléation | 86 |
| 3.3.2.3 | Dépôt sec | 87 |

| | | |
|---------|---|----|
| 3.3.2.4 | Chimie hétérogène | 88 |
| 3.4 | Choix des conditions d'initialisation de MésoNH-C-ORISAM | 89 |
| 3.4.1 | Configuration du modèle pour notre étude | 89 |
| 3.4.2 | Choix d'initialisation météorologique et de la chimie gazeuse | 89 |
| 3.4.3 | Condition d'initialisation des particules | 92 |
| 3.5 | Conclusion | 94 |

Chapitre 4

ACE-Asia : Etude de l'aérosol carboné avec MésoNH-C

| | | |
|---------|--|-----|
| 4.1 | Introduction | 99 |
| 4.2 | Analyse météorologique des journées d'études | 99 |
| 4.2.1 | Choix de la période d'étude | 99 |
| 4.2.2 | Situation synoptique générale | 100 |
| 4.2.3 | Transport des polluants émis par les feux de biomasse sur Pékin | 104 |
| 4.2.3.1 | Zoom sur le traceur CO_{feux} | 104 |
| 4.2.3.2 | Importance relative des concentrations du traceur CO_{feux} sur le contenu global en CO à Pékin | 114 |
| 4.2.3.3 | Analyse de la distribution verticale de l'aérosol carboné sur Pékin | 115 |
| 4.2.4 | Conclusion | 119 |
| 4.3 | Etude de l'aérosol carboné durant les vols du 27 avril 2001 | 121 |
| 4.3.1 | Description des plans de vols | 121 |
| 4.3.2 | Comparaison dynamique des vols | 122 |
| 4.3.3 | Comparaison des concentrations gazeuses obtenues par mesures et simulations | 126 |
| 4.3.4 | Comparaison des concentrations en aérosols obtenues par mesures et modélisation | 130 |
| 4.4 | Comparaison des concentrations de BC et OC obtenues par mesures et simulations avec le Twin-Otter pour les vols des 26, 27 et 28 avril 2001 | 136 |
| 4.5 | Comparaison des concentrations d'aérosols aux stations de mesures | 142 |
| 4.6 | Conclusion | 150 |

Chapitre 5

Sensibilité du modèle aux facteurs ayant un impact sur les concentrations de carbone organique

| | | |
|---------|---|-----|
| 5.1 | Introduction | 154 |
| 5.2 | Test de sensibilité aux émissions | 154 |
| 5.2.1 | Cadastre d'émissions de feux de biomasse | 154 |
| 5.2.2 | Comparaison des simulations effectuées avec les cadastres ABBI et ACCESS | 155 |
| 5.2.3 | Conclusion | 164 |
| 5.3 | Etude de sensibilité avec le module ORISAM | 164 |
| 5.3.1 | Comparaison des simulations Méso-NH-C-ORISAM et ORISAM-OD | 166 |
| 5.3.1.1 | Conditions d'initialisation du module ORISAM-0D | 166 |
| 5.3.1.2 | Résultats | 168 |
| 5.3.2 | Tests de sensibilité | 168 |
| 5.3.2.1 | Test sur les conditions d'initialisation | 171 |
| 5.3.2.2 | Test sur le choix des concentrations de fond des oxydants . | 174 |
| 5.3.2.3 | Test sur le choix des concentrations de fond gazeuses . . . | 178 |
| 5.4 | Conclusion | 179 |

| |
|----------------------------|
| Conclusion Générale |
|----------------------------|

| | |
|--|------------|
| Annexe A Procédure de traitement GBA-2000/Russie | 209 |
| A.1 Module d'extraction | 210 |
| A.2 Module de prétraitement | 210 |
| A.3 Module de détection des pixels brûlés | 214 |
| A.4 Module de post-traitement | 216 |
| A.4.1 Procédure 1 | 216 |
| A.4.2 Procédure 2 | 216 |
| Annexe B Inventaire d'émissions particulières pour les fuels fossiles | 221 |
| B.1 Inventaire de Cooke | 221 |
| B.2 Mise à jour de l'inventaire d'émissions | 224 |
| Annexe C Publication : 0D-Modelling of carbonaceous aerosols | 233 |
| C.1 Introduction | 235 |
| C.2 The modelling procedure | 237 |
| C.2.1 The 0-D aerosol model | 237 |
| C.2.2 Aerosol Model Initialization | 238 |
| C.3 Modelling Results | 240 |

| | | |
|---|---|------------|
| C.3.1 | Simulated aerosol evolution | 240 |
| C.3.2 | Comparison between experimental and modelled values | 241 |
| C.3.3 | Sensitivity tests upon initialisation conditions | 243 |
| C.3.3.1 | Impact of temperature and relative humidity on SOA formation | 243 |
| C.3.3.2 | Sensitivity tests for SOA formation according to aerosol and gaseous precursor initialization | 243 |
| C.4 | Conclusion | 245 |
| Annexe D Concentrations gazeuses de fond | | 253 |
| Annexe E Conduite de Projet de Recherche | | 255 |
| E.1 | Présentation du Projet | 258 |
| E.1.1 | Contexte | 258 |
| E.1.2 | Mon projet de recherche | 260 |
| E.2 | Ressources financières et humaines du Projet | 263 |
| E.3 | Gestion de Projet | 265 |
| E.4 | Connaissances et compétences développées durant la thèse | 270 |
| E.5 | Evaluation des retombées du Projet | 273 |
| E.6 | Mes conclusions | 274 |

Introduction

Même s'il est beaucoup plus complexe à évaluer que celui des gaz à effet de serre (GES), le rôle climatique des aérosols de combustion est maintenant avéré. De plus, il est au centre de nombreux débats, depuis qu'une étude américaine récente [Hansen and Sado, 2001] a montré que pour réduire le réchauffement climatique, l'effort devrait porter non seulement sur la réduction des émissions de GES, mais également sur les aérosols carbonés. Une étude plus récente encore a même suggéré à cet égard qu'il serait plus efficace de réduire les émissions d'aérosol carboné que celles des gaz à effet de serre [Jacobson, 2002], car le temps de vie des aérosols est bien plus court que celui des GES et, par suite, leur effet plus rapidement ressenti. L'impact climatique est encore nettement plus marqué au niveau régional : des études récentes ont montré que le fort accroissement des combustions d'énergies fossiles dans les pays industrialisés depuis les années 1960 seraient à corrélérer aux sécheresses qui ont fait près d'un million de morts du Sénégal à l'Éthiopie en 1972, 1975, 1984 et 1985. Pendant cette période en effet, les précipitations ont diminué de 20% à 50% dans la région du Sahel [Rotstayn and Lohmann, 2002].

Nous pouvons citer un autre exemple issu des travaux de Menon *et al.* (2002) :

« Les pluies diluviennes qui frappent chaque année la Chine et provoquent des inondations catastrophiques ont-elles un lien avec le grand « nuage brun » asiatique, cette énorme pollution atmosphérique qui recouvre l'Asie du Sud-Est, la Chine et l'Inde? Une simulation climatique réalisée par des scientifiques américains et chinois semble le démontrer et accuse les particules de suie présentes dans ce nuage de modifier le climat et le régime des pluies chinoises. » [Extrait du « Le Monde, 12/11/02 »].

Actuellement et malgré ces premières études, l'aérosol de combustion est toujours ab-

sent des réglementations environnementales mondiales fixées par le protocole de Kyoto. Et pourtant sa prise en compte est justifiée par ses propriétés remarquables.

L'aérosol de combustion est principalement composé d'aérosol carboné constitué de matière organique plus ou moins fonctionnalisée. On a coutume de le séparer en deux fractions, selon leurs propriétés physico-chimiques car on ne connaît pas sa composition chimique analytique détaillée. On distingue donc la fraction carbone suie (BC) de la fraction carbone organique (OC). Cette définition est au centre des préoccupations de la communauté scientifique : la séparation de l'aérosol carboné en ses deux fractions OC et BC est entièrement liée à la méthode d'analyse adoptée après échantillonnage.

Ces deux fractions possèdent des propriétés physiques contrastées : par exemple le carbone suie absorbe le rayonnement solaire (il « réchauffe » l'atmosphère) tandis que le carbone organique diffuse le rayonnement solaire (il « refroidit » l'atmosphère). Le carbone suie est émis directement à la source (primaire), alors que le carbone organique est d'origine à la fois primaire et secondaire (formé à partir de précurseurs gazeux). L'impact de l'aérosol de combustion est très complexe du fait de la grande variabilité de sa composition chimique, de sa taille et de la distribution « patchwork » des sources de combustion dont il est issu ; les effets radiatifs et climatiques induits sont donc très disparates (réchauffement/refroidissement, modifications du régime de précipitations inondations/sécheresse). De récentes études ont mis en évidence que de nombreux problèmes de santé publique (asthme, bronchite chronique etc..) attribués aux particules étaient directement liées à ses propriétés.

La modélisation numérique est l'outil incontournable pour étudier la répartition spatio-temporelle de l'aérosol aux échelles globale et régionale, son transport et ses impacts. Ce n'est que très récemment, qu'une attention particulière est portée à la prise en compte de la complexité de l'aérosol carboné. Des simplifications majeures sont encore trop souvent appliquées, étant à l'origine d'incertitudes importantes : prise en compte incomplète de la composition chimique de l'aérosol, pas d'interaction avec les gaz ... De plus, l'initialisation des simulations nécessite une description adéquate des sources d'émissions. Or, ces données d'entrée, essentielles en terme d'initialisation, sont encore très mal quantifiées,

notamment pour les pays émergents ou les zones géographiques complexes. De même, les mesures sont peu nombreuses, voire inexistantes, dans ces régions pour la validation des résultats de modèles. En vue de pallier ce manque de données, de nombreuses campagnes régionales ont été mises en place durant ces dernières décennies.

Un intérêt tout particulier a été porté à l'Asie. Le choix de cette région a été motivé par la nécessité d'étudier cette zone en grande mutation où l'abondance relative de l'aérosol ne cesse d'augmenter, conséquence de la croissance explosive des activités anthropiques (liées à l'homme) polluantes. De plus, une forte empreinte régionale est observée avec différents types d'émissions, selon la grande hétérogénéité des végétations et des climats (émissions de feux de biomasse (végétation)), ainsi que de l'évolution rapide de la population et de l'industrialisation (émissions de combustion de fuels fossiles et biofuels).

Cet intérêt s'est manifesté par le développement de plusieurs programmes dont le point commun vise à documenter la pollution atmosphérique de cette région : INDOEX (Indian Ocean Experiment), TRACE-P (Transport and Chemical Evolution over the Pacific) et le dernier en date, ACE-Asia (Asian Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment). Cette dernière campagne a été mise en avant par l'IGAC (International Global Atmospheric Chemistry) avec pour objectif l'amélioration de notre compréhension de l'impact des aérosols sur le système climatique.

Mon sujet de thèse s'inscrit au cœur de cette problématique. Il a pour objectif principal de proposer un inventaire des sources d'émissions de l'aérosol de combustion en Asie, pour étudier son transport et ses impacts dans le cadre de la campagne ACE-Asia. Pour mener à bien cette étude, j'ai choisi d'effectuer ces travaux à l'échelle régionale avec le modèle MésoNH-C 3D couplé au module ORISAM (ORGanic and Inorganic Spectral Aerosol Module), permettant de tenir compte de la formation et de l'évolution physico-chimique de l'aérosol et de son transport. Les résultats de ces simulations avaient pour but de valider ce modèle de transport couplé au module aérosol, une version encore en cours de développement au début de ma thèse, sur un domaine complexe. Avant de

débuter ces travaux de modélisation, il était tout d'abord nécessaire de disposer d'une bonne caractérisation des émissions sur cette zone et pour cette période. Aussi il m'a fallu développer un inventaire d'émissions de gaz et de particules carbonées issues des feux de végétation dédié, inventaire inédit qui n'existait pas au début de mes travaux. Pour ce faire, une méthode pionnière basée sur des surfaces brûlées détectées par imagerie satellitale a été développée.

Cette démarche est en relation avec les nombreuses interrogations jalonnant l'étude de l'aérosol précédemment exposées. Le chapitre 1 de ce manuscrit décrit la variabilité des sources d'émissions asiatiques gazeuses et particulaires, leur importance à l'échelle globale et leur impact, soulignant ainsi les différents éléments d'incertitudes. Après un bref rappel théorique des propriétés de l'aérosol carboné, il rapporte l'état d'avancement des connaissances sur l'impact de l'aérosol en Asie.

Le chapitre 2 présente la méthode de développement de l'inventaire d'émissions des feux de végétation ABBI (Asian Biomass Burning Inventory) et les résultats associés pour la période d'ACE-Asia, ainsi qu'une comparaison avec les résultats pour l'année 2000 (produits GBA-2000 (Global Burnt Area)). Enfin, une étude comparative avec un inventaire basé sur une autre méthode (ACCESS (ACE-Asia and TRACE-P Modelling and Emission Support System)) est proposée.

Le deuxième volet de mes recherches, exposé aux chapitres 3, 4 et 5 est axé sur la modélisation de l'aérosol avec le modèle MésoNH-C-ORISAM. Tout d'abord (chapitre 3), j'ai effectué une présentation simplifiée des processus « aérosols » introduits dans ORISAM, de son couplage avec MésoNH-C. Enfin, les conditions d'initialisation spécifiques à notre étude sont détaillées, en m'appuyant en particulier sur les émissions obtenues par la méthode décrite au chapitre 2. Au chapitre suivant (chapitre 4), les résultats de simulation sont présentés et discutés. J'ai porté une attention particulière au transport des émissions de feux à travers le continent asiatique. Des comparaisons entre les données simulées et les mesures ACE-Asia in situ et avion ont montré des résultats satisfaisants dans certains cas, mais ont également mis en évidence des problèmes que j'ai cherché à comprendre à l'aide de tests de sensibilité, présentés au chapitre 5. Tout d'abord, je

présente les résultats d'une deuxième simulation avec MésoNH-C-ORISAM effectuée avec l'inventaire ACESS (émissions des feux) pour étudier l'impact des émissions. Le module ORISAM dans sa version OD m'a permis ensuite de mettre en évidence les paramètres contrôlant la formation de l'aérosol au sein du modèle.

Enfin, le chapitre E présente une analyse personnelle de ce projet de recherche ; cette démarche optionnelle s'inscrit dans le cadre de la valorisation des travaux de thèse à l'initiative des écoles doctorales françaises.

Chapitre 1

L'Asie : une région en grande mutation

Sommaire

| | | |
|------------|---|-----------|
| 1.1 | Importance des émissions de gaz et de particules en Asie . . | 8 |
| 1.1.1 | Généralités | 8 |
| 1.1.2 | Les feux de végétation | 12 |
| 1.1.3 | Fuels fossiles et biofuels | 17 |
| 1.2 | Les aérosols en Asie | 20 |
| 1.2.1 | Généralités | 21 |
| 1.2.2 | Description des études existantes sur l'aérosol en Asie | 27 |
| 1.3 | La campagne ACE-Asia | 30 |
| 1.3.1 | Cadre général de la campagne | 30 |
| 1.3.2 | Moyens mis en place | 31 |
| 1.3.3 | Conditions météorologiques pendant la campagne ACE-Asia . . | 33 |
| 1.3.4 | Principaux résultats de la campagne | 36 |
| 1.4 | Conclusion | 37 |

1.1 Importance des émissions de gaz et de particules en Asie

1.1.1 Généralités

Les émissions représentent les quantités de gaz ou de particules rejetés dans l'atmosphère. La nature et la quantité des composés émis, ainsi que leurs distributions géographiques sont inhomogènes, puisque les émissions dépendent du niveau de développement des pays, des modes de vie, de la présence ou non de végétation et de leur type et des fuels utilisés.

En Asie, ces émissions sont pour la grande majorité anthropiques, c'est à dire causées par les pratiques humaines qui sont en constante augmentation liée à l'accroissement démographique. Les émissions naturelles sont également très importantes pour certains composés gazeux et particulaires. Par exemple, la majorité du méthane asiatique provient de la culture du riz, des rejets des animaux et de l'enfouissement des déchets, avec une contribution relative de chaque type de source très variable d'un pays à l'autre. Ainsi, les rizières sont les sources prépondérantes de méthane en Chine, alors que pour l'Inde, la source majoritaire tient aux émissions par les rejets des animaux. Les émissions naturelles de particules (aérosols d'origines volcaniques, sels marins, poussières désertiques et aérosols biogéniques), sont également très importantes. Par exemple, la production de poussières depuis les déserts chinois est estimée à environ 800 Tg.an^{-1} [Zhang *et al.*, 1997]. Toutefois, nous ne parlerons pas ici des émissions naturelles gazeuses et particulaires.

Nous nous intéresserons donc particulièrement aux émissions provenant de la combustion. Trois familles peuvent être dégagées :

- les fuels fossiles : sources d'énergies fossiles utilisées au niveau industriel, domestique, routier ...
- les biofuels : bois, résidus agricoles, bouses animales ... brûlés dans les fourneaux pour la cuisine ou le chauffage.
- les feux de biomasse : végétation (savane, forêt, déchets agricoles ...) brûlée à « ciel

ouvert ».

Le tableau 1.1 présente les émissions asiatiques des principaux composés atmosphériques gazeux et particulaires pour l'année 1995 pour ces catégories, ainsi que leurs contributions mondiales. Les données gazeuses sont extraites de l'inventaire EDGAR (Emissions Database for Global Atmospheric Research [Olivier *et al.*, 1996 ; Olivier *et al.*, 1999 ; Olivier and Berdowski, 2001]). Les données de BC sont extraites de Lioussé *et al.* (2004) basée sur l'inventaire de Cooke *et al.* (1999) et les travaux de Michel (2001) (voir annexe B). Dans cette étude, l'Asie est constituée de l'Asie du sud-est, du Sud de l'Asie, de l'Est de l'Asie et du Japon.

Il est intéressant de noter que la contribution moyenne de l'Asie sur la totalité de ces émissions gazeuses et particulaires mondiales est d'environ 32% en 1995. Cette importance relative risque de croître dans les prochaines années. En effet, les travaux de Lioussé *et al.* (2004) montre que la Chine, qui représente environ 20% des émissions globales en 1995, contribuerait en 2100 à 30% des émissions mondiales, dans le cas d'un scénario d'émissions « sale ». Par contre, selon ce même scénario, la contribution de l'Inde par rapport aux émissions globales resterait constante, de l'ordre de 10%.

La source prédominante pour les espèces gazeuses est la source « biofuels », qui possède la plus forte contribution (64% en moyenne) par rapport aux émissions globales. Le secteur industriel est également une source importante pour le CO, les NO_x et les NMVOC (organiques carbonés volatils non méthaniques). Pour le carbone suie, la contribution des sources « biofuels » et « industriel » est identique : 52,2% des émissions globales dans ces secteurs. Nous pouvons noter que les émissions de BC issues du trafic automobile (0,35 TgC/an) représentent 44% des émissions du secteur « fuels fossiles ».

Étudions de plus près les émissions par les feux de biomasse. Le tableau 1.2 présente la comparaison des résultats des émissions données pour l'Asie par l'inventaire EDGAR 3.2 pour l'année 1995 et l'inventaire ACESS (ACE-Asia and TRACE-P Modelling and Emission Support System) [Streets *et al.*, 2003] pour l'année 2000. Cette comparaison (biaisée puisque ces deux inventaires font référence à deux années différentes) souligne qu'il existe une grande différence entre les estimations des émissions. De manière générale,

| | CO | | NO _x | | SO ₂ | | NMVOC | | BC | |
|---------------------------|---------------|-------------------|--|-------------------|----------------------------|-------------------|------------------|-------------------|-----------------|-------------------|
| | CO Asie Tg | contribution % | NO ₂ Asie Tg NO ₂ | contribution % | SO ₂ Asie Tg | contribution % | NMVOC Asie Tg | contribution % | BC Asie Tg C | contribution % |
| Total | 262,2 | 30,5 | 31,1 | 27,94 | 53,7 | 37,84 | 41,5 | 26,00 | 2,99 | 33,4 |
| fuel fossile | 64,6 | 23,2 | 22,3 | 26,7 | 43,9 | 39,5 | 15,0 | 19,0 | 0,79 | 33,9 |
| biofuel | 147,3 | 63,6 | 4,7 | 61,0 | 2,1 | 72,4 | 17,5 | 62,5 | 0,93 | 52,2 |
| industriel | 13,6 | 42,8 | 3,0 | 49,2 | 7,3 | 29,2 | 6,2 | 24,4 | 1,08 | 52,2 |
| agriculture | 3,3 | 20,1 | 0,1 | 14,3 | 0,0 | 0,0 | 0,4 | 20,0 | - | - |
| feux de biomasse | 32,2 | 10,8 | 0,9 | 6,9 | 0,2 | 8,0 | 1,7 | 7,6 | 0,13 | 4,7 |
| traitement des déchets | 1,3 | 34,2 | 0,0 | 0,0 | 0,0 | - | 0,7 | 25,9 | - | - |

TAB. 1.1 – Emissions de CO, NO_x, SO₂, NMVOC (organiques carbonés volatils non-méthaniques)(en Tg) et BC (en TgC) en Asie pour l'année 1995 et contribution de l'Asie pour chaque espèces par rapport aux valeurs mondiales (en %) (d'après l'inventaire EDGAR 3.2 pour l'année 1995 pour les gaz [Olivier et al., 1996 ; Olivier et al., 1999 ; Olivier and Berdowski, 2001] et Lioussse et al., (2004) pour BC.

| | ACCESS (FF + BF) | EDGAR 3.2 (FF + BF) | ACCESS BB | EDGAR 3.2 BB |
|---|-----------------------------------|--------------------------------------|----------------------------|-------------------------------|
| CO (Tg(CO)/an) | 212 | 230 | 67,0 | 32,2 |
| SO ₂ (Tg(SO ₂)/an) | 33,93 | 53,5 | 0,37 | 0,2 |
| NO _x (Tg(NO ₂)/an) | 24,0 | 30,2 | 2,8 | 0,9 |
| NMVOC (Tg/an) | 40,2 | 39,8 | 12,0 | 1,7 |

TAB. 1.2 – Emissions de CO, NO_x, SO₂ et NMVOC en Asie pour les inventaires ACCESS et EDGAR 3.2 pour les émissions fuels fossiles et biofuels (FF + BF) et pour les feux de biomasse (BB).

ces deux inventaires sont en bon accord pour les émissions anthropiques. On peut noter par exemple qu'il y a accord entre la valeur de CO anthropique donnée par ACCESS (212 Tg pour l'année 2000) et celle donnée par EDGAR (230 Tg pour l'année 1995). Par contre, les valeurs estimées pour les feux de végétation présentent des différences importantes entre les deux inventaires. En effet, la valeur attribuée pour le CO « feux de biomasse » varie du simple au double entre ACCESS et EDGAR. De même, nous pouvons noter qu'il existe un facteur 10 pour les émissions de COV entre ces deux inventaires.

Levine (1991) avait démontré que les feux contribueraient à plus de 30% des émissions mondiales de CO et de particules carbonées, et de 20% des émissions de NMVOC et des NO_x. D'après les inventaires ACCESS et EDGAR, la contribution des feux en Asie représente 12% et 24% du CO selon EDGAR et ACCESS respectivement, 4% et 23% des émissions de NMVOC et 3% et 10% des émissions de NO_x.

Nous pouvons également comparer les valeurs des émissions de particules de BC, données par plusieurs auteurs pour les fuels fossiles et les feux de biomasse en Asie. Cooke and Wilson (1996) estiment que 2 TgC/an de BC sont émis à partir des fuels fossiles comparés à 0,25 TgC/an provenant des feux de biomasse. D'après les travaux de Liousse *et al.* (2004) précédemment exposés, les valeurs correspondantes sont 1,87 TgC/an pour les fuels fossiles et 0,13 TgC/an pour les feux de biomasse. D'après l'étude de Bond *et al.* (2004), en 1996, les combustions de fuels fossiles auraient émis 2,6 TgC de BC et les feux de biomasse 0,49 TgC de BC.

L'estimation de ces contributions, si différentes d'un inventaire à l'autre, illustre l'importante incertitude qui existe sur la connaissance des émissions particulières et gazeuses, en particulier des émissions des feux de biomasse.

Dans les paragraphes suivants, nous allons détailler plus particulièrement les émissions liées aux sources de fuels fossiles et biofuels, et de feux de biomasse.

1.1.2 Les feux de végétation

Les feux de végétation résultent en majorité des activités humaines et des pratiques agricoles. Seulement 10 à 30% des feux de végétation sont provoqués par des causes naturelles (éclaircs ...) [Seiler and Crutzen, 1980]. Toutefois, d'après Lavoué *et al.* (2000), dans les écosystèmes boréaux présents en Sibérie, au nord de la Chine et de la Mongolie, les feux peuvent être aussi d'origine naturelle.

On note que plus de 70% des quantités de végétation qui brûle sont situées en régions tropicales et subtropicales. La plupart des feux aux moyennes latitudes de l'hémisphère nord sont des feux de déchets agricoles et de bois pour la production industrielle ayant peu d'impact à l'échelle mondiale.

1.1.2.1 Origine des feux en Asie

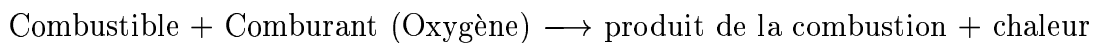
Les feux de forêt peuvent être d'origines contrôlées mais également accidentels, délibérés ou non. Le brûlage contrôlé est utilisé comme technique d'agriculture pour le défrichage et la préparation des sols pour l'ensemencement. Dans ce cas, l'utilisation de cette pratique se fait soit de façon définitive, lorsque les forêts sont remplacées par des champs pour l'agriculture ou des pâturages, soit pour quelques années, après lesquelles, la zone est abandonnée pour la repousse de forêt. En effet, le brûlage des forêts permet une meilleure repousse de l'herbe par élimination des mauvaises herbes et des buissons, en évitant l'accumulation de la litière. Sans ces feux, certaines zones seraient rapidement envahies par les buissons et les arbustes et se transformeraient en forêt, rendant impossible le pâturage. Parfois, les feux sont utilisés pour régénérer les nutriments des sols, nutriments stockés

dans la végétation sèche, ou bien pour collecter des produits de la forêt comme le miel, les graines d'huiles, les fleurs, et même pour capturer des animaux sauvages. Ces feux contrôlés sont aussi utilisés pour la prévention des feux accidentels. De nombreuses pratiques existent, différentes selon le type de végétation. Par exemple, l'utilisation des feux pour la prévention des incendies accidentels à grande échelle, consiste en général à brûler une bande à la périphérie de la forêt, ou à brûler les forêts limitrophes, pratique généralisée en Inde. En Inde, les feux accidentels et les feux de défrichage affectent chacun 10.000 km² de végétation chaque année [Joshi, 1991].

Les feux des déchets agricoles sont eux principalement utilisés, outre leur utilisation comme fuel (voir paragraphe suivant), comme fertilisant. En effet, en certaines régions de l'Inde, les résidus agricoles des champs de coton sont directement brûlés dans les champs afin d'éviter l'invasion de nuisibles (insectes et parfois serpents). Cette pratique est également très fréquente dans les cultures de canne à sucre, après la récolte, pour détruire la végétation restante.

1.1.2.2 Combustion et Emissions

La combustion est une réaction exothermique qui peut être schématisée comme suit :



Le processus de combustion comporte la succession des phases suivantes :

- phase d'allumage : la biomasse est dégradée par contact avec une source de chaleur.
- pyrolyse : sous l'action de la chaleur, les composants du bois sont rapidement transformés en charbon, goudrons et composés volatils. Ce phénomène a lieu en même temps que les autres phases (phases « flammes » et de combustion lente).
- phase « flammes » (flaming) : des flammes sont formées par mélanges entre ces composés volatils et l'oxygène de l'air.
- phase d'incandescence : lorsque le flux gazeux produit par pyrolyse diminue, l'oxygène atteint le charbon superficiel et l'oxyde.
- phase de combustion lente (smoldering) : une fois le charbon consommé, la pyrolyse continue jusqu'à la phase d'extinction.

La durée de ces différentes phases dépend fortement du type de combustible et des conditions externes (météorologie, apport en oxygène ...) [Brocard, 1996]. La nature et la quantité de gaz et/ou de particules émis sont directement liés à la phase de combustion considérée. Deux phases majoritaires selon lesquelles la biomasse brûle sont à considérer : la phase « smoldering » et la phase « flaming ».

- **Smoldering (feux « couvant »)**

La phase de combustion lente se produisant à basses températures et faibles teneurs en oxygène, entraîne l'émission de nombreux composés réduits. Certains composés peuvent aussi se former par oxydation. Les émissions de composés sont produites par oxydation du charbon. Durant cette phase, un très grand nombre de composés faiblement oxydés est émis tels CO, CH₄, la plupart des NMHC (Non Methane HydroCarbure), l'ammoniac (NH₃), le chlorure de méthyle (CH₃Cl), la plupart des composés soufrés (H₂S, DMS...), des particules de carbone suie et de carbone organique [Cachier, 1998] avec une plus grande contribution du carbone organique que du carbone suie, ainsi que des particules à faible teneur en carbone [Lobert and Warnatz, 1993].

- **Flaming**

La combustion en phase « flammes » se fait en présence de grandes quantités d'oxygène. Les émissions provenant de la pyrolyse sont majoritairement oxydées en composés secondaires. Certains composés peuvent tout de même se retrouver sous formes réduites, mais leurs quantités sont bien moindres. Durant cette phase, une importante quantité d'espèces oxydées est donc émise, telles : CO₂, dioxyde de soufre (SO₂), des composés azotés (NO_x, N₂, N₂O) pour les espèces gazeuses [Lobert *et al.*, 1991 ; Crutzen and Andreae, 1990] ainsi que du carbone suie (BC) et du carbone organique. Par contre la contribution du carbone suie est supérieure à celle du carbone organique contrairement à la phase smoldering.

- **Zoom sur la formation des particules**

Les émissions de particules s'effectuent lors des deux types phases (flaming et smoldering). Cependant, la formation des particules a lieu préférentiellement dans les zones

pauvres en oxygène (smoldering). Au sein de la phase « flammes », certains composés volatils subissent des réactions de pyrolyse conduisant à la formation de HAP (hydrocarbures aromatiques polycycliques) gazeux ou particulaires, et de polyacétylènes, précurseurs du carbone suie [Masclat *et al.*, 1995 ; Rasbash and Drysdale, 1982]. Aussi, la composition chimique et la distribution en taille sont différentes suivant la phase considérée [Lobert and Warnatz, 1993].

Les aérosols émis par les feux de biomasse sont principalement de nature carbonée et sont majoritairement des particules de taille submicronique (plus de 90% en masse) [Andreae, 1983 ; Cachier *et al.*, 1985]. Cet aérosol de feu est essentiellement de nature organique. En effet, la composante carbone suie est relativement faible, et ne représente que 7% de la masse totale [Cachier *et al.*, 1995 ; Lioussse *et al.*, 1996 ; Andreae *et al.*, 1998]. Cet aérosol contient plusieurs éléments traces. Le potassium est le plus abondant pour les feux de savane (5,5% de la masse totale). Cet élément sert donc de traceur des feux de végétation. Un certain nombre d'espèces minérales est émis, issu des matières terrigènes [Cachier *et al.*, 1995], des cendres et des végétaux, notamment du fer et de l'aluminium pour les matières provenant du sol, dénotant un processus intense de remobilisation durant le feu [Gaudichet *et al.*, 1995]. Le vieillissement des particules émises par les feux est très rapide (dès les premières minutes après leur émission) [Lioussse *et al.*, 1995 ; Reid *et al.*, 1998], ce qui engendre une modification rapide de leur taille et de leur composition chimique.

Les processus de combustion, décrits dans le paragraphe 1.1.2.2, sont semblables pour les feux de savane et les feux de forêts. Par contre, ils ont une durée très différente suivant la végétation concernée : la phase « flammes » se retrouve plutôt prédominante en zone de savane, alors que pour les forêts, la phase de combustion lente est majoritaire. Par conséquent, les composés émis sont différents, et l'on retrouvera majoritairement des composés oxydés dans les feux de savane et davantage de composés faiblement oxydés dans les feux de forêt. Les composés émis lors de la phase « flammes » seront donc plus riches en BC [Cachier *et al.*, 1995], alors que les feux de forêt produiront davantage de OC, comparativement aux feux de savane.

1.1.2.3 Impact des émissions atmosphériques par les feux de végétation

- **Impact radiatif**

Les émissions gazeuses et particulaires des feux de végétation ont été identifiées comme des agents potentiels du forçage climatique [Penner, 1998 ; Cachier, 1998 ; Lioussse *et al.*, 2004] : ils jouent un rôle essentiel dans le bilan radiatif terrestre. Les gaz à effet de serre émis par les feux de biomasse représentent environ 30% de la totalité des émissions des gaz à effet de serre globaux. Ces gaz ont un impact de réchauffement de l'atmosphère [Hansen *et al.*, 2000] Au contraire, les particules émises par les feux ont plutôt un effet de refroidissement [Lioussse *et al.*, 2004].

- **Impact sur l'acidité des précipitations**

Les acides organiques contenus dans la fumée des feux, notamment l'acide acétique et l'acide formique, associés aux acides nitrique et sulfurique, peuvent modifier le pH des précipitations. En effet, durant l'expérience DECAFE (Dynamics and Chemistry of the Atmosphere in Equatorial Forest), des pH de 4,45 ont été mesurés dans le nord du Congo. Dans les Tropiques, l'acide nitrique seul, formé photochimiquement à partir des NO_x , peut conduire à des pH de l'ordre de 4,2 [Keller *et al.*, 1991]. L'ajout d'acides organiques dans les précipitations peut abaisser le pH au dessous de 4. Il est important de noter que dans les Tropiques, un tel impact peut être relié directement aux émissions par les feux, puisqu'au moins 80% des composés azotés (nitrate et ammonium) présents dans les pluies proviennent de sources de feux [Lacaux *et al.*, 1991]. En conséquence de ces pluies « acides », les deux impacts indirects sur l'écosystème sont une acidification des sols et une dégradation des feuilles des arbres par dépôt d'aérosols et de gaz acides.

- **Impact sur la capacité oxydante de l'atmosphère**

C'est peut être l'impact le plus étudié, qui a attiré l'attention des scientifiques sur l'étude des Tropiques et des feux de végétation [Crutzen and Andreae, 1990] Les composés organiques peu oxydés et CO réagissent photochimiquement en présence d'oxydes d'azote, déterminant ainsi une augmentation des concentrations d'ozone, en basse et moyenne tro-

posphère. Par ailleurs, les quantités importantes de NO_x provenant des feux de végétation perturbent également le cycle oxydant de la troposphère. La molécule qui gouverne le cycle oxydant troposphérique est le radical hydroxyle OH. En atmosphère peu polluée et en présence de faibles concentrations de NO_x , OH et O_3 sont consommés et CH_4 et CO augmentent, produisant des conditions instables dans l'atmosphère. Ce n'est pas le cas en atmosphère polluée. En effet, en présence de fortes concentrations d'oxydes d'azote produits par les feux, l'oxydation par les hydrocarbures favorise la production d'ozone et des radicaux hydroxydes.

• Impact sur la stratosphère

Les composés émis par les feux peuvent, en plus de leur action sur la chimie troposphérique, avoir un impact sur la chimie stratosphérique. Plusieurs composés émis par les feux de biomasse ont des temps de résidence suffisamment importants pour pénétrer dans la stratosphère, comme le chlorure de méthyle, CH_4 , et N_2O . En zones tropicales, grâce à un transport vertical intense dans l'ITCZ (Zone Inter Tropicale de Convergence), d'autres composés comme les NMHC, avec pourtant un temps de résidence relativement court, peuvent également atteindre la stratosphère [Andreae, 1991]. Il est intéressant de noter que la présence d'halocarbures, comme le chlorure de méthyle et le bromure de méthyle peuvent contribuer à la réduction de l'ozone stratosphérique [Blake *et al.*, 1996].

1.1.3 Fuels fossiles et biofuels

Tout comme les feux de biomasse, les émissions par la combustion de fuels fossiles dépendent du pays considéré, de ses modes de vie, mais également de ses ressources énergétiques disponibles et du niveau de développement. En effet, suivant le type d'énergie utilisée et la technique de combustion employée, les émissions gazeuses et particulaires sont plus ou moins abondantes et de différentes natures. Les sources de combustions de fuels fossiles peuvent être regroupées en quatre catégories :

- sources industrielles
- sources résidentielles

- transport (routier, fluvial, maritime, aérien ...)
- production d'énergie

Sur le continent asiatique, les combustions sont essentiellement des combustions de bois, charbon, déchets agricoles et animaux (biofuels). La nature des composés émis et leur abondance sont donc très différentes comparées à celles des pays européens ou américains. Ceci est particulièrement vrai pour les espèces soufrées et le carbone suie.

En effet, les émissions de soufre par les combustions y sont encore très intenses contrairement aux pays occidentaux, pour lesquels le SO_2 n'est plus considéré comme un polluant majeur de l'atmosphère, suites aux normes mises en place avec les carburants sans plomb et à très faible teneur en soufre. En 1990, l'Europe de l'ouest émettait 22,5 Tg SO_2 , l'Europe de l'est 10,8 Tg SO_2 et l'Asie 41,7 Tg SO_2 [Olivier *et al.*, 1999]. Depuis, les émissions ont baissé en Europe (d'environ 40% entre 1990 et 2000), et ont cependant continué à augmenter au début des années 1990 en Asie (développement industriel). Néanmoins, depuis quelques années, une légère baisse est observée par certains auteurs. De même, d'après la campagne de mesure INDOEX (Indian Ocean Experiment) le BC est plus abondant dans les aérosols en Inde comparé aux pays d'Europe ou les USA.

Les oxydes d'azote asiatiques proviennent en moyenne à 37% du transport, 27% de la production d'énergie et 18% du secteur industriel. Toutefois ces valeurs varient beaucoup d'un pays à l'autre : par exemple, en Chine, le secteur le plus émetteur de NO_x est celui de la production d'énergie, alors qu'en Inde le secteur du transport aurait une contribution beaucoup plus importante. L'accroissement rapide du secteur du transport en Asie a provoqué une augmentation des émissions de NO_x ces dernières années.

Les émissions de CO et de particules carbonées sont relativement fortes dans toute l'Asie. En effet, les émissions de ces composés sont fortement dépendantes de la qualité de la combustion, et les pays asiatiques étant en pleine croissance économique, la faible qualité des équipements induit le plus souvent des combustions incomplètes et de fortes émissions de CO. Les secteurs les plus émetteurs de monoxyde de carbone et de BC sont le secteur résidentiel avec la combustion de biofuel (34% des émissions de CO et environ 70% des émissions de BC [Streets and Waldhoff, 1998]), et le secteur du transport, qui

contribue pour 28% aux émissions de CO et 22,4% des émissions de BC. Streets *et al.* (2003) estiment les émissions de CO à 116 Tg pour la Chine pour l'année 2000, contre 113 Tg en 1995 [Streets and Waldhoff, 2000]. Dans cette étude, les émissions de CO en Chine sont considérées comme stables, car les véhicules, les procédés industriels et les sources d'énergies domestiques utilisent des processus avec des efficacités de combustion améliorées remplaçant peu à peu les vieilles technologies polluantes.

La Chine se distingue des autres pays asiatiques par sa consommation en fuels, car depuis 1997, la restructuration de son secteur industriel et le ralentissement de son économie a conduit à une réduction de la consommation de charbon [Foell *et al.*, 1995 ; Streets *et al.*, 1999], encore très abondante dans les autres pays de l'Asie du Sud-Est. Cette considération de la Chine comme un pays évoluant vers une utilisation d'énergie moins polluante est un point encore très controversé : en effet, dans le calcul des émissions, les facteurs d'émissions dépendent du classement des pays en fonction de leur niveau de développement, et donc tout dépend de la classe appliquée à la Chine et l'Asie en général.

Comparée à la Chine, l'Inde n'utilise pas les mêmes types de combustibles, notamment au niveau des biofuels. En Inde, l'utilisation des feux de biomasse comme fuels représente 50% de la consommation totale en énergie primaire. Les fuels majoritairement utilisés sont le bois, les résidus agricoles et les bouses animales [Reddy and Venkataraman, 2001]. Sa consommation de « gâteaux de fumier », qui produit de grande quantité de CO et de particules de carbone organique, par sa combustion, est très importante dans le secteur domestique. Le parc automobile de l'Inde, moins récent et performant que celui de la Chine est également une source importante de monoxyde de carbone et de particules carbonées. En effet, l'essence étant vendue à l'Inde selon les prix du marché appliqué en Europe et au Japon, les indiens emploient des mélanges de fuels (mélange de diesel et de kérosène, ou de diesel et d'essence) pour leur véhicules 2 ou 4 roues, qui sont plus moins chers, mais beaucoup plus polluants [Dickerson *et al.*, 2002].

Les NMHC anthropiques sont estimées à 52,2 Tg pour l'Asie en 2000 [Streets *et al.*, 2003], mais ces émissions risquent d'augmenter dans des proportions importantes lors des prochaines années. En effet, les processus très producteurs de MNVOC sont en pleine expansion, comme l'extraction et l'utilisation de produits pétroliers et de gaz naturel, la pro-

duction industrielle de composés organiques, l'utilisation de peintures et de revêtements de surface, et l'utilisation de solvants dans les entreprises de haute technologie. Actuellement, bien que les sources de MNVOC soient très variées, les combustions domestiques de charbon et de biofuels et le secteur du transport ont été identifiés comme étant les sources les plus importantes.

Finalement, on peut noter que l'accroissement démographique est une des raisons de l'augmentation du nombre des mégacités. Au vu des émissions décrites aux paragraphes précédents, la pollution dans ces villes est tout particulièrement importante. En Asie, de très nombreuses villes dépassent les 6 millions d'habitants, comme Pékin, Shanghai, Hong Kong, Bombay, Calcutta, Delhi, Madras, Jakarta, Osaka, Tokyo, Seoul ... Le plus gros problème de pollution dans ces villes vient des véhicules, très nombreux, souvent mal entretenus. Comparées aux autres grandes villes d'Europe et d'Amérique du Nord, ces villes asiatiques sont très fortement émettrices de SO_2 . D'après Baldasano *et al.* (2003), de très nombreuses villes indiennes et chinoises, recensées dans son étude, dépassent le niveau de référence ($50 \mu\text{g.m}^{-3}$ selon le WHO (World Health Organization)), avec des valeurs extrêmement fortes atteintes en Chine. Par exemple, $424 \mu\text{g.m}^{-3}$ de SO_2 en moyenne annuelle ont été mesurés à Guiyang, soit huit fois la valeur seuil du WHO.

Pour les particules, seules des mesures de TSP (Total Suspended Particles) sont disponibles dans cette étude. La valeur moyenne annuelle donnée par le WHO est de 60-90 $\mu\text{g.m}^{-3}$, qui est dépassée par toutes les villes asiatiques référencées dans l'étude. 18 villes chinoises et indiennes présentent plus de $300 \mu\text{g.m}^{-3}$ de TSP en moyenne annuelle.

De nombreux sites de mesures in situ sont actuellement mis en place dans les grandes villes et méga-cités (notamment en Asie) pour pallier le manque actuel de données sur les particules (mesures de PM_{10} , $\text{PM}_{2.5}$, spéciation chimique ...).

1.2 Les aérosols en Asie

Dans le paragraphe précédent, j'ai démontré que toutes les sources de combustion rencontrées en Asie (que ce soit pour les feux de biomasse et les combustion de fuels

fossiles et de biofuels), étaient à l'origine de fortes émissions particulières. Après un bref rappel théorique des propriétés de l'aérosol et de ses possibles impacts, je décrirai les principaux résultats concernant l'aérosol, obtenus dans les campagnes menées en Asie jusqu'à présent.

1.2.1 Généralités

1.2.1.1 Caractéristiques microphysiques des aérosols

La taille des particules influe fortement sur leur répartition dans l'atmosphère et sur les processus physico-chimiques et radiatifs associés. Le temps de vie des aérosols est ainsi fonction de leur taille, de quelques jours à quelques semaines. Plus les aérosols sont gros, plus leur sédimentation est rapide, et plus leur temps de séjour dans l'atmosphère est court et vice-versa pour les petites particules, transportées plus facilement et plus loin avant d'être lessivées ou de sédimenter (c'est le cas des particules de combustion).

Les particules sont généralement réparties dans trois principaux modes :

- le mode *nucléation* ($<0,08 \mu\text{m}$) : ces particules proviennent des processus de conversion gaz/particules (nucléation, condensation). Le nombre de ces particules est très élevé pour une contribution massique relativement faible. Généralement, ce mode ne subsiste pas longtemps, sauf à proximité d'une source de combustion, car les particules vont rapidement atteindre le mode d'accumulation suivant les processus de condensation et/ou de coagulation.
- le mode *accumulation* (de $0,08$ à $2 \mu\text{m}$) : les particules de ce mode proviennent de la coagulation des particules du mode de nucléation et de la condensation de vapeurs peu volatiles. Dans cette gamme de taille se retrouvent les particules émises par les pots d'échappement des véhicules à moteur, une fois les effluents condensés et coagulés dans l'air. Ce mode est toujours présent dans l'atmosphère : les particules possèdent une durée de vie relativement élevée, avec de grande surface d'échange avec la phase gazeuse, d'où un impact significatif sur la chimie de l'atmosphère.
- le mode *grossier* ($>2 \mu\text{m}$) : ces particules proviennent de processus mécaniques tels l'érosion des sols, les sels de mer et les émissions par les plantes ou les volcans. Ces

particules ont un faible temps de vie car elles sédimentent rapidement.

Une autre pratique est également mise en avant pour traiter de la taille des particules : les PM_{10} et $PM_{2.5}$ (PM : Particulate Matter pour matière particulaire). Les PM_{10} sont définies comme des particules de diamètre aérodynamique moyen inférieur à $10 \mu m$, et les $PM_{2.5}$ pour des diamètres inférieurs à $2,5 \mu m$.

1.2.1.2 L'aérosol carboné

L'aérosol de combustion est majoritairement composé d'aérosol de nature carboné. Comme on a vu précédemment, l'abondance et la composition relative de l'aérosol de combustion sont directement reliées au type de fuel et aux caractéristiques physiques des processus de combustion.

Lorsque l'oxygène n'est pas apporté en quantité suffisante ou que le fuel contient des éléments azotés, soufrés ..., la combustion produit des composés réduits gazeux (composés organiques volatils, hydrocarbures, méthane ...) et des aérosols. Les particules issues de la combustion sont en grande majorité des particules de suie et de carbone organique. Elles sont constituées de petites particules de carbone élémentaire (ou graphite) plus ou moins sphériques et rugueuses agglomérées entre elles et plus ou moins fonctionnalisées, par des fonctions CO et des chaînes d'hydrocarbures [Cachier, 1998]. En se refroidissant, ces particules de suie absorbent des gaz organiques en quantité significative. Ces particules comportent donc à la fois du carbone élémentaire et de la matière organique, ainsi que des composés minéraux en faible quantité dont la présence dépend du type de fuel et des méthodes de production des particules. La distribution en taille de ces particules est majoritairement concentrée dans le domaine submicronique.

Aujourd'hui, il n'est pas possible de définir l'aérosol carboné de manière chimique. On connaît seulement 10% des fonctions qui se trouvent sur le cœur graphite. L'aérosol carboné est donc défini à partir de ses propriétés physico-chimiques. On le sépare en deux

composantes aux propriétés différentes :

- une composante BC, carbone suie, ou encore « Black Carbon »
- une composante OC, carbone organique

Cette séparation dépend des méthodes d'analyse retenues pour mesurer BC et OC, qui sont encore empreintes de fortes incertitudes.

· *Carbone suie*

Comme on l'a vu dans le paragraphe précédent, les émissions de carbone suie proviennent de toutes sortes de combustions. Les sources dominantes sont les véhicules diesel et les feux de bois. Les plus forts facteurs d'émissions de BC sont dûs à la combustion de diesel (5 gC(BC)/kgC(fuel)), de charbon (entre 3 et 4 gC(BC)/kgC(fuel)) et des feux de bois (2,5 gC(BC)/kgC(fuel)) [Cachier, 1998]. Cet aérosol est principalement d'origine primaire, c'est à dire émis directement de la source. Les nombreuses images microscopiques ont montré que BC était généralement situé au cœur de l'aérosol. Il possède une grande capacité d'absorption du rayonnement solaire dans le domaine du visible ($\lambda = 400-800$ nm) et est réfractaire aux attaques thermiques et chimiques. Il est considéré comme traqueur des combustions.

· *Carbone organique*

Cette fraction est toujours présente en quantité plus importante que la composante carbone suie. Majoritairement, comme BC, OC provient de la combustion. Le carbone organique peut être émis directement dans l'atmosphère (OC primaire), ou être formé par condensation de gaz, à longues chaînes carbonées et de faible tension de vapeur saturante (OC secondaire). Le carbone organique contient différentes formes de matériel organique, qui dépendent de la nature du fuel, de la qualité de la combustion et de l'âge de l'aérosol.

En général, les mesures ne distinguent pas l'origine du carbone organique (primaire ou secondaire), donnant des valeurs intégrant les deux composantes. Dans sa globalité, OC posséderait un indice de réfraction proche des sulfates et diffuserait le rayonnement solaire [Liousse *et al.*, 1996 ; Hegg *et al.*, 1997]. Il est moins réfractaire que le BC et possède une densité plus faible.

1.2.1.3 Description des impacts des aérosols

• Impact sur la santé

A chaque fois que nous inspirons, environ 0,5 litres d'air pénètrent dans nos poumons ainsi qu'un nombre important de gaz et de particules plus ou moins nocifs pour la santé. L'impact de ces particules sur la santé va dépendre de leur composition chimique, mais surtout de leur taille. En effet, tout comme le temps de résidence des particules dans l'atmosphère, leur degré de pénétration au sein du système respiratoire est fonction de la taille.

Sur la figure 1.1, les différentes parties du système respiratoire sont représentées, associées à la taille des particules qui s'y déposent.

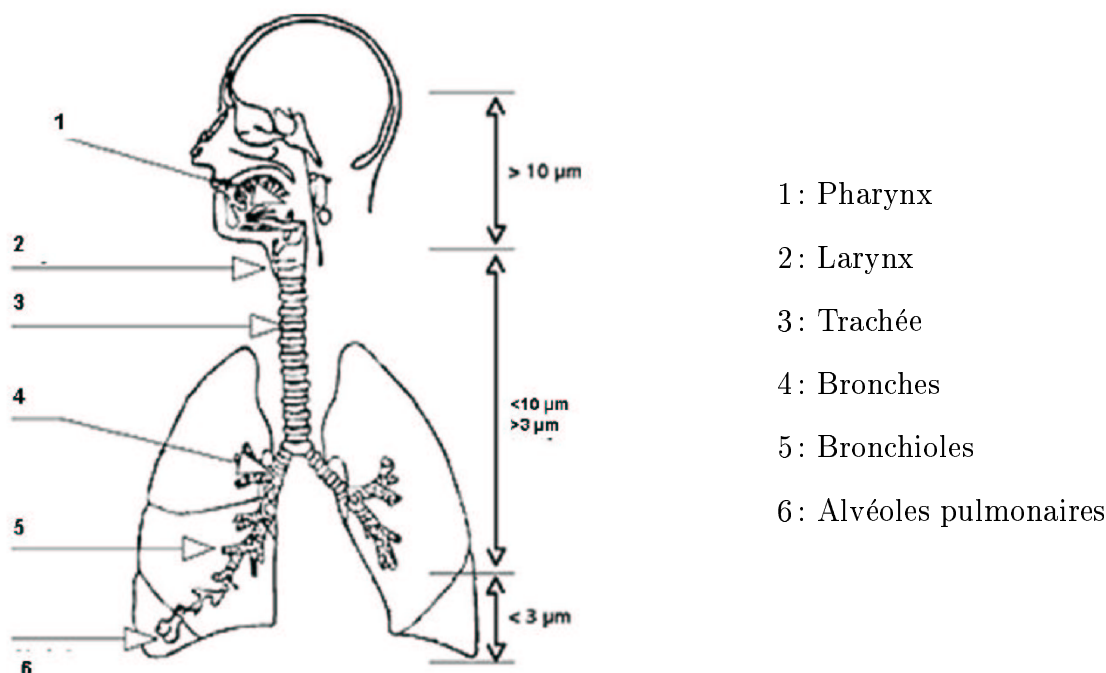


FIG. 1.1 – Représentation schématique du système respiratoire.

Les particules les plus grosses sont, pour la plupart (environ 40%), précipitées sur les muqueuses du pharynx. La principale voie de pénétration de ces aérosols est digestive.

Les PM_{10} vont surtout se déposer dans la partie trachée-bronches, alors que les particules fines vont atteindre les alvéoles pulmonaires. Lors d'un processus de défense de l'organisme au cours de l'élimination de ces particules, elles peuvent être véhiculées dans les courants lymphatique et sanguin. Elles sont donc les plus nocives pour la santé, pouvant causer des problèmes respiratoires, des inflammations et même des cancers. L'impact des particules sur la santé est difficile à quantifier, car ces dernières ne sont pas isolées dans l'atmosphère, mais toujours associées à des gaz également nocifs pour la santé. Cependant, il existe de bonnes corrélations entre les fortes concentrations de particules et les effets sur la santé.

Les effets biologiques des particules peuvent être classés sous 3 rubriques :

- les réactions inflammatoires non spécifiques
- les effets génotoxiques et cancérogènes
- les effets immunotoxiques et allergiques

Des études épidémiologiques sur les effets à court terme ont montré que pendant les périodes de pollution importante, il y avait augmentation de la fréquence des décès pour affections respiratoire ou cardio-vasculaire, avec un décalage temporel de 0 à 3 jours par rapport à la pénétration des particules. Ces études mettent aussi en évidence que les personnes les plus touchées ont préalablement un état respiratoire dégradé, et sont souvent très jeunes ou âgées. Les études sur les effets à long terme, considérées comme plus pertinentes en terme de santé publique, présentent une relation entre concentrations moyennes en aérosols et fonction ventilatoire. La dégradation de la fonction ventilatoire provoque des maladies respiratoires chroniques, comme la bronchite chronique obstructive.

De nombreuses études sur l'aérosol urbain ont porté les particules diesel, à forte génotoxicité et au pouvoir immunotoxique. Lors d'exposition conjointe à des allergènes (par exemple les pollens) et à des aérosols diesel, la réponse allergique des voies aériennes des personnes susceptibles est potentialisée (=accentuer l'effet).

En Asie, les feux domestiques et la mauvaise évacuation des fumées dans les domiciles sont responsables de très nombreuses intoxications. En Chine, le nombre de décès annuel

est estimé à 1 million. D'après l'étude menée par The American Chemical Society, entre 1990 et 1995, 12,5% de ces décès seraient attribués à la pollution.

Bien qu'il existe des normes (valeur seuil de référence) pour les particules en Europe (fixées par l'Union Européenne) et aux Etats-Unis (fixées par l'EPA (Environmental Protection Agency)), cela n'a pas encore été mis en place en Asie. Toutefois, des efforts sont faits pour trouver de nouvelles technologies moins polluantes. Nous pouvons citer par exemple, l'invention d'un nouveau poêle à charbon pour utilisation domestique, doté de rendements de combustion très forts, et donc de faibles facteurs d'émissions de particules [Chen *et al.*, 2005].

• Impact radiatif

Le bilan radiatif est défini comme l'équilibre entre l'énergie solaire arrivant sur la Terre, et celle ré-émise par la planète. Cette énergie peut être directement renvoyée vers l'espace, essentiellement par les nuages et la surface terrestre, ou bien être absorbée puis ré-émise sous forme de chaleur. En effet, une partie de ce rayonnement est capturée naturellement par les gaz et particules atmosphériques, au lieu d'être renvoyée en totalité vers l'espace. Si cet effet de serre naturel n'existait pas, la température à la surface du globe serait nettement inférieure à sa valeur moyenne actuelle (15°C). Or, cet effet de serre naturel est modifié par les gaz et les particules d'origine anthropique. La figure 1.2 représente l'estimation du forçage radiatif pour les gaz à effet de serre, l'ozone et les aérosols. L'impact des gaz à effet de serre, qui réchauffent le climat, est actuellement bien connu, contrairement à celui des aérosols troposphériques, qui dans l'ensemble, aurait un effet opposé.

L'impact radiatif des aérosols peut se diviser en 4 types d'effets :

- **l'effet direct** correspond à l'effet radiatif en ciel clair à humidité ambiante, c'est à dire la capacité des particules à absorber et/ou diffuser le rayonnement solaire incident. Cet effet est fonction de la composition chimique de l'aérosol. Comme cela est indiqué dans le chapitre précédent, les polluants émis par les feux de biomasse ont un impact de refroidissement ($-0,1 \text{ W.m}^{-2}$), alors que ceux émis par les fuels fossiles et les biofuels de réchauffement.
- **l'effet semi-direct** représente l'impact des transferts de chaleur par absorption

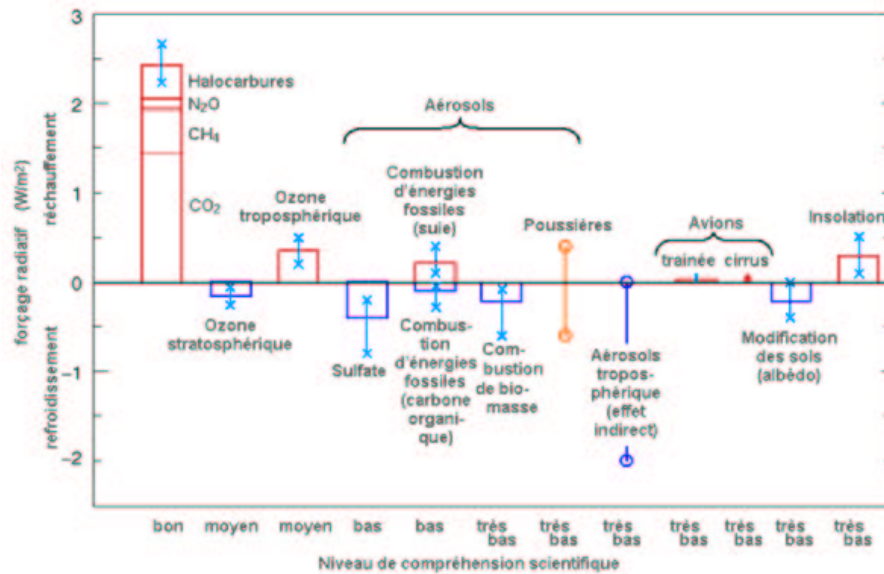


FIG. 1.2 – Forçage radiatif moyen au sommet de l'atmosphère [IPCC2001].

dans une couche de l'atmosphère contenant des aérosols. Cet impact est susceptible de modifier le profil vertical de température et agit éventuellement sur la formation des nuages. Il a été observé pour la première fois lors de la campagne INDOEX [Ramanathan *et al.*, 1996].

- **l'effet indirect du premier type** est relié à l'augmentation de l'albédo nuageux induit par une augmentation du nombre de gouttelettes, lesquelles produisent elles-mêmes une augmentation de la concentration des noyaux de condensation.
- **l'effet indirect du deuxième type** correspond à la diminution de l'efficacité de précipitation (plus de petites gouttes) et son impact sur le cycle de vie des nuages.

Le forçage radiatif indirect portant sur la modification du pouvoir réfléchissant des nuages, est plus difficile à estimer que l'effet direct, parce qu'il nécessite de prendre en compte à la fois les propriétés des nuages et celles des particules. Les aérosols émis par les activités anthropiques sont souvent de petite taille et sont de plus ou moins bons noyaux de condensation (CCN). En effet, les aérosols émis par les fuels fossiles sont des moins bons CCN que ceux émis par les feux de végétation. Toutefois, la conversion gaz-particule des composés organiques, NO_x et SO₂ peut altérer l'impact radiatif et les propriétés de

noyaux de condensation des aérosols de fumée.

1.2.2 Description des études existantes sur l'aérosol en Asie

En dépit de l'importance climatique de l'aérosol carboné, ce n'est que très récemment que des campagnes ont été dédiées à son étude en Asie. Que ce soit en surface ou pire sur la verticale, peu de données sont disponibles en terme de concentrations, de leurs sources, de leurs mécanismes de formation et de leurs propriétés radiatives et de nucléation. Par ailleurs, des incertitudes existent sur l'analyse même des particules carbonées. Dans les premières études au niveau global et régional, on a pu voir l'intérêt des pays émergents du fait de leur impacts importants et croissants. L'Asie en fait partie.

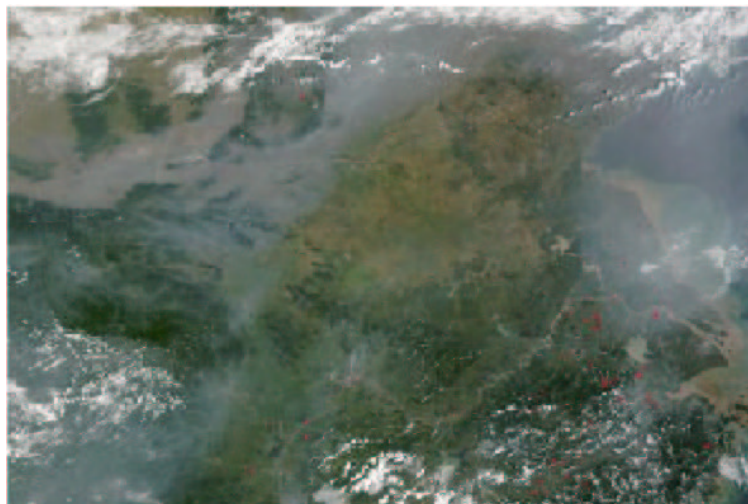


FIG. 1.3 – Nuage brun au dessus de la Chine (UNEP, NASA).

L'Asie est un continent en pleine mutation, où l'intensité des émissions gazeuses et particulaires ne cesse d'augmenter suite à la croissance des activités anthropiques polluantes. De plus, de fortes spécificités régionales sont observées, avec différents types d'émissions, dépendant de la grande hétérogénéité des végétations et climats, ainsi que de l'évolution rapide de la population, de l'agriculture et de l'industrialisation. La population asiatique représente 60% de la population mondiale (environ 6 milliards d'habitants) : on s'attend donc à ce que le développement économique de l'Asie ait des conséquences environne-

mentales sensibles aux échelles globale et régionale. Depuis plusieurs années, des mesures ont donc été installées en Asie et dans l’océan Indien, pour tenter d’améliorer notre compréhension de ces conséquences sur l’environnement. La plus grande campagne a été la campagne INDOEX [Ramanathan *et al.*, 1996] qui s’est déroulée pendant la mousson d’hiver, en Inde et dans l’océan Indien (îles Maldives), en février 1999, au moment où l’air pollué du continent indien et asiatique se mélange à l’air « propre » provenant de l’océan Indien Sud, au dessus de l’océan Indien Tropical. Cette convergence inter-hémisphérique constituait une opportunité unique pour l’étude des aérosols et leur impact climatique. En effet, le transport vertical rapide au sein des systèmes nuageux de convection profonde de l’ITCZ (Zone Intertropicale de Convergence) et la redistribution horizontale par transport zonal et méridien rapide en haute troposphère, fournissent un lien fondamental entre les émissions régionales et la distribution globale des espèces radiativement actives. Dans INDOEX, l’accent a été mis sur l’étude du transport des polluants émis en Inde et en Asie du sud-est et sur leur impact sur la modification de la composition chimique de l’atmosphère et des flux radiatifs au dessus de l’océan Indien. La campagne de mesure INDOEX a permis mettre en évidence et de caractériser le « brouillard asiatique » (Asian Brown Cloud) [figure 1.3], couche brune de polluants de 3 km d’épaisseur recouvrant la quasi-totalité de l’océan Indien tropical, le sud, sud-est et l’est de l’Asie, pendant les mois de mousson. Les particules de cette couche de pollution sont des particules de sulfate, nitrate, de carbone organique et de carbone suie, mélangées à d’autres polluants gazeux. Cette couche est transportée très loin de sa région source, notamment en saison sèche.

De nombreuses questions restant sans réponse dans cette région centrée sur l’Inde, le programme ABC (Atmospheric Brown Cloud) [Ramanathan and Crutzen, 2003], a été mis en place pour étudier l’impact des conséquences directes et indirectes de ce brouillard sur le changement climatique régional et global et les impacts sur l’écosystème, le cycle de l’eau, l’agriculture et la santé. Deux types d’effets seront étudiés :

– **Effets directs :**

- réduction significative du rayonnement solaire atteignant la surface du sol (de 10 à 15%)
- suppression des pluies

- déclin de la production agricole
- méfaits sur la santé
- **Effets indirects :**
 - refroidissement de la surface des sols
 - augmentation en fréquence et en force des inversions thermiques qui piègent les polluants
 - réduction de l'évaporation
 - assèchement des sols
 - perturbation de la mousson

Les premiers résultats montrent que l'augmentation de ce brouillard perturberait le système climatique incluant pluies et champs de vents et déclencherait une sécheresse dans la partie ouest du continent asiatique.

Au regard de ces premiers résultats obtenus sur l'Inde, d'autres campagnes de mesures se sont mises en place dans d'autres régions d'intérêt en Asie, comme TRACE-P ou ACE-Asia. La campagne TRACE-P (Transport and Chemical Evolution over the Pacific) [Jacob *et al.*, 2003] s'est déroulée de février à avril 2001 dans l'océan Pacifique nord. Les objectifs de cette campagne étaient de déterminer la composition chimique du panache de pollution asiatique (en particulier la contribution des sources anthropiques) et de déterminer l'évolution de la composition chimique de ce panache lors de son transport vers l'océan Pacifique. La campagne de mesure ACE-Asia (Asian Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment), que nous allons décrire dans le paragraphe suivant, a également pris place au printemps 2001.

1.3 La campagne ACE-Asia

1.3.1 Cadre général de la campagne

Motivée par les résultats de la campagne INDOEX, de l'importance de la zone asiatique et du transport intercontinental de l'Asie vers les Etats-Unis, la campagne ACE-Asia

(Asian Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment (<http://saga.pmel.noaa.gov/-aceasia/>)) a été mise en place. Cette campagne, soutenue par l'International Global Atmospheric Chemistry (IGAC), a pour objectif d'améliorer la compréhension de l'impact des aérosols atmosphériques en Asie sur le système climatique terrestre.

ACE-Asia est la quatrième campagne d'une série d'expériences dédiées à l'aérosol (ACE-1, TARFOX et ACE-2).

Comme nous l'avons dit précédemment, le choix de l'Asie est motivé par la nécessité d'étudier cette zone en grande mutation. De plus, cette zone a la particularité d'avoir des sources très variées comparée aux USA et à l'Europe. En effet, l'aérosol dans la région de ACE-Asia est un mélange complexe de sels marins, particules ioniques, organiques et de suies issues de la combustion, poussières minérales et espèces organiques biogéniques [Huebert *et al.*, 2003]

Le programme ACE-Asia s'est déroulé de 2000 à 2003, et se divise en 2 volets aux objectifs distincts :

- Une période d'observation à long terme (2000-2003) avec pour but de quantifier les propriétés radiatives, chimiques et physiques des aérosols et de documenter la variabilité spatiale et temporelle (saisonnnière et inter-annuelle), par des stations sol avec des mesures in situ et des mesures intégrées sur la colonne.
- Une période d'observation intensive a eu lieu de mars à mai 2001, avec pour objectif la quantification de la distribution spatiale et verticale des propriétés des aérosols, des processus contrôlant leur formation et leur évolution, et leur effet radiatif intégré sur la colonne, en ciel clair.

La période d'observation intensive (mars à mai 2001) sera par la suite appelée « période ACE-Asia ». De même, le domaine d'étude représenté sur la figure 1.4 sera désigné par « domaine ACE-Asia ».

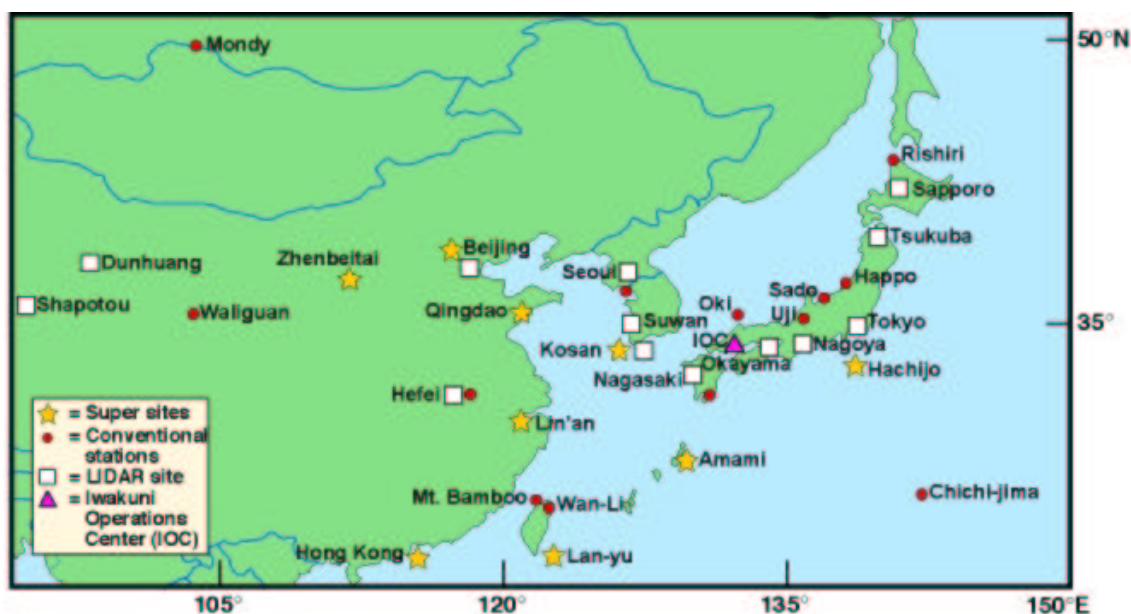


FIG. 1.4 – *Le domaine ACE-Asia.*

1.3.2 Moyens mis en place

Pour répondre aux questions décrites dans le paragraphe précédent, les moyens suivants ont été mis en oeuvre pendant la campagne :

- Des mesures in situ couvrant une échelle représentative des perturbations anthropiques et naturelles pour déterminer les propriétés radiatives, chimiques et physiques des principaux types d'aérosols. Parmi les mesures sol, le site de Gosan, situé sur l'île Cheju en Corée parmi les régions sources de l'aérosol, possède une grande variété d'appareils de mesures de l'aérosol et du rayonnement, ainsi que deux lidars. Les réseaux de mesures du projet China Dust Storm Research, du VMPA (Variation of Marine Aerosol Properties), d'APEX (Asia Pacific Environmental Exchange) et d'ADnet Lidar Network ont effectué de nombreuses mesures permettant une caractérisation physico-chimique et radiative assez complète de l'aérosol. Dans un effort d'homogénéisation des mesures, la même méthode d'analyse de l'aérosol carboné a été utilisée : la méthode thermo-optique SUNSET a été retenue.
- Des observations satellites pour quantifier la variation temporelle et spatiale des distributions d'aérosols.

- Des modèles de transport chimique et de transfert radiatif permettent de calculer le forçage radiatif des aérosols. Un des objectifs est de fournir une analyse pronostique d'un forçage radiatif futur et la réponse du climat en fonction de plusieurs scénarii d'émissions.
- En plus des mesures sol, plusieurs avions et bateaux ont été déployés durant la campagne. En particulier, les deux avions américains C-130 et Twin Otter ont réalisé une série de vols depuis la base d'Iwakuni au Japon (IOC de la figure 1.4). Le C-130 du NCAR (National Center for Atmospheric Research) a été utilisé pour des mesures en moyenne troposphère (altitude autour de 6 km), dans les régions de Gosan, la mer Jaune et la mer du Japon. L'avion Twin Otter du CIRPAS (Center for Interdisciplinary Remotely-Piloted Aircraft Studies) était destiné aux mesures en basse troposphère aux alentours de 3,7 km. Des vols ont été menés en commun entre ces deux avions pour intercomparaison. Par ailleurs, comme nous l'avons vu plus haut, le début de la campagne ACE-Asia correspond à la fin de la campagne TRACE-P. Des vols d'intercomparaison ont été menés entre les avions de ACE-Asia et de TRACE-P (NASA/P-3B).

1.3.3 Conditions météorologiques pendant la campagne ACE-Asia

Les conditions météorologiques jouent un rôle déterminant sur le transport et la distribution des espèces chimiques [Merrill *et al.*, 1997]. Par exemple, la température et l'humidité peuvent affecter les taux de réactions chimiques et par conséquent, influencer le temps de vie des espèces chimiques dans l'atmosphère [Blake *et al.*, 2001; Martin *et al.*, 2002]. La convection profonde et le mélange turbulent à petite échelle transportent les espèces de la surface vers la troposphère libre où elles peuvent être transportées sur des longues distances par les forts vents d'altitude [Maloney *et al.*, 2001]. D'après Merrill *et al.* (1985), la pollution observée sur le Pacifique proviendrait en moyenne de l'Asie en avril et mai, alors qu'elle proviendrait d'Amérique du Nord en juin, juillet et août.

Au cours de la campagne ACE-Asia, les conditions météorologiques changent rapidement puisqu'on se situe à la transition hiver-printemps, et pendant la transition de la phase froide de l'ENSO (El Niño-Southern Oscillation), La Niña, à des conditions proches de la normale. D'après Merrill and Kim (2004), les caractéristiques des circulations observées sont proches des moyennes des variations interannuelles, avec la plupart des anomalies confinées spatialement et de faibles amplitudes. De même, l'occurrence et la distribution des dépressions de moyennes latitudes, qui ont un impact sur la circulation et le transport des champs affectant la domaine géographique de la campagne, sont proches des moyennes climatologiques.

Une caractéristique importante de la circulation en cette période est l'anticyclone semi-permanent de Sibérie et les dépressions transitoires de moyennes latitudes qui se forment en Asie de l'est et se déplacent sur le Pacifique nord [Fuelberg *et al.*, 2003]. L'analyse météorologique de Merrill and Kim (2004) note que pour notre période d'étude :

- une succession de perturbations anticycloniques et cycloniques à 500 hPa.
- de fortes vitesses des vents moyens autour de 45°N (à 700 et 1000 hPa), suite aux dépressions transitoires.
- de faibles variations de la structure et de l'intensité du jet-stream entre 105°E et 135°E.
- le cœur du jet observé à 200 hPa (environ 12 km), proche des moyennes climatologiques d'altitude des vents maximum.
- des vitesses de vent qui diminuent de l'hiver au printemps en même temps que le gradient méridional de température.

Le transport de la pollution depuis les régions sources se produit soit dans la couche limite soit dans la troposphère libre. D'après Liu *et al.* (2003), le transport de la pollution de la couche limite vers la troposphère libre aux moyennes latitudes s'effectue par :

- les structures frontales associées au développement des dépressions.
- la convection nuageuse.

- le forçage orographique (soulèvement) des masses d'air.

La convection nuageuse est un mécanisme efficace pour transporter la pollution de la couche limite vers la troposphère libre [Bey *et al.*, 2001]. Liu *et al.* (2003) a en effet démontré que pendant TRACE-P (mars-avril 2001) dans cette même région, la convection nuageuse profonde est le mécanisme le plus efficace pour transporter les panaches de feux de biomasse.

Cependant, les processus majeurs qui dirigent le panache de pollution asiatique durant le printemps 2001 sont les soulèvements frontaux à l'avant des fronts froids et le transport dans la couche limite, dans l'air subsident à l'arrière des fronts froids. La figure 1.5 présente la structure typique d'une dépression des moyennes latitudes.

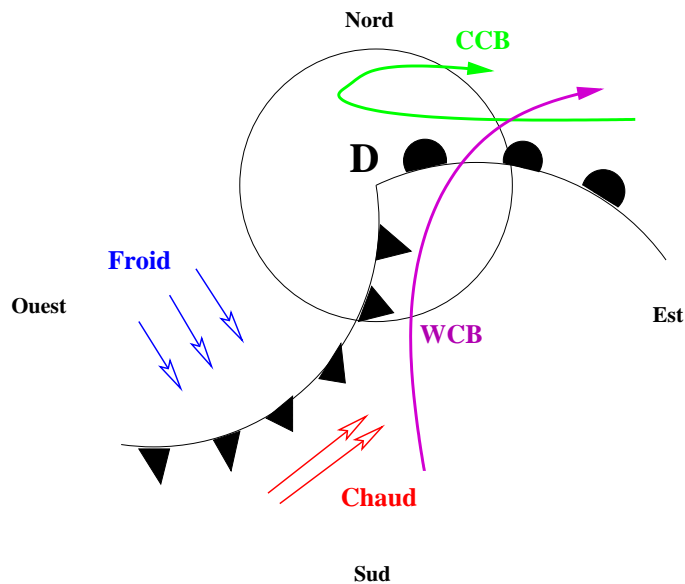


FIG. 1.5 – Schéma d'une coupe horizontale d'une dépression type des moyennes latitudes (Cooper *et al.*, [2002]).

Selon les modèles classiques des dépressions aux moyennes latitudes, on distingue quatre écoulements principaux :

- la ceinture d'écoulement froid (*CCB*: cold conveyor belt) qui prend son origine au nord du front chaud de la dépression. Par rapport au centre du système de basses pressions, cette ceinture d'écoulement froid se soulève en avançant vers l'ouest, puis se retourne vers l'est en altitude (vers 500 hPa).

- la ceinture d'écoulement chaud (*WCB* : warm conveyor belt) prend son origine dans la partie est de la dépression, en amont du front froid. Cet air provient des faibles altitudes dans le secteur chaud de la dépression. La *WCB* se déplace le long du front froid selon un mouvement ascendant à travers la troposphère, et s'oriente ensuite vers l'est en altitude.
- l'intrusion sèche est originaire des hautes altitudes dans la partie nord de la dépression et descend vers le milieu et la basse troposphère à l'ouest du front froid. En général, cet air se déplace dans la direction opposée à la *WCB* à l'arrière de la dépression.
- la circulation post frontale est associée à l'intrusion sèche. Ce flux circule au dessous de cette dernière, à l'arrière du front.

Plusieurs auteurs ont identifié les ceintures d'écoulement chaud (*WCB*) comme étant les mécanismes les plus efficaces et les plus fréquents de transport de la pollution à grandes distances [Cooper *et al.*, 2002 ; Liu *et al.*, 2003 ; Carlson, 1980]. Pendant PEM-West, Bey *et al.* (2001) a montré qu'une fois que les polluants avaient été soulevés par les *WCB*, ils étaient transportés rapidement par les vents d'Ouest.

1.3.4 Principaux résultats de la campagne

La période ACE-Asia, printemps 2001 (sous l'influence de La Niña), est caractérisée par une inhabituelle fréquence des évènements de poussée d'air froid sur le bord ouest du Pacifique asiatique et une convection forte en Asie du Sud-Est, contrôlant de façon anormalement forte le flux de couche limite des émissions anthropiques et le flux convectif de feux de biomasse dans la haute troposphère. Les émissions des feux de biomasse en Asie du Sud-Est sont transportées surtout par convection profonde, mais aussi par le flux de nord-est associé aux systèmes frontaux, mélangeant ainsi les masses d'air de feux à celles de pollution anthropique [Liu *et al.*, 2003]. Néanmoins, la couche limite sur le Pacifique ouest est totalement dépourvue d'influence des feux de biomasse. Le soulèvement orographique en Chine Centrale et en Chine de l'Est est combiné à des fronts froids qui promeuvent le transport de la pollution chinoise vers la troposphère libre. L'apport des panaches des feux d'Afrique et d'Europe dans le flux asiatique faible, n'est pas détectable

dans les observations du fait d'un signal de pollution asiatique bien plus important.

Les mesures effectuées pendant la campagne ACE-Asia ont révélé que :

- Des valeurs importantes du coefficient de diffusion des particules du mode d'accumulation, produit dans les panaches de pollution provenant de zones polluées ont été observées. Il en est de même pour les particules du mode grossier, lors d'épisodes de poussières. Le fait que les aérosols du mode fin aient été observés principalement dans les basses couches est lié aux conditions d'échantillonnages, plus fréquents en conditions anticycloniques qu'en conditions cycloniques.
- Les valeurs du coefficient d'Angström \hat{a} (= épaisseur optique en relation avec la longueur d'onde, permettant d'avoir des informations sur la taille des particules), varient de 0,2 à 2, ce qui correspond à des couches à dominante « poussières » et « pollution » respectivement.
- En général, pour une couche donnée, on observe de fortes concentrations en carbone total (TC), du même ordre de grandeur que celles mesurées lors des précédentes campagnes en Asie (INDOEX). Néanmoins, le niveau d'aérosol carboné dans les couches de pollution repéré durant ACE-Asia est supérieur à celui rencontré au cours d'INDOEX. Globalement, les niveaux observés étaient supérieurs à ceux de TARFOX (Tropospheric Aerosol Radiative Forcing Observational eXperiment) et lors des mesures avion effectuées durant ACE-2.
- La valeur du coefficient de corrélation r^2 (=0,5) entre le coefficient d'absorption σ_{ap} et les concentrations en carbone suie (BC), indique que d'autres paramètres que la masse de BC affectent significativement σ_{ap} (mélange BC + poussières).
- La plupart des échantillons a été prélevée à des centaines de kilomètres des sources, suggérant que ces sources peuvent affecter les niveaux de BC et OC à grande distance. Les incursions de pollution influencent significativement les niveaux de BC et OC dans la couche limite marine. En effet, dans cette couche, les concentrations de BC varient de $0,53 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ à $0,92 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ contre de $0,95 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ à $12,97 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ pour OC, respectivement entre conditions propres et conditions polluées.

1.4 Conclusion

Au sein de ce chapitre, j'ai décrit le cadre de mon étude. Tout en rappelant l'importance de la zone ACE-Asia pour ses émissions en terme de quantité (importantes contributions mondiales) et d'impacts (sanitaires, radiatifs ...), j'ai montré que les résultats existants étaient intéressants mais insuffisants.

Mon travail de thèse, en s'appuyant sur la nouvelle campagne expérimentale ACE-Asia est une contribution à l'étude de l'aérosol en Asie.

Chapitre 2

Développement d'un inventaire d'émissions de feux de biomasse : ABBI

Sommaire

| | | |
|------------|--|-----------|
| 2.1 | Contexte de l'étude | 40 |
| 2.2 | Développement de l'inventaire d'émissions ABBI | 41 |
| 2.2.1 | Le choix de la méthode : utilisation des cartes de surfaces brûlées obtenues par imagerie satellitale | 41 |
| 2.2.2 | Elaboration des cartes de surfaces brûlées | 42 |
| 2.2.3 | Développement de l'inventaire d'émissions pour les gaz et les particules | 45 |
| 2.3 | Les principaux résultats | 47 |
| 2.4 | Publication | 50 |

2.1 Contexte de l'étude

Les inventaires disponibles au niveau global (EDGAR [Olivier and Berdowski, 2001a], GEIA [<http://weather.engin.umich.edu/geia/index.html>], Cooke and Wilson, 1996, Lioussse *et al.*, 1996) sont basés sur la relation de Seiler and Crutzen (1980) qui relie la quantité de biomasse brûlée au flux d'émission par l'intermédiaire d'un facteur, dit facteur d'émission, typique du composé considéré et du mode de combustion (différent d'un type de végétation à un autre par exemple).

De nombreuses campagnes (DECAFE 1988, 1991 [http://www.insu.cnrs-dir.fr/documentation/Insu_doc/decafe_cadre_gene.html], SAFARI 1992, 2000 [<http://safari.gecp.virginia.edu/abstract/index.asp>], EXPRESSO 1998 [http://www.insu.cnrs-dir.fr/documentation/Insu_doc/expresso.html]) en Afrique, (SCAR C, SCAR B [<http://asd-www.larc.nasa.gov/scar/>] etc...) aux Etats Unis et au Brésil, ont permis de déterminer des facteurs d'émission pour les différents composés émis, avec un bon degré de confiance [Lacaux *et al.*, 1993; Ferek *et al.*, 1998; Andreae and Merlet, 2001; Lioussse *et al.*, 2004].

Les incertitudes actuelles portent principalement sur les estimations des biomasses brûlées. L'ensemble des inventaires cités considère des distributions de biomasse brûlée moyennes obtenues à partir de statistiques locales [Cooke *et al.*, 1996] ou typiques d'année climatologique : par exemple l'inventaire de Hao *et al.* (1990) typique des années 1980-1990 considère que 80% de la surface de la savane africaine est brûlée chaque année. Certains de ces inventaires ont été améliorés par l'utilisation des données satellites, plus particulièrement par la détection et la localisation des feux permettant une amélioration qualitative au niveau spatial et temporel. C'est le cas de Cooke *et al.* (1996) avec l'utilisation de cartes de pixels de feux AVHRR. Une amélioration quantitative, en terme de quantité de biomasse brûlée, a été obtenue grâce à l'utilisation des cartes de surfaces brûlées détectées par imagerie satellitale NOAA-AVHRR et SPOT-VEGETATION au niveau régional. Il s'agit des études de Cahoon *et al.* (1991) au Canada, de Barbosa *et al.* (1999) et Lioussse *et al.* (2004) en Afrique. Ces inventaires présentent des différences importantes par rapport aux inventaires climatologiques : forte variation interannuelle et dans la répartition géographique.

Face aux écarts ou incertitudes mentionnés ci-dessus, il était donc important de développer un inventaire d'émissions pour les feux de biomasse, qui soit dédié aux campagnes ACE-Asia [Huebert *et al.*, 2003] et TRACE-P [Jacob *et al.*, 2003], sur la zone géographique et surtout pour les mois correspondants.

Dans ce chapitre, je présente le premier volet de mon travail de thèse qui repose sur l'élaboration d'un inventaire d'émissions des feux de biomasse à partir des données de surfaces brûlées obtenues par imagerie satellitale, pour la campagne ACE-Asia et TRACE-P. Une publication résultant de ce travail est présentée en section 2.4. Dans un premier temps, j'expose en détail la méthode utilisée pour la création de l'inventaire d'émissions. Ensuite, je rappellerai les principaux résultats de cette étude.

2.2 Développement de l'inventaire d'émissions ABBI

2.2.1 Le choix de la méthode : utilisation des cartes de surfaces brûlées obtenues par imagerie satellitale

Au vu du contexte décrit précédemment, l'outil satellite a été choisi pour une bonne représentativité spatiale et temporelle des émissions de feux pendant la période TRACE-P et ACE-Asia.

Les données satellites fournissent des observations nombreuses et répétées dans le temps et l'espace, à faible coût par rapport aux observations au sol. La fréquence des observations peut être élevée (journalière dans le cas de SPOT-VEGETATION). Dans tous les cas et pour chaque point, il y a cohérence spatiale et temporelle des données, acquises avec le même système.

Choisir de travailler sur la cartographie des surfaces brûlées plutôt que sur la cartographie du nombre de feux (détection des pixels de feux actifs) permet de minimiser les erreurs liées à l'échantillonnage temporel réalisé par les satellites orbitaux. En effet, les surfaces brûlées possèdent une signature spectrale durable dans le temps, comparée aux feux actifs qui ont une signature ponctuelle. De plus, la méthode des surfaces brûlées est déjà un premier pas vers une évaluation de la surface végétale effectivement brûlée, alors

que cette information nécessite des calculs complexes, et le plus souvent approximatifs, à partir de la méthode des pixels de feux.

2.2.2 Elaboration des cartes de surfaces brûlées

2.2.2.1 Description de la méthode

Les données proviennent du capteur VEGETATION à bord du satellite SPOT [Eastwood *et al.*, 1998 ; Fraser and Li, 2002] : elles ont été traitées pour la période du 1^{er} mars au 15 mai 2001, dates des campagnes ACE-Asia et TRACE-P. La zone d'étude (10°S - 60°N ; 59°E - 150°E), s'étend de l'ouest du Kazakhstan (Oural) à l'est du Japon et du centre de la Russie au sud de l'Indonésie (figure 1 de la publication). Cette fenêtre est plus grande que la zone de mesures de la campagne ACE-Asia afin d'intégrer l'ensemble des émissions qui peut influencer sur le transport des espèces chimiques étudiées avec les modèles numériques de circulation.

Les données d'entrées sont les produits S1 de SPOT-VEGETATION. Ce sont des synthèses journalières à 1 km² de résolution spatiale, de mesures de réflectance au sol dans 4 bandes spectrales : BO entre 0,43 et 0,47 μm (bleu), B2 entre 0,61 et 0,68 μm (rouge), B3 entre 0,78 et 0,89 μm (proche infra-rouge) et SWIR (Short Wave InfraRed) entre 1,58 et 1,75 μm (moyen infra-rouge). Parmi ces bandes, la bande SWIR a été reconnue comme très utile pour le traitement des surfaces brûlées [Eastwood *et al.*, 1998 ; Eva and Lambin, 1998 ; Trigg and Flasse, 2000]. Ces produits S1 sont supposés corrigés des effets atmosphériques [<http://www.spot-vegetation.com/>].

La carte de végétation utilisée au cours du traitement provient de l'Université du Maryland (UMD Global Land Cover Product) [Hansen *et al.*, 2000]. Il est important en effet de bien connaître dans un premier temps l'emplacement des différents types de végétation avant traitement, en vue de masquer certaines zones qui pourraient être considérées, à tort, comme des zones brûlées par l'algorithme (par exemple, les ombres de nuages sont facilement considérées comme zones brûlées). De plus, il sera utile par la suite de savoir quel type de végétation a brûlé pour le calcul proprement dit des émissions à partir des cartes de surfaces brûlées.

La chaîne de traitement appliquée aux données SPOT-VEGETATION 2001 des campagnes ACE-Asia et TRACE-P est celle développée par le CCR (Centre Commun de Recherche) dans le cadre du projet Global Burnt Area 2000 (GBA-2000) [Tansey, 2002; Grégoire *et al.*, 2003; <http://www.gvm.jrc.it/fire/gba2000/index.htm>]: ce projet visait à cartographier toutes les surfaces brûlées à l'échelle globale durant l'année 2000, avec un pas de temps mensuel.

Cette chaîne de traitement est composée de quatre modules: le module d'extraction, permettant d'extraire les données de la zone à traiter du jeu global de données; le module de pré-traitement, permettant d'éliminer les données non exploitables pour l'analyse; le module de composition temporelle, destinée à sélectionner les meilleures données pour la détection des surfaces brûlées; et enfin, le module de détection proprement dit qui permet de ne retenir dans les images satellitaires que les pixels classifiés comme brûlés. Le détail de ces modules est présenté en annexe A.

2.2.2.2 Problèmes rencontrés et validation

Les données de sorties sont la localisation (en latitude et longitude) des pixels classifiés brûlés et la date du premier jour où ils ont été détectés comme tels. Toutefois, d'importantes incertitudes demeurent. Certaines ont été largement décrites dans les articles de Tansey *et al.* [Tansey *et al.*, 2004, 2005]. Une amélioration quantitative et une validation sont actuellement en cours pour tous les produits GBA-2000, avec les travaux de Boschetti *et al.* [Boschetti *et al.*, 2004a, 2004b, 2004c].

La première incertitude concerne la détermination de la surface qui a effectivement brûlé: lorsqu'un pixel de 1 km² est classifié comme brûlé, cela signifie que la surface du pixel qui a réellement brûlée est comprise entre 0.5 et 1 km² [Eva and Lambin, 1998]. Il suffit donc que la moitié au moins du pixel soit affectée par un feu pour que la signature spectrale du pixel soit celle d'une surface brûlée. Cela introduit une autre incertitude liée à la conversion du nombre de pixels répertoriés comme brûlés en surface.

Une deuxième incertitude est liée à la quantité de biomasse effectivement brûlée dans un pixel: l'efficacité de brûlage varie fortement en fonction du type et des caractéristiques du couvert végétal, et en fonction des conditions météorologiques au moment du passage

du feu. Ce dernier groupe d'incertitudes dépend surtout des conditions météorologiques régionales et de la période de l'étude. Tout particulièrement, dans le cas de notre étude sur l'Asie, nous avons été confrontés à plusieurs difficultés provenant principalement de la présence d'une couverture nuageuse dense, des feux de petites tailles et épars, difficilement détectables par l'imagerie satellitale basse résolution, d'une couverture végétale diversifiée (du désert à forêt tropicale humide) et de la période considérée, qui peut présenter des conditions climatologiques très contrastées (fin de la saison sèche - début de la saison de mousson fin avril-début mai).

Une première vérification des résultats de détection des surfaces brûlées a consisté à comparer les images Landsat-TM haute résolution (résolution spatiale de 30 m) avec les images SPOT-VEGETATION à faible résolution (1 km) sur notre zone d'étude. Cette comparaison s'est avérée satisfaisante : malgré la différence de résolution spatiale entre les deux satellites, les surfaces brûlées observées par Landsat sont également visibles sur les images de SPOT-VEGETATION. La figure 2.1 montre une de ces comparaisons pour l'Inde, en mars 2001. Les deux taches dans les cercles pointillés rouges, détectées comme étant des surfaces brûlées sur les images SPOT se retrouvent sur les images Landsat. D'autres vérifications (non présentées ici) avec la même méthode, mais sur d'autres zones (Chine, Asie du Sud-Est), comportant différents types de couvert végétal ont été effectuées. Ces catégories de couvert (herbacées, cultures et forêts) étant représentatives de celles rencontrées sur la totalité de notre domaine d'étude, la cohérence de la méthode choisie et de nos résultats est donc démontrée.

2.2.3 Développement de l'inventaire d'émissions pour les gaz et les particules

- **Prétraitement des données**

Une fois produites, les cartes de pixels classifiés comme étant des surfaces brûlées ont été introduites dans un logiciel d'analyse SIG (Système d'Information Géographique). Cette étape consiste à croiser plusieurs cartes entre elles : ainsi, les informations concer-

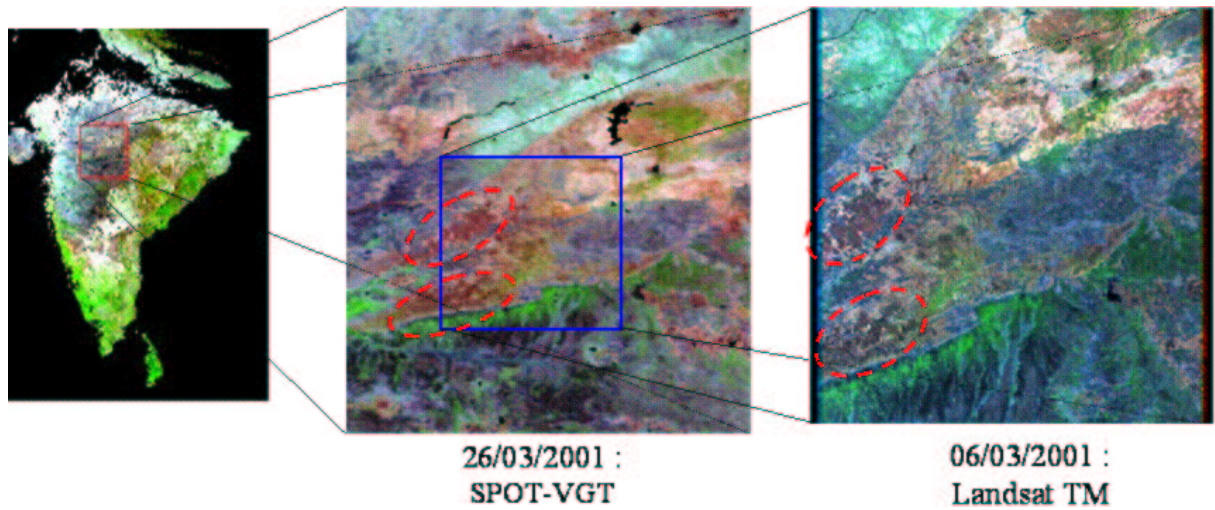


FIG. 2.1 – Comparaison des images Landsat-TM et SPOT-VEGETATION en Inde, mars 2001.

nant les surfaces brûlées peuvent être combinées avec les informations données par la carte de végétation. Les cartes et les tables résultant de cette analyse permettent d'effectuer des études statistiques, comme la distribution du type de végétation brûlée par pays ou encore la distribution latitudinale des surfaces brûlées. Par ailleurs, cette étape permet également de distribuer les surfaces brûlées dans une grille de $1^{\circ} \times 1^{\circ}$.

• Calcul des émissions

L'émission de l'espèce x se calcule selon la méthode suivante [Seiler and Crutzen, 1980] :

$$Q(x) = M \times EF(x) \quad (\text{Eq. 1})$$

Avec

Q : sources d'émissions de x , gaz ou aérosol considéré

$EF(x)$: facteur d'émission, défini comme le rapport entre la masse de x émise et la masse de végétation sèche consommée durant la combustion (g/kg de matière sèche).

M : biomasse brûlée

La quantité de biomasse brûlée M est calculée comme suit [Seiler and Crutzen, 1980] :

$$M = A \times B \times \alpha \times \beta \quad (\text{Eq. 2})$$

Où

A : surface brûlée (obtenue par analyse des données SPOT-VEGETATION)

B : densité de biomasse

α : fraction de biomasse au dessus de la surface du sol

β : efficacité de brûlage

Les facteurs d'émissions des gaz proviennent d'Andreae and Merlet (2001). Pour adapter les données aux classes de végétation, il m'a fallu établir une correspondance entre les classes de végétation considérées par Andreae et celles de la carte de végétation UMD (University of Maryland) [Hansen *et al.*, 2000] (voir table 1 de la publication).

Les facteurs d'émissions pour les particules ont été ré-estimés spécialement pour la zone asiatique et les onze classes de végétation de la carte UMD d'après les travaux de Liousse *et al.* (2004) (voir table 5.1 du chapitre 5).

De même, les efficacités de brûlage et les densités de biomasse ont été estimées à partir de l'étude de Palacios *et al.* (2002) qui rassemble les données de plusieurs études, pour les efficacités de brûlage [Akerelodu and Isichei, 1981 ; Bilbao and Medina, 1996 ; Dignon and Penner, 1996 ; Hoffa *et al.*, 1996 ; Hurst *et al.*, 1994 ; Kasischke *et al.*, 2000 ; Levine, 2000] et pour les densités de biomasse au dessus du sol ($\beta' = \beta \times \alpha$) [Olson *et al.*, 1985]. Ces détails sont précisés dans la publication présentée en section 2.4.

• Adaptation de l'inventaire

Bien que le système SPOT-VEGETATION ait une résolution temporelle journalière, un même point au sol est observé par le capteur Vegetation dans les mêmes conditions tous les 5 jours. De fait, si on observe les valeurs radiométriques enregistrées pour un pixel donné, elles augmentent progressivement du jour 1 au jour 5, puis reviennent à une valeur basse le jour 6 et ré-augmentent les 5 jours suivants et ainsi de suite. Ainsi, il n'est pas pertinent d'utiliser les données journalières. Des moyennes glissantes sur 5 jours ont donc

été calculées pour une meilleure représentativité.

L'inventaire d'émissions ABBI (Asian Biomass Burning Inventory) a donc été créé pour 58 espèces gazeuses et les 2 aérosols carbonés primaires (BC et OC_p). Or, comme nous le verrons au cours des chapitres suivants, la modélisation fait appel à des schémas chimiques plus ou moins réduits. Une agrégation des 58 gaz en espèces RACM a donc été réalisée d'après Middleton *et al.* (1990), Stockwell *et al.* (1997) et Stockwell *et al.* (1990), ainsi qu'en espèces ReLACS d'après Crassier *et al.* (2000) (voir table 4 de la publication pour les correspondances).

2.3 Les principaux résultats

Dans cette section, sont présentées les principales conclusions de cette étude, les résultats étant détaillés dans la publication (section 2.4).

• Comparaison entre ABBI et ACESS

ACESS (ACE-Asia and TRACE-P Modelling and Emision Support System) [Streets *et al.*, 2003; Woo *et al.*, 2003] est un inventaire « climatologique », basé sur des données statistiques, re-distribuées temporellement et spatialement d'après les données satellites de pixels de feux actifs (NOAA-AVHRR). Sa comparaison avec ABBI montre des émissions du même ordre de grandeur. Par exemple, la quantité totale de BC émise est de 1,85E+05 tonnes pour ACESS et de 2,50E+05 tonnes pour ABBI: il est important de noter que parmi les 2,50E+05 tonnes de BC de ABBI, 1,39E+05 tonnes sont relatives aux pays de la FSU (Former Soviet Union) et le Kazakhstan, contribution qui n'est pas prise en compte dans ACESS (voir figure 3 de la publication). Au delà de ce désaccord, les deux inventaires affichent des valeurs d'émissions très semblables: ce n'est qu'un hasard, car de grandes disparités spatio-temporelles peuvent être relevées (voir figures 2 de la publication). En particulier, les émissions dans ACESS sont plus importantes au début de la campagne ACE-Asia, notamment en Asie du sud-est et en Inde, alors que l'inventaire ABBI montre plutôt de fortes émissions en fin de campagne, avec une contribution importante des pays

de la FSU et du Kazakhstan..

De manière générale, la comparaison entre ABBI et ACESS montre qu'en dépit de multiples incertitudes, l'utilisation de surfaces brûlées pour la construction des inventaires d'émissions de feux de végétation (approche adoptée dans ABBI), est plus appropriée que la méthode composite utilisée dans ACESS pour une analyse d'épisodes spécifiques aux campagnes TRACE-P et ACE-Asia.

• Comparaison de l'inventaire ABBI entre 2000 et 2001

La distribution spatiale des feux et du type de couvert végétal qui brûle dépend de la période considérée, que ce soit pour 2000 ou 2001 : au début de la campagne ACE-Asia, les feux sont localisés entre 15°N-45°N et ce sont les espèces « forêt » qui sont les plus affectées, alors qu'à la fin de la campagne, les feux sont majoritairement situés dans la partie nord de la zone (entre 45°N-60°N) brûlant les espèces « herbacées ». De même, l'estimation de la surface brûlée totale pour les mois de mars, avril et les quinze premiers jours de mai est du même ordre de grandeur pour les années 2000 et 2001 : 189.238 km² et 213.626 km² pour 2000 et 2001 respectivement, avec une distribution temporelle de l'activité de feu quasi-identique.

Cependant même si la quantité de biomasse brûlée totale est comparable pour les deux années, d'importantes différences apparaissent si l'on observe la distribution des quantités de biomasse brûlée par type de végétation. Par exemple, pour la deuxième quinzaine de mars, alors que les surfaces brûlées sont plus importantes en 2001 qu'en 2000, la quantité de biomasse brûlée montre un profil opposé (plus de biomasse brûlée en 2000 qu'en 2001). Ce phénomène s'applique également aux émissions. En effet, sur cette même période (deuxième quinzaine de mars), les émissions de CO sont plus abondantes en 2000 qu'en 2001, comme les quantités de biomasse brûlée, mais à l'inverse des surfaces brûlées. Ce phénomène illustre l'importance des paramètres de végétation (valeurs de densité de biomasse et d'efficacité de brûlage) et du choix des facteurs d'émissions.

La répartition des émissions par pays change également entre 2000 et 2001. La figure 8 de la publication illustre cette variation pour les émissions de BC en Chine, en Inde et au Kazakhstan, pour 2000 et 2001. Les différences les plus importantes apparaissent au

début de la campagne ACE-Asia (première quinzaine de mars) pour l'Inde et la Chine où les émissions en 2001 sont plus de deux fois supérieures à celles de 2000 et pour les quinze premiers jours de mai pour le Kazakhstan où un facteur 100 de différence entre les deux années apparaît (2001 supérieur à 2000). Cette variabilité inter-annuelle montre donc toute l'importance qu'il y a d'utiliser un cadastre d'émissions spécifique à la période d'étude.

• Conclusions

La comparaison des résultats pour les années 2000 et 2001, obtenues d'après la même procédure de traitement, démontre l'importance de la variabilité inter-annuelle, notamment en terme de distribution spatio-temporelle des surfaces brûlées, de la quantité de biomasse brûlée, et des émissions. Ces variations sont différentes pour ces trois paramètres, qui dépendent du type de végétation brûlée et donc, des effets compétitifs entre variations des densités de biomasse et facteurs d'émissions.

Plusieurs avantages et inconvénients relatifs aux deux méthodes peuvent être extraits de cette étude :

Concernant l'approche *surfaces brûlées* :

· Avantages

- signatures de longue durée
- information structurale (surface géographique de la zone brûlée)
- bonne description de la saisonnalité des feux (comme les feux actifs)
- estimation rapide des émissions à l'échelle régionale

· Inconvénients

- incertitude sur la fraction de pixel réellement brûlée

Concernant l'approche *feux actifs* :

· Avantages

- estimation rapide des émissions à l'échelle globale (prévision)
- flux de chaleur : corrélation directe avec les émissions et donc bonne efficacité de détection pour les feux de forêts tropicales, mais **faux** autrement, car cer-

tains capteurs communément utilisés dans la détection des feux actifs, comme AVHRR (Advanced Very High Resolution Spectroradiometer), saturent. Les capteurs récents comme MODIS (Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer) qui équipent les satellites TERRA et AQUA ne présentent pas cette limitation.

· Inconvénients

- perte d'information par échantillonnage temporel
- incertitude sur la fraction de pixel réellement brûlée

Il n'existe donc pas de corrélation systématique entre les deux méthodes d'acquisition, car elles dépendent fortement du type de végétation, de la période et des conditions dans lesquelles le feu se produit.

Le meilleur compromis pour avoir le maximum d'informations sur ce qui brûle, où et quand, serait d'adopter une approche multi-systèmes. Par exemple, l'utilisation de feux actifs en forêt tropicale dense viendrait compléter l'utilisation de la méthode des surfaces brûlées retenue pour les autres types de végétation. Il serait également important d'utiliser la carte de végétation de l'année considérée, et de prendre en compte des facteurs saisonniers pour les densités de biomasse et les efficacités de brûlage.

2.4 Publication

Papier publié au Journal of Geophysical Research : Michel, C., C. Lioussé, J.-M. Grégoire, K. Tansey, G.R. Carmichael and J.-H. Woo (2005) : Biomass Burning emission inventory from burnt area data given by the SPOT-VEGETATION system in the frame of TRACE-P and ACE-Asia campaigns, JGR, 110, D09304, doi :10.1029/2004JD005461

Biomass burning emission inventory from burnt area data given by the SPOT-VEGETATION system in the frame of TRACE-P and ACE-Asia campaigns

C. Michel,¹ C. Lioussé,¹ J.-M. Grégoire,² K. Tansey,³ G. R. Carmichael,⁴ and J.-H. Woo⁴

Received 23 September 2004; revised 11 January 2005; accepted 27 January 2005; published 3 May 2005.

[1] One of the main uncertainties in the estimation of the climatic impact of aerosols is linked to our knowledge of gas and aerosol emissions. This is particularly crucial over Asia, where a strong regional fingerprint is observed, with different emission types, depending on the various vegetation and climate conditions (biomass burning emissions) and on the very fast changes of the population and industrialization (biofuel and fossil fuel emissions). The main contribution of this work is to derive a biomass burning inventory of $1^\circ \times 1^\circ$ over Asia (the Asian biomass burning inventory (ABBI)) for gases and particles for the Aerosol Characterization Experiment-Asia (ACE-Asia) and Transport and Chemical Evolution Over the Pacific (TRACE-P) campaign period (March to May 2001) in 2001. In this paper we apply new estimates of burnt biomass area to estimate emissions. The method is based on burnt areas (GBA2000 project; Tansey et al. (2002) and Grégoire et al. (2003)) obtained from 1 km resolution SPOT-VEGETATION satellite data. Regional-scale maps of burnt areas are produced, and then spatial and temporal emission distribution are obtained from biomass density and emission factors. Strength and weaknesses associated with the use of satellite products are discussed, including the problem of subpixel classification and the lack of validation data for the accuracy assessment of the products for the studied area. Estimated emissions are compared with ACE-Asia and TRACE-P Modeling and Emission Support System (ACCESS) climatological estimates. In addition, interannual variability is estimated by preparing inventories for the years 2000 and 2001.

Citation: Michel, C., C. Lioussé, J.-M. Grégoire, K. Tansey, G. R. Carmichael, and J.-H. Woo (2005), Biomass burning emission inventory from burnt area data given by the SPOT-VEGETATION system in the frame of TRACE-P and ACE-Asia campaigns, *J. Geophys. Res.*, 110, D09304, doi:10.1029/2004JD005461.

1. Introduction

[2] Emissions from biomass burning are known to significantly contribute to the injection of gases and aerosols in the atmosphere with local and global impacts. There is a huge uncertainty in biomass burning emission inventories, used for modeling exercises. The existing inventories (EDGAR [Olivier and Berdowski, 2001] and GEIA (<http://weather.engin.umich.edu/geia/index.html>)) [see also Cooke and Wilson, 1996; Lioussé et al., 1996; Streets et al.,

2003] are based on the relationship between the burnt biomass and the emission flux, linked by emission factors dependent on the combustion type and consequently on the burnt vegetation type [Seiler and Crutzen, 1980]. During the last decade, the characterization of the emissions has significantly improved. A series of experiments in Africa (DECAFE 1988, 1991, see http://www.insu.cnrs-dir.fr/documentation/Insu_doc/decafe_cadre_gene.html, SAFARI 1992, 2000, see <http://safari.gecp.virginia.edu/abstract/index.asp>, EXPRESSO, see http://www.insu.cnrs-dir.fr/documentation/Insu_doc/expresso.html) and in the United States and Brazil (SCAR C, SCAR B, see <http://asd-www.larc.nasa.gov/scar/>) have allowed the determination of emission factors for many chemical species, as a function of the combustion mode, with good accuracy [Andreae and Merlet, 2001; Lioussé et al., 2004]. Large uncertainty remains in the estimate of burnt biomass and in the temporal dynamics, namely seasonal and interannual, of this variable, and therefore on the assessment of burning efficiency and fire intensity. Most of the inventories quoted previously were based on the determination of the mean burnt biomass obtained from statistical data or for a climatic

¹Laboratoire d'Aérodynamique, Observatoire Midi-Pyrénées, Unité Mixte de Recherche 5560, Centre National de la Recherche Scientifique, Université Paul Sabatier, Toulouse, France.

²European Commission's Joint Research Centre, Institute for Environment and Sustainability, Ispra, Italy.

³Department of Geography, University of Leicester, Leicester, UK.

⁴Center for Global and Regional Environmental Research, University of Iowa, Iowa City, Iowa, USA.

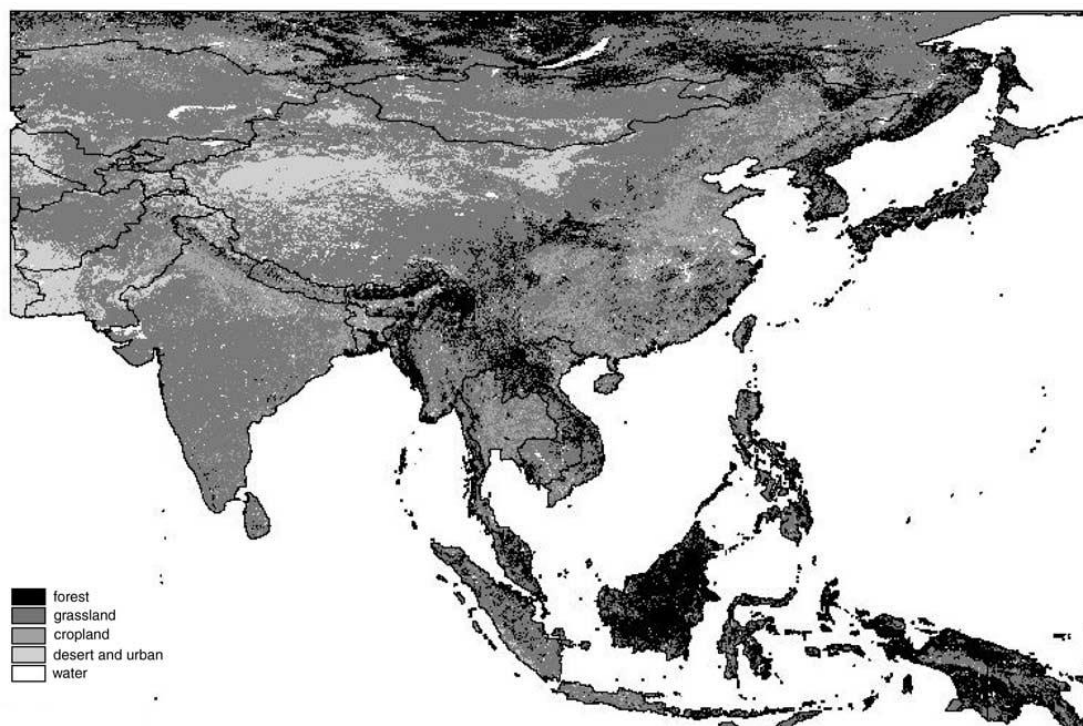


Figure 1. A land cover map [Hansen *et al.*, 2000] of the study area: 10°S–60°N; 59°E–150°E.

year. For example, Hao *et al.* [1990] and Cooke and Wilson [1996] assumed that about 80% of the savanna is burned in Africa on an annual basis.

[3] Recent developments centered on Africa have put forward a new method based on satellite imagery in order to better take into account spatial and temporal emission distributions. Satellite imagery provides both a long time series a high spatial frequency of fire products [Cooke *et al.*, 1999; Barbosa *et al.*, 1999; Lioussé *et al.*, 2004]. At the global scale, a new product from the European Space Agency (ESA) based on burnt area data [Hoelzemann *et al.*, 2004] has been released. Some of these studies have chosen to use the burnt area instead of “hot spots” (active fire occurrences) products. Indeed, as mentioned in the work of Lioussé *et al.* [2004], only a qualitative improvement could be possible with fire pixel products. The use of burnt area products allows us to minimize the effect of temporal sampling, i.e., the burnt areas have a spectral signature that can be observed over a longer time period and consequently this results in a quantitative improvement in the assessment of the burnt biomass.

[4] This paper presents a new emission inventory for biomass burning: Asian Biomass Burning Inventory (ABBI) for a large region of Asia based on the use of burnt area products for 2000 and 2001. Emissions are derived for a suite of gaseous compounds and aerosols. In the first part of the paper the methods used to derive the burnt areas and

emissions from satellite data are described. Results of this analysis are presented in the second part. These estimated emissions are compared to those based on fire counts and burnt areas developed for ACE-Asia and TRACE-P Modeling and Emission Support System (ACCESS) by Streets *et al.* [2003] and Woo *et al.* [2003]. Finally, the ABBI estimates are compared for years 2000 and 2001.

2. Method

[5] In this section, the procedure for deriving gas and particle emissions from satellite data is described including a presentation of the satellite data, a description of methods used to estimate burnt areas and then to derive emissions. The study area, presented in Figure 1, extends from the west of Kazakhstan (Ural Mountains) to the east of Japan and from the center of Russia to the south of Indonesia (10°S–60°N, 59°E–150°E). Indeed, such a frame allows us to take into account the fires expected to have the greatest impact on the ACE-Asia [Huebert *et al.*, 2003] and TRACE-P (<http://code916.gsfc.nasa.gov/Missions/TRACE-P/>) experiment zones.

2.1. Data Sources

[6] SPOT-VEGETATION imagery [Eastwood *et al.*, 1998; Fraser and Li, 2002] was used to produce the burnt area maps during the ACE-ASIA and TRACE-P campaigns

Table 1. Emission Factors for the Different Vegetation Classes of the UMD Product

| Vegetation Class | Corresponding EF |
|-----------------------------|----------------------------------|
| Evergreen needleleaf forest | extratropical forest |
| Evergreen broadleaf forest | tropical forest |
| Deciduous needleleaf forest | extratropical forest |
| Deciduous broadleaf forest | extratropical forest |
| Mixed forest | extratropical forest |
| Woodland | mean (extratropical + grassland) |
| Wooded grassland | grassland |
| Closed shrubland | mean (extratropical + grassland) |
| Open shrubland | grassland |
| Grassland | grassland |
| Cropland | cropland |

from March to May 2001 and from March to May 2000. The VEGETATION sensor on board the SPOT-4 platform was launched in March 1998 (<http://spot-vegetation.com>). The instrument observes a region of the Earth 2250 km wide with daily coverage. The satellite has an equatorial local crossing time of 10:30 in the morning local solar time. The across track resolution is approximately 1.1 km at nadir. The data are projected and interpolated to a constant pixel resolution of approximately 1 km². Four spectral bands are available: B0 between 0.43 and 0.47 μm (blue), B2 between 0.61 and 0.68 μm (red), B3 between 0.78 and 0.89 μm (near infrared) and SWIR between 1.58 and 1.75 μm (SWIR). The SWIR band, centered on 1.65 μm , has been proved to be useful for mapping burnt areas [Eastwood *et al.*, 1998; Eva and Lambin, 1998; Trigg and Flasse, 2000]. Daily surface reflectance (S1) products were used for this study. The information on the land cover type, also required to compute the emissions, was derived from the University of Maryland (UMD) global land cover product [DeFries *et al.*, 1998; Hansen *et al.*, 2000]. This land cover map includes 11 classes of vegetation that are listed in the Table 1.

2.2. Deriving Burnt Area Maps From SPOT-VEGETATION S1 Imagery

[7] The processing chain, developed for the Global Burnt Area 2000 (GBA2000) project [Grégoire *et al.*, 2003; Tansey *et al.*, 2004] was applied to the S1 images that were obtained for the period of interest: March to May 2001. Burnt areas for March to May 2000 were already available from the GBA2000 product.

2.2.1. Preprocessing of the SPOT-VEGETATION Imagery

[8] Before we apply the algorithm developed to yield burnt areas, the satellite data need to be effectively filtered. The quality of the results highly depends on this process. Briefly, this image preprocessing module can be separated into two parts. The first procedure removes pixels that could be detected as burnt pixels but which are not burnt, and include cloud shadows, water bodies and nonvegetated surfaces, or pixels with extreme values that could influence the operation of the algorithm. The second phase involved compositing of cloud and cloud shadow free daily images to produce a reference image to which the burnt area algorithm was applied.

2.2.2. Processing Module: Burnt Area Algorithm

[9] The algorithm, developed for GBA2000 by Ershov and Novik [2001] of the International Forestry Institute (IFI)

of Russia was used. This algorithm examines spectral characteristics on subregions of 200 by 200 km and derives burnt areas using two different methods depending on whether the land cover is forested or not.

2.2.3. Postprocessing Module

[10] In order to remove possible large remaining errors in the burnt area results, a postprocessing module is applied. It consists of the removal of a one pixel expanded water mask in order to remove problems occurring at shorelines [Tansey, 2002].

2.2.4. Output Products: Uncertainties and Quality Assessment

[11] The output products are the location (in latitude and longitude) of the pixels classified as burnt and the date of burning (<http://www.gvm.jrc.it/fire/gba2000/index.htm>). However, large uncertainties remain. These have recently been discussed in the work of Tansey *et al.* [2004, 2005]. A quantitative accuracy assessment of the overall GBA2000 products is ongoing [Boschetti *et al.*, 2004a, 2004b, 2004c]. For what concerns the uncertainty in the determination of the area effectively burned, previous work by Eva and Lambin [1998] has shown that a 1 km² pixel is classified as burnt when at least 50% (50 hectares (ha) in this case) of the area covered by the pixel is effectively burnt. This introduces an uncertainty when translating the number of pixels classified as burnt into an area. It also introduces a spatial filter, with burnt areas less than 50 hectares in size likely not detected. Another uncertainty is linked to the quantity of biomass actually burnt within each pixel. The burning efficiency varies widely as a function of the vegetation type and of the meteorological conditions at the time of the fire.

[12] The second group of uncertainties is linked to a series of difficulties encountered during data processing, especially due to the regional conditions and the timing of the study. For example, during the study period there was frequent dense cloud cover, small and scattered fires, and a wide range of vegetation cover types (desert to evergreen moist forest) and frequent precipitation due to the monsoon season commenced at the end of the experimental period.

[13] In order to check the consistency of our results, approximately twelve high resolution satellite imagery (Landsat TM 30 m resolution quick looks 2001) was analyzed over some areas where problems were observed. The comparison was satisfactory because the burnt scars observed in TM high resolution images were visible in the SPOT-VEGETATION low resolution data, despite the different spatial resolution.

2.3. Determination of the Emission Inventory

2.3.1. Multi-Information Map Preparation

[14] The burnt area maps, resulting from the above procedure were combined with other sources of data including vegetation maps, administrative maps and 1° × 1° grid maps. The data sets were entered into a Geographic Information System (GIS) to provide products of different categories such as burnt areas crossed with country and vegetation type, and burnt areas crossed with country and 1° × 1° grids. Furthermore, the burnt area maps at a resolution of 1 km² were crossed with the UMD land cover map, also at a resolution of 1 km². These categorized products provide information on the vegetation type that has been burnt in each 1° × 1° grid square during the time

Table 2. Primary Carbonaceous Aerosol Emissions Factors for the Eleven Vegetation Classes of the UMD Land Cover

| Vegetation Class | EF(BC) | EF(OC) |
|-----------------------------|--------|--------|
| Evergreen needleleaf forest | 0.6 | 6 |
| Evergreen broadleaf forest | 0.7 | 6.4 |
| Deciduous needleleaf forest | 0.6 | 6 |
| Deciduous broadleaf forest | 0.6 | 6 |
| Mixed forest | 0.6 | 6 |
| Woodland | 0.61 | 5 |
| Wooded grassland | 0.62 | 4 |
| Closed shrubland | 0.61 | 5 |
| Open shrubland | 0.62 | 4 |
| Grassland | 0.62 | 4 |
| Cropland | 0.725 | 2.1 |

period and over the area of study. These products were then re-sampled to a resolution of one degree. As an example of results of this analysis, we estimate that on 4 May, the fire associated with burnt pixels located at a grid centered at 17.5°N and 76.5°E (India), burnt 107 km² of wooded grassland, 6 km² of closed shrub land, 18 km² of open shrub land and 8 km² of grassland (vegetation information was derived from the UMD land cover product). In practice daily burnt area estimates are not used because of the large uncertainty in their accuracy. Concerning the temporal distribution, we expect an error between 5 days (delay between two observations at nadir) and 10 days (time during which a burnt scar remains characteristic) in the detection of the burnt area, especially in cloudy areas (for more information, see section 2.2.4).

2.3.2. Description of Emission Calculations

[15] The method used for the emission calculation for the species x is based on the following equation given by Seiler and Crutzen [1980]:

$$Q(x) = M \times EF(x), \tag{1}$$

where Q(x) denotes the gas or aerosol emission flux, M the amount of burnt biomass and EF(x) the emission factor given for the species x in grams of x per kilogram of dry matter (gx/kgdm).

[16] The emission factors given by Andreae and Merlet [2001] were used for the gases. For particles, the emission factors for both black carbon (BC) and primary organic carbon (OC_p) are summarized in Table 2 for each UMD vegetation class. These values have been specially selected for Asia study region and for the classes of the UMD land cover map (11 vegetation classes) present in the area, including recent experiments and reviews [Lioussé et al., 2004]. In some cases, EF values were not available for a specific vegetation class. Therefore correspondences between the UMD vegetation classes and main vegetation types with well known EF have been assumed from vegetation properties, as shown in Table 1. The particle EF were selected from results from ground and airplane measurements, which emission factors for OC_p were taken from ground measurements, and therefore do not include secondary formation of organics.

[17] Values for tropical forest and savanna fires were selected following Lioussé et al. [2004]. Values for extra-tropical forest fires were chosen following Susott et al. [1991] and Hobbs et al. [1996]. Values for cropland burning were based on Lioussé et al. [1996].

[18] The amount of burnt biomass M is given by Seiler and Crutzen [1980]:

$$M = A \times B \times \alpha \times \beta, \tag{2}$$

where A is the burnt area (m²), B the biomass density (g/m²), α the fraction of aboveground biomass, and β the burning efficiency. The value of A is provided by the satellite techniques described previously.

[19] The estimates of α and β are based on recent improvements in vegetation parameterization [Barbosa et al., 1999; Scholes et al., 1996; Van der Werf et al., 2003]. Table 3 provides values of the burning efficiency β for each UMD class, based on a review conducted by Palacios et al. [2002], who summarized several studies [Akeredolu and Isichei, 1991; Bilbao and Medina, 1996; Dignon and Penner, 1991; Hoffa et al., 1996; Hurst et al., 1994; Kasischke et al., 2000; Levine, 2000]. Values of the above-ground biomass density B (= B × α) are given in Table 3. The values that are available for the vegetation described in the Olson Global Ecosystem (OGE), 21 classes [Olson et al., 1985] have been adapted for the UMD land cover product. In addition, correspondences between vegetation denominations were defined. As an example, woodland and wooded grassland in the UMD land cover product correspond to woody savanna and savanna trees in OGE. It is important to preserve the details within the eleven UMD classes, and this allows us to consider important variations in biomass density values. Indeed, as shown in Table 3, the range of these values is from 1250 g/m² for grassland to 36,700 g/m² for evergreen needleleaf forest.

2.3.3. Temporal Distribution

[20] One of the main goals of this work is to provide emission estimated with a high temporal resolution. However, although the SPOT-VEGETATION system provides spectral measurements every day, it is only every five days that these measurements are provided under exactly the same viewing conditions. The consequence of this is that the radiometric values for a given location on the ground change from day one to day five and then returns to the original value on day six (provided nothing has changed on the land surface). Ultimately, better confidence is obtained by computing a moving average over five days.

2.3.4. Adaptation of the Emission Inventory to the Needs of Model Input

[21] Emission inventories have been derived for 58 gaseous species and for BC and OC particles. In addition

Table 3. Biomass Densities and Burning Efficiencies for the Eleven Vegetation Classes of the UMD Land Cover

| Vegetation Class | Biomass Density, g/m ² | Burning Efficiency |
|-----------------------------|-----------------------------------|--------------------|
| Evergreen needleleaf forest | 36,700 | 0.25 |
| Evergreen broadleaf forest | 23,350 | 0.25 |
| Deciduous needleleaf forest | 18,900 | 0.25 |
| Deciduous broadleaf forest | 20,000 | 0.25 |
| Mixed forest | 22,250 | 0.25 |
| Woodland | 10,000 | 0.35 |
| Wooded grassland | 3300 | 0.4 |
| Closed shrubland | 7200 | 0.5 |
| Open shrubland | 1600 | 0.85 |
| Grassland | 1250 | 0.95 |
| Cropland | 5100 | 0.60 |

D09304

MICHEL ET AL.: BIOMASS BURNING EMISSION INVENTORY

D09304

Table 4. Lumping of the Gas Species Into RACM and ReLACS Species and Their Corresponding Aggregation Factors

| ReLACS Species | Aggregation Factors | RACM Species | Aggregation Factors | Andreae and Merlet [2001] Species |
|-----------------|---------------------|-----------------|---------------------|-----------------------------------|
| NO | 1 | NO | 1 | NO |
| NO ₂ | 1 | NO ₂ | 1 | NO ₂ |
| SO ₂ | 1 | SO ₂ | 1 | SO ₂ |
| CO | 1 | CO | 1 | CO |
| CO ₂ | 1 | CO ₂ | 1 | CO ₂ |
| CH ₄ | 1 | CH ₄ | 1 | CH ₄ |
| N ₂ | 1 | N ₂ | 1 | N ₂ |
| H ₂ | 1 | H ₂ | 1 | H ₂ |
| ETH | 1 | ETH | 1 | ethane |
| ALKA | 0.77 | HC3 | 0.57 | propane |
| ALKA | 0.77 | HC3 | 1.11 | n-butane |
| ALKA | 0.77 | HC3 | 1.11 | i-butane |
| ALKA | 0.77 | HC3 | 0.41 | acetylene |
| ALKA | 0.77 | HC3 | 0.49 | methanol |
| ALKA | 0.77 | HC3 | 0.49 | methyl acetate |
| ALKA | 0.77 | HC3 | 1.37 | ethanol |
| ALKA | 1.23 | HC5 | 0.97 | n-pentane |
| ALKA | 1.23 | HC5 | 0.97 | n-hexane |
| ALKA | 1.23 | HC5 | 0.97 | iso-hexane |
| ALKA | 1.23 | HC5 | 1.07 | 1 propanol |
| ALKA | 1.23 | HC5 | 1.07 | butanol |
| ALKA | 1.58 | HC8 | 0.94 | heptane |
| ALKE | 0.96 | ETE | 1 | Ethane |
| ALKE | 1.04 | OLT | 1 | propene |
| ALKE | 1.04 | OLT | 1 | 1 butene |
| ALKE | 1.04 | OLT | 1 | 1 pentene |
| ALKE | 1.04 | OLT | 1 | 4 methyl 1 pentene |
| ALKE | 1.04 | OLT | 1 | 1 hexene |
| ALKE | 1.04 | OLT | 1 | octane |
| ALKE | 1.04 | OLT | 0.5 | i-butene |
| ALKE | 1.04 | OLT | 1 | styrene |
| ALKE | 1.04 | OLI | 1 | trans 2 butene |
| ALKE | 1.04 | OLI | 1 | cis 2 butene |
| ALKE | 1.04 | OLI | 1 | cyclopentene |
| ALKE | 1.04 | OLI | 0.5 | i-butene |
| ALKE | 1.04 | DIEN | 1 | butadiene |
| BIO | 1 | ISO | 1 | isoprene |
| ARO | 0.87 | TOL | 0.29 | benzene |
| ARO | 0.87 | TOL | 1 | toluene |
| ARO | 0.87 | TOL | 1 | ethylbenzene |
| ARO | 0.87 | TOL | 1 | styrene |
| ARO | 1.04 | XYL | 1 | xylene |
| ARO | 1.04 | CSL | 1 | phenol |
| HCHO | 1 | HCHO | 1 | formaldehyde |
| ALD | 1 | ALD | 1 | propenal |
| ALD | 1 | ALD | 1 | acetaldehyde |
| ALD | 1 | ALD | 1 | propanal |
| ALD | 1 | ALD | 1 | butanal |
| ALD | 1 | ALD | 1 | hexanal |
| ALD | 1 | ALD | 1 | furfural |
| ALD | 1 | ALD | 1 | heptanal |
| ALD | 1 | ALD | 1 | benzaldehyde |
| KET | 1 | KET | 0.33 | acetone |
| KET | 1 | KET | 1.61 | 2 butanone |
| KET | 1 | KET | 1.61 | heptanone |
| KET | 1 | KET | 1.61 | 2-3 butandione |
| KET | 1 | KET | 1.61 | pentanone |
| KET | 1 | KET | 1.61 | octanone |
| ORA2 | 1 | ORA1 | 1 | formic acid |
| ORA2 | 1 | ORA2 | 1 | acetic acid |

emission inventories were adapted to various chemical codes used in subsequent model analysis. An aggregation of the 58 gaseous species into the RACM species was done following *Middleton et al.* [1990] and *Stockwell et al.* [1990, 1997], and an aggregation into ReLACS species was performed following *Crassier et al.* [2000]. Table 4 summarizes the gaseous species that have been taken into

account and their distribution for the different RACM and ReLACS classes.

3. Results

[22] Figure 2 presents the geographic distribution of black carbon (BC) ABBI based emissions obtained with

the method previously described, from 1 March to 10 May 2001. More details dealing with spatial and temporal variation are presented in the third subsection below.

3.1. Comparison of Our Inventory (ABBI) With ACCESS Inventory

[23] A number of modifications were made to ABBI in order to study any similarity and difference with ACCESS inventory, which was used by several groups that analyzed the ACE-Asia and TRACE-P observations. BC emission factors from *Andreae and Merlet* [2001] were used for this comparison, in both the ABBI as well as ACCESS inventories. The ACCESS window is smaller than the ABBI window: therefore a common window has been selected for the comparison: 10°S–53°N, 60°E–150°E.

[24] The ACCESS inventory was prepared using burnt biomass amount obtained from National Surveys, considered as representative for a generic year in the interval of the 1990–2000. Biomass emissions were spatially and temporally distributed using remote sensing data (hot spots, instead of burnt area maps): The World Fire Web's 0.5° fire count data of 2001 (NOAA-AVHRR), and the TOMSAI data were used as additional information sources [*Streets et al.*, 2003; *Woo et al.*, 2003]. In this gridding phase, satellite fire counts were found to vary significantly for the FSU countries and Kazakhstan: this contribution of these countries has been consequently excluded from ACCESS inventory.

[25] Figure 2 shows the results of the BC emissions estimated by ABBI and ACCESS. The total amount of BC in ACCESS and ABBI are 1.83E + 05 t and 2.50E + 05 t, respectively.

[26] However, the spatial distributions are different. At the beginning of the TRACE-P period in the ACCESS inventory, the emissions are predominantly in Thailand, whereas the main emission areas are located in central China in ABBI. In the middle and at the end of the campaign, ABBI shows strong emissions in the northern part of the window. These regions were not included in the ACCESS inventory as hot spot data was not available during the experiment. Fires in the FSU and Kazakhstan countries represent 1.39E + 05 t of BC in the ABBI inventory, and this contributes to the estimates of ABBI being larger than these fire ACCESS. However, ABBI does not observe the large burning activity in India that is shown in ACCESS. Such a difference will be partly explained later. Large differences are also observed in terms of temporal distributions. Figure 3 shows that the ACCESS inventory, when compared to ABBI, are higher at the beginning of the campaign. At the end of the campaign, ABBI is greater than ACCESS, confirming the difference due to the

important contribution of the FSU and Kazakhstan countries.

[27] As mentioned by previous studies, the use of burnt areas seems more appropriate to quantitatively derive biomass burnt emissions, especially because it gives good structural information (i.e., geographical area of burnt scar). One reason for this is the fact that the fire events detected by the polar orbiting satellite systems such as NOAA-AVHRR correspond to only a small fraction of the fire events (i.e., those active during the very short period of the satellite over pass of the day). This introduces a large sampling bias in these products. The bias is much higher when using fire counts than when using burnt areas, as burnt areas integrate the fire activity over a rather long period of time (at least 10 days). Moreover the duration of fire events can be very short, less than one hour in the tropical belt, which means that it is extremely difficult to translate a fire count into a quantitative assessment of area burnt. The ACCESS method which is based on a climatic year, made the efforts to correct for this bias.

[28] However, the hot spot approach is probably more efficient for assessing the fire activity in the dense tropical forest, where burnt surfaces are often hidden by the tree canopy and detectable only via the heat flux of the fire event. However, problems arise for intensive fires which tend to saturate the heat flux sensors. The differences between ACCESS and ABBI in Southeast Asia can be explained by such a problem.

[29] Consequently, many explanations exist for the differences observed between ACCESS and ABBI. Indeed, in the hot spot methods, emissions can be either overestimated, due to the number of pixels really active, or underestimated, due to the heat flux saturation, and to the temporal sampling (satellite passage). In the burnt area method, fire activity in the dense tropical forest is most probably underestimated. As mentioned in section 2.2.4, uncertainty also exists in the use of burnt area products, especially related to estimate of the pixel fraction that is really burnt. Indeed, a 1 km² pixel is classified as burnt when at least 40% to 50% of the area covered by the pixel is effectively burnt. This type of uncertainty also exists when using the hot spot approach. For example in the humid savanna, a fire front of 50 m gives the spectral signature of an active fire for 1 km² pixel [*Behward et al.*, 1993].

[30] For the reasons outlined above, this comparison between inventories clearly shows that ABBI approach seems the most appropriate for episode specific analysis. The lack of fires in ACCESS in the north of the studied area results in a significant underestimation of the fire emissions (55% of the total fires). However, the underestimation of the fires by ABBI for the dense tropical forest is linked only to 7.5% of the total Asian vegetation.

Figure 2. A comparison of black carbon (BC) emission locations over a 10 day sampling period (the daily emissions are summed) in 2001. (a) BC (ACCESS) 1–10 March 2001. (b) BC (ABBI) 1–10 March 2001. (c) BC (ACCESS) 11–20 March 2001. (d) BC (ABBI) 11–20 March 2001. (e) BC (ACCESS) 20–31 March 2001. (f) BC (ABBI) 21–31 March 2001. (g) BC (ACCESS) 1–10 April 2001. (h) BC (ABBI) 1–10 April 2001. (i) BC (ACCESS) 11–20 April 2001. (j) BC (ABBI) 11–20 April 2001. (k) BC (ACCESS) 21–30 April 2001. (l) BC (ABBI) 21–30 April 2001. (m) BC (ACCESS) 1–10 May 2001. (n) BC (ABBI) 1–10 May 2001. (o) BC emissions (t/pixels). See color version of this figure at back of this issue.

D09304

MICHEL ET AL.: BIOMASS BURNING EMISSION INVENTORY

D09304

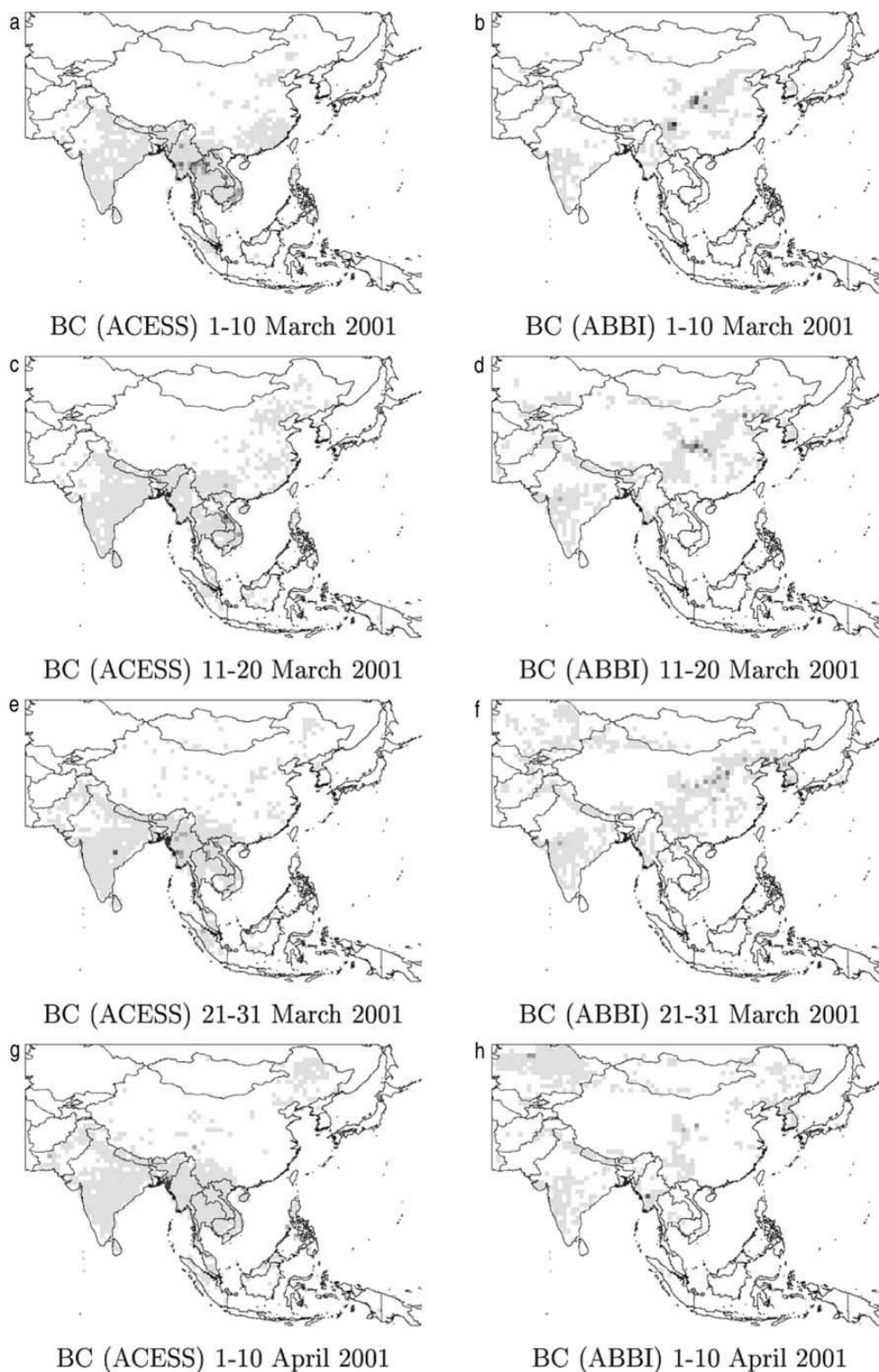


Figure 2

7 of 15

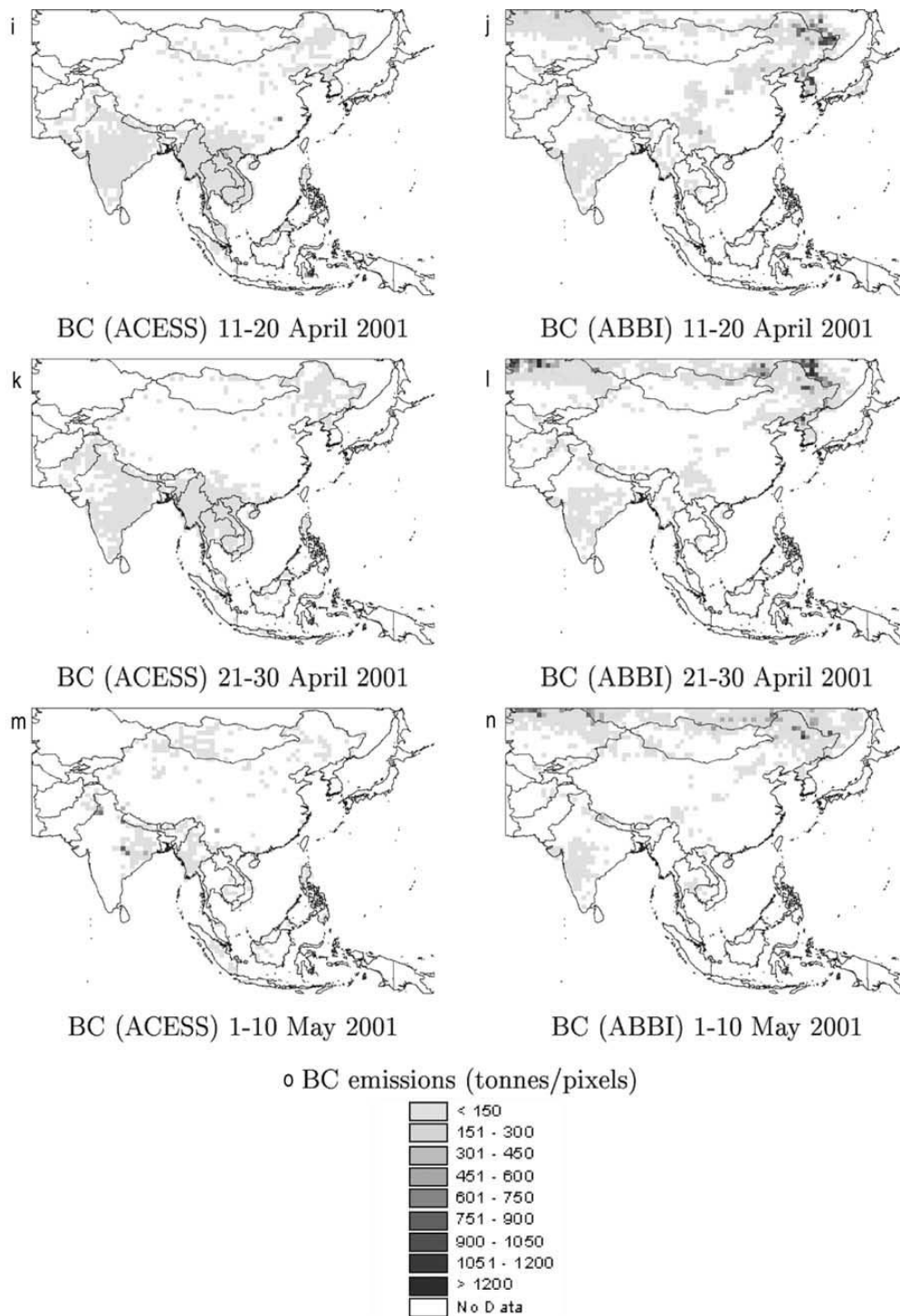


Figure 2. (continued)

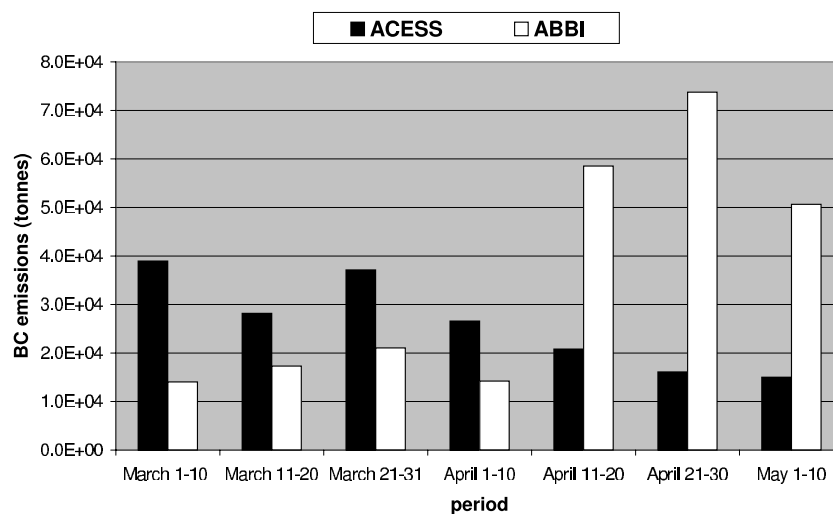


Figure 3. A comparison of the temporal distribution of black carbon (BC) emissions in the ACCESS and ABBI inventories over 10 day periods (the daily emissions are summed) in 2001.

[31] A systematic correlation between the two inventories was not performed as it is highly dependant of the type and condition of the vegetation and season. An improved emission estimate may be obtained using a multisystem approach, which would take advantage of all the global fire products made available by the remote sensing community. Specifically one could use the following.

[32] 1. The hot spot products in the dense tropical forest, as derived from the NOAA-AVHRR and Tropical Rainfall Measuring Mission–Visible and Infrared Scanner (TRMM-VIRS) systems (both day time), and from the European Remote Sensing Satellite–Along Track Scanning Radiometer (ERS-ATSR system (nighttime).

[33] 2. The burnt area products in all the other types of vegetation cover, as derived from the SPOT-VEGETATION (GBA2000), ERS-ATSR (GLOBSCAR) and TERRA/AQUA MODIS systems. This is the subject for future study.

3.2. Intercomparison of ABBI Inventory for 2000 and 2001

[34] The interannual variability of emissions estimated using ABBI was explored for two years (i.e., 2000 and 2001). We first focus on the type and distribution of the burnt biomass during the ACE-Asia and TRACE-P campaigns in 2001, then on CO and BC emissions. A comparison with the year 2000 is also presented, which has been processed using the same method as 2001.

3.2.1. Description of the Burnt Biomass

[35] Figure 4 shows the temporal distribution of burnt areas in March, April and the first half of May 2001. Vegetation fires are low at the beginning before growing in number until the end of the campaign. The maximum fire amount is in April and early May, which seems to signify the end of fire activity in this region, and is probably caused by the onset of the monsoon rains that occur in late May. This is especially true in the southern part of the study area. The results for 2000 have been added in Figure 4. We see

that the total estimate of burnt area in 2000 is slightly lower than in 2001 (except in May) with 189,238 km² compared to 213,626 km². Overall, the temporal distribution of burning activity is similar. Figure 5 shows that the main vegetation types burnt during the observation period (at 15 day intervals) is cropland, which represents 27% of the total burnt area. Grassland, woodland and wooded grassland also burn in considerable amounts when compared to the forest and shrub land families. A similar repartition (not presented here) is observed in the year 2000; except for the 1 to 15 May period where grassland and cropland were less affected (~50% less) by biomass burning than in 2001. For the same period, but contrary to the previous example, burning activity in deciduous broadleaf forest is doubled for the year 2000. For evergreen broadleaf forest, estimates for the year 2000 were 140 km², but almost zero (only 2 km² burnt) for 2001.

[36] Figure 6 shows the distribution of burnt areas for five periods of 15 days along 14 latitudinal strips, five degrees wide in 2001. In March, the vegetation fires are located between 15°N and 45°N as at latitudes greater than 45°N there is still snow cover. However, a few days after the snow has melted, from the beginning of April onward, the northern region is affected by fires. Such latitudinal distribution is also observed in the year 2000.

[37] The amount of burnt biomass is quite similar for the years 2000 and 2001, approximately 561 and 607 Tg of dry matter, respectively. Furthermore, the temporal distribution of burnt biomass data is in general agreement with the distribution of burnt areas. Differences occur when we focus on biomass burning per vegetation type. A few of these differences are noted here, for example, for the second half of March, the amount of burnt biomass is lower in 2001 (52.61 Tg of dry matter) than in 2000 (55.07 Tg of dry matter), whereas the burnt areas is seen to be higher in 2001 than in 2000. The same pattern is observed for the second half of April and in early May, again the

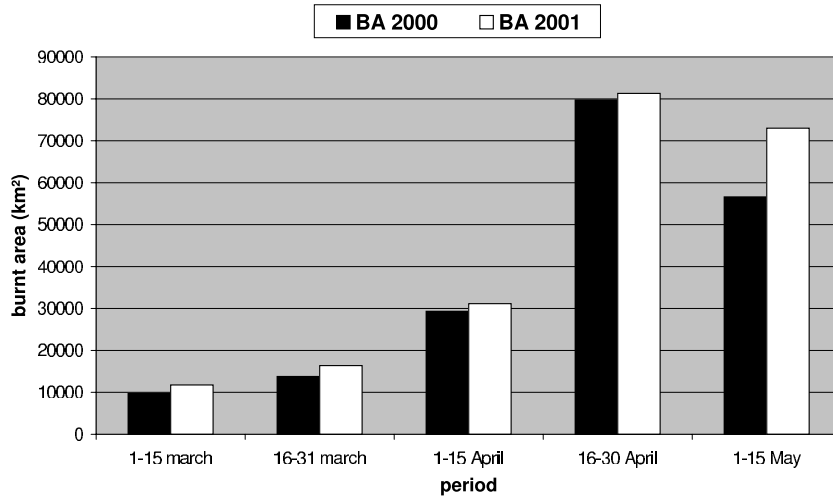


Figure 4. A comparison of the temporal distribution of burnt areas between the years 2000 and 2001 over 15 days periods (the daily data are summed).

difference between 2000 and 2001 is lower in terms of burnt biomass than in terms of burnt areas. It appears that burning of forests, characterized by high biomass density coefficients, causes these differences. This confirms the sensitivity of vegetation parameterization (choice of biomass density and burning efficiency) in the calculation of

the emissions and also the need for accurate land cover maps.

3.2.2. Distribution of Biomass Burning Emissions

[38] Differences between emissions in 2000 and 2001 are not very significant in terms of total amount of gases or particles. However important differences arise concerning

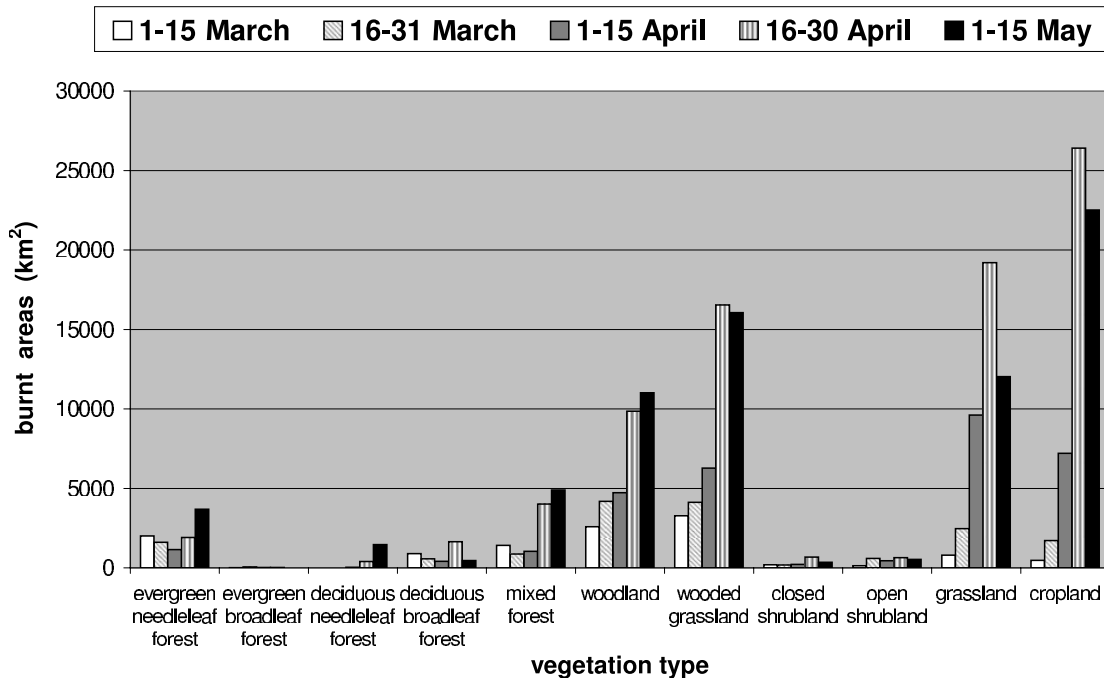


Figure 5. The distribution of burnt areas per vegetation type in March, April, and May 2001 (the daily data are summed over 15 day periods).

D09304

MICHEL ET AL.: BIOMASS BURNING EMISSION INVENTORY

D09304

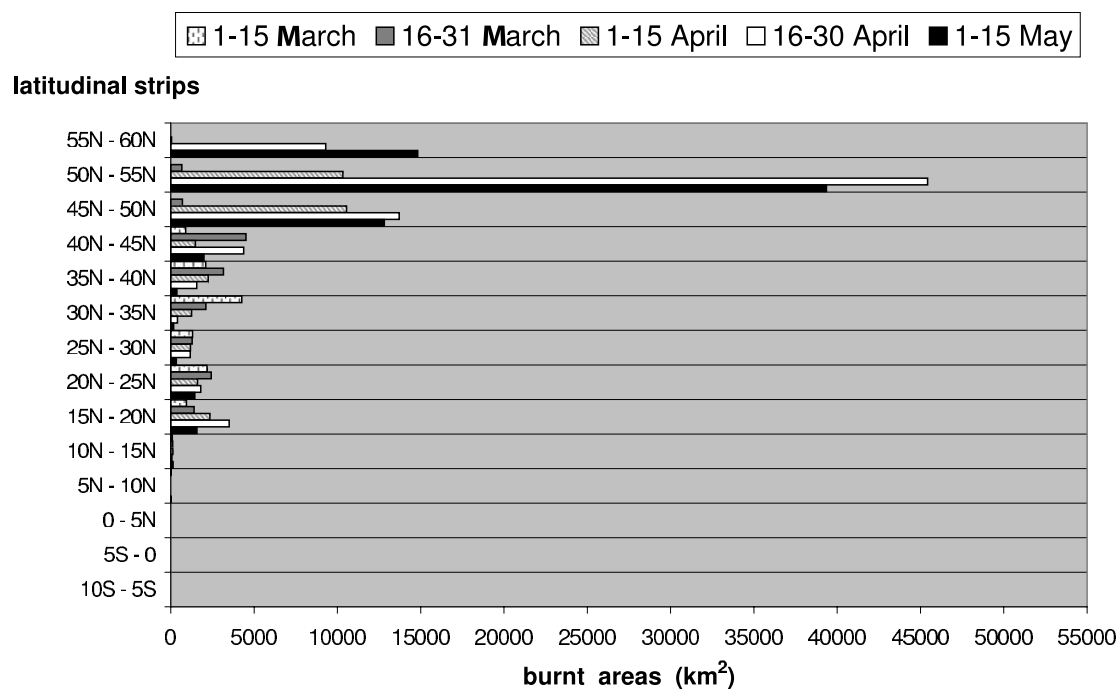


Figure 6. The latitudinal distribution (covering 14 strips, each of 5°) computed over 15 day periods in March and April and up to 15 May 2001.

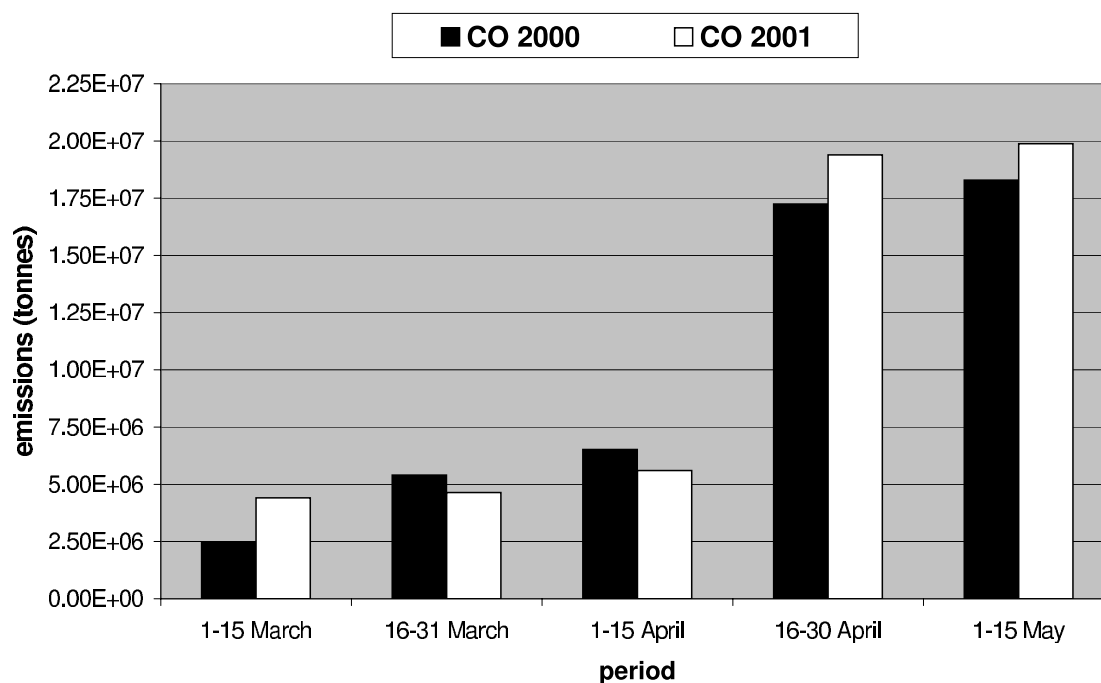


Figure 7. A comparison of the distribution of CO emissions between 2000 and 2001 over 15 day periods (the daily emissions summed for 15 days period).

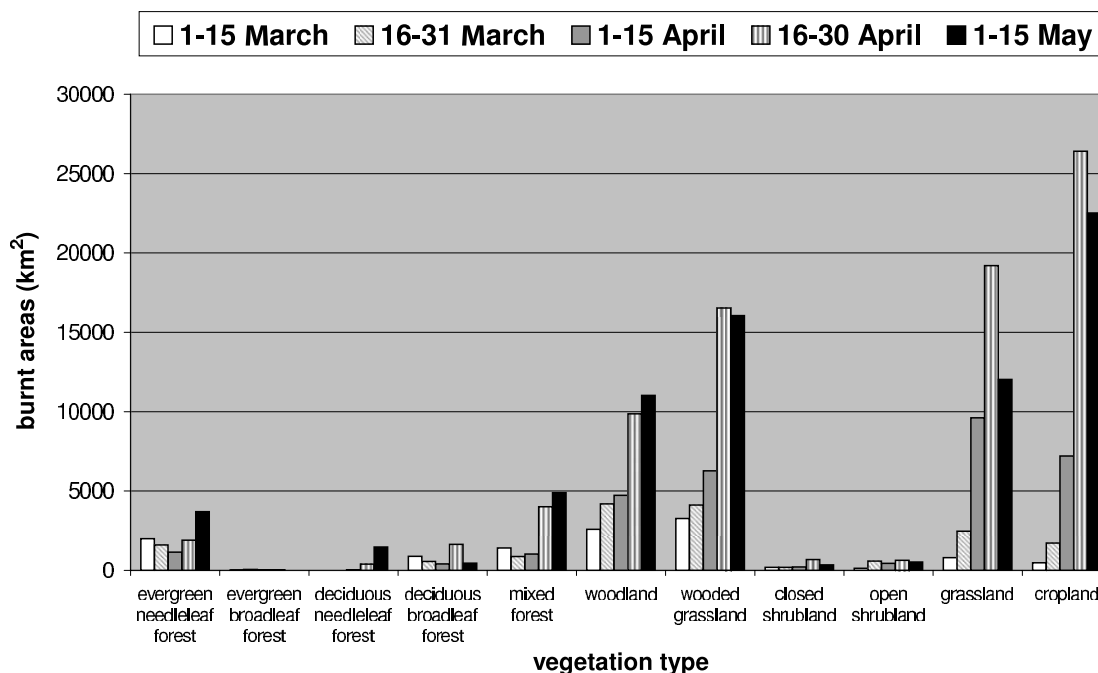


Figure 8. A comparison of the temporal distributions of black carbon (BC) emissions in China, India, and Kazakhstan over 15 days period (the daily emissions are summed) between the years 2000 and 2001.

the spatial and temporal distributions. Figure 7 shows the distribution and amount of CO emissions for the year 2001 during the months of March, April, and May. Values for 2000 have been added for comparison. For the whole studied period, the CO emissions are of the same order for the both years: $4.99E + 7$ and $5.39E + 7$ t of CO emitted in 2000 and 2001, respectively.

3.2.2.1. Temporal Distributions

[39] The temporal distribution of emissions (on the basis of 15 day comparisons) is in agreement with the burnt area and the burnt biomass temporal distributions. However, due to differences between the burnt vegetation types, more CO emissions are predicted in 2000 than in 2001 for the second period of March: $5.40E + 6$ t (2000) compared to $4.64E + 6$ t (2001) and for the first period of April: $6.52E + 6$ t (2000) compared to $5.61E + 6$ t (2001).

3.2.2.2. Spatial Distribution

[40] At the beginning of the ACE-Asia and TRACE-P period (March 2001), emissions are located in India, Southeast Asia, south and east of China. As previously seen with the burnt area distributions, from the end of March and during April, the emissions grow in the northern part of the window in Kazakhstan, southern Russia, Mongolia, and northern China, though being still present in the Southeast Asia. This evolution is the same for both years. Nevertheless, some shifts in space and time may be noticed with important differences in the intensity of the emissions. Figure 8 shows the temporal distribution of BC emissions over China, India, and Kazakhstan in 2000 and 2001. During the first period of March over India and China, BC emissions in 2000 are less than half the value of 2001,

whereas, during the second period of March, an opposite tendency is noticed in China. At the end of the studied period, a difference, amounting to a factor of 100, of the BC emissions appears between the two years over Kazakhstan ($2.38E + 3$ t of BC in 2000 compared to $2.12E + 4$ t in 2001). The area over Thailand shows that there were no emission during the first period in 2001, whereas 903 t of BC was emitted in 2000. This amount is important as during the other months emissions never exceeded 100 t of BC.

3.2.3. Discussion

[41] The main differences encountered when comparing the evolution of burnt areas, burnt biomass and BC and CO emissions, between 2000 and 2001 are found in their temporal and spatial distributions, which can be explained by variations in the type of vegetation burnt. Figure 9 shows for each vegetation class, the burnt area versus the total vegetated area for 2000 and 2001. It can be seen that the land cover classified as grasslands, comprising grassland, open and closed shrub land, woodland, wooded grassland, are always higher in 2001 than in 2000, except for the woodland class. For the forest classes, burning in both the evergreen forest and the deciduous needleleaf forest is more significant in 2000 than in 2001. If we now focus on the repartition in terms of percentage of the burnt areas per country and per vegetation type, large differences appear between both years. For example, 45% of the total forest fires are situated in Russia in 2000, compared to 38% in 2001, and with China contributing 38% in 2000 compared to 44% in 2001. For grassland fires, the highest difference occurs in Mongolia (10% in 2000 and 2% in 2001) and in Kazakhstan (16% in 2000 and 23% in 2001). India contrib-

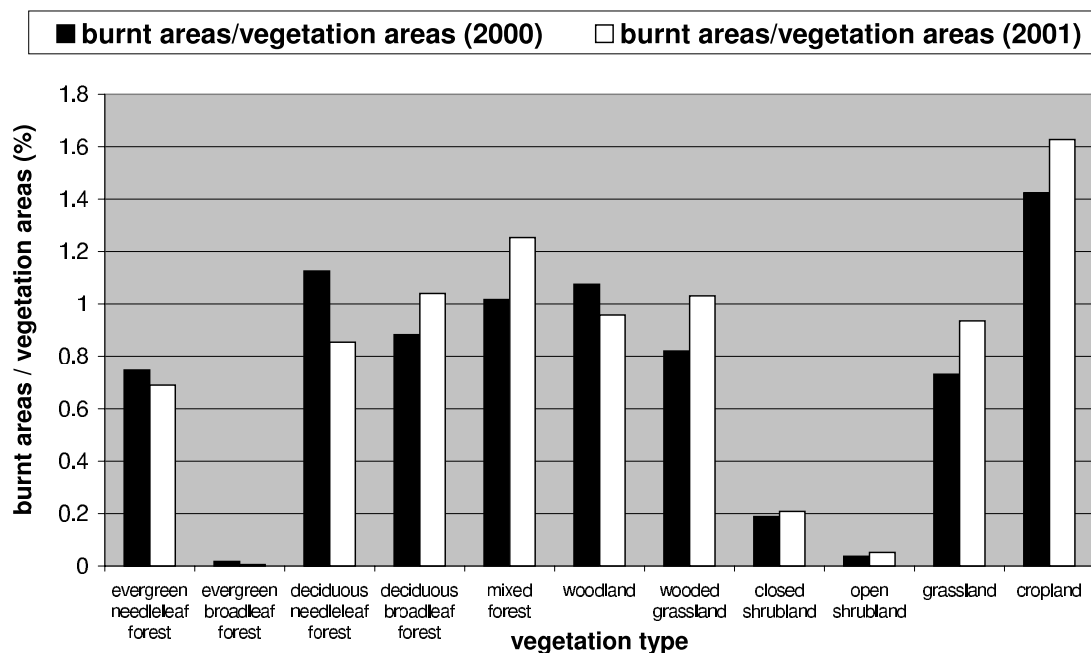


Figure 9. A comparison of the total burnt vegetation versus total vegetated area for the years 2000 and 2001.

uted 10% in 2000 and 15% in 2001. It is interesting to note that in this context, BC emissions in China are always lower in 2000 compared to 2001, whatever the vegetation type. The figures show that 43 Gg of BC were emitted in 2000 compared to 52 Gg in 2001 from grassland burning, 32 and 35 Gg of BC from forest burning and 18 and 23 Gg of BC from cropland burning in 2000 and 2001 respectively. Similar patterns are observed in South Korea, the total amount of BC emitted during ACE-Asia is 39 Gg and 51 Gg and in North Korea, 63 Gg and 103 Gg in 2000 and 2001 respectively. We note a systematic difference between China, North Korea and South Korea for 2000 and 2001.

[42] Finally, even though the global emission estimates are of the same order of magnitude for 2000 and 2001, a high variability of the spatial and temporal distribution have been shown, which confirms the need of using date specific of burnt area information data to build emission inventories.

4. Conclusion

[43] Biomass burning emission inventories derived from satellite burnt area data (called ABBI) provide a methodology to quantitatively improve the global biomass burning emission estimates. In this paper we apply this technique to the estimate of biomass burning emissions over Asia. Our results show that Asian biomass burning contributes significantly to the injection of gases and aerosols into the atmosphere. Indeed, values of the BC emissions from Asian fossil fuel consumption and biomass burning during the studied period, are found to be of the same order: $5.57E + 5$ t of fossil fuel BC [Lioussé *et al.*, 1996] compared to approximately $3.90E + 5$ t of biomass burning BC. The

use of satellite derived burnt area provides available information on both the location of fires as well as biomass burnt. However uncertainties still remain, including knowledge of the true fraction of a one km^2 pixel actually burnt. Investigations are ongoing to better improve this knowledge using a multi satellite approach [Boschetti *et al.*, 2004a, 2004b, 2004c; J.-M. Gregoire, EU Joint Research Centre, personal communication, 2003]. Further improvements require better emission factors and vegetation factors, as already mentioned by Kasischke and Penner [2004]. As shown in this paper, differences in burnt area alone do not imply a proportional change in emission estimates. In fact, total BC emissions over Asia from 1 March to 15 May 2001 are quite different depending on the choice of emission factors. From our value of $EF(BC)$, $3.90E + 5$ t of BC are estimated, compared to $4.77E + 5$ t of BC with the $EF(BC)$ estimate of Lioussé *et al.* [1996], and to $3.49E + 5$ t of BC with the $EF(BC)$ from Andreae and Merlet [2001].

[44] A comparison of Asian biomass burning emissions for the same period and area, derived from two different methods, one based on a climatic year of burnt biomass based on ground surveys and corrected by fire pixel distribution (ACCESS), and our inventory based on the burnt area mapping (ABBI), shows regional estimates of the same order ($1.11E + 5$ t of BC for ABBI (values excluding FSU and Kazakhstan contribution) and $1.83E + 5$ t of BC for ACCESS). However, significant spatial and temporal differences were observed. The comparisons of ABBI inventory for 2000 and 2001 have pointed out important interannual variability, especially in terms of the spatial and temporal distribution of burnt areas, burnt biomass and emissions. This variation is slightly different for the three parameters, which are highly dependent on the burnt vegetation type

and competitive effects between the variation of the biomass density and the emission factors.

[45] This analysis has also shown that despite all the uncertainties described in this paper, the method selected in our study is the most convenient for episode specific analysis in Asia.

[46] Finally, the results from this study have identified three major recommendations for further improvements.

[47] 1. The correlation between the two products burnt area and hot spot products depends strongly on the type and condition of the vegetation and time of year which makes it difficult to derive quantitative burnt area products from hot spot data. A multisystem approach that includes both hot spot and burnt area products, should provide better information on when it burns, where it burns and what burns.

[48] 2. Owing to the importance of vegetation type, a future study needs to combine the burnt area products with the recent Global Land Cover 2000 (GLC2000) product [Bartholomé and Belward, 2005], which has provided an improvement from existing land cover products derived from low resolution satellite data (IGBP-DIS and UMD). A comparison of emission inventories could be made for each of these land cover products.

[49] 3. Finally, the key method used in this paper to derive emissions, is highly linked to the availability of burnt area products. An encouraging development for our research community is the preparation of the Global Land Products for Carbon Model Assimilation (GLOBCARBON) project from the European Space Agency (ESA) based on methods developed by the GBA2000 project and covering the period 1998 to 2003.

References

- Akeredolu, F., and A. O. Isichei (1991), Emissions of carbon, nitrogen, and sulfur from biomass burning in Nigeria, in *Global Biomass Burning: Atmospheric, Climatic, and Biospheric Implications*, edited by J. S. Levine, pp. 162–166, MIT Press, Cambridge, Mass.
- Andreae, M. O., and P. Merlet (2001), Emissions of trace gases and aerosols from biomass burning, *Global Biogeochem. Cycles*, *15*(4), 955–966.
- Barbosa, P. M., D. Stroppiana, J.-M. Grégoire, and J. M. C. Pereira (1999), An assessment of vegetation fire in Africa (1981–1991): Burned areas, burned biomass, and atmospheric emissions, *Global Biogeochem. Cycles*, *13*, 933–950.
- Bartholomé, E., and A. S. Belward (2005), GLC2000: A new approach to global land cover mapping from Earth observation data, *Int. J. Remote Sens.*, in press.
- Belward, A. S., J.-M. Grégoire, G. D'Souza, S. Trigg, M. Hawkes, J.-M. Brustet, D. Serça, J.-L. Tireford, J.-M. Charlot, and R. Vuattoux (1993), In-situ real-time fire detection using NOAA-AVHRR data, in *Proceedings of the 6th AVHRR Data Users' Meeting, Belgirate, Italy, July 1993, EUMETSAT Rep. EUM P 12*, pp. 333–339, Eur. Org. for the Exploit. of Meteorol. Satellites, Darmstadt, Germany.
- Bilbao, E., and E. Medina (1996), Types of grassland fires and nitrogen volatilization in tropical Savannas of Calabozo, Venezuela, in *Biomass Burning and Global Change*, edited by J. S. Levine, pp. 569–574, MIT Press, Cambridge, Mass.
- Boschetti, L., H. Eva, P. A. Brivio, and J. Gallego (2004a), The validation protocol of GBA2000 global burned area maps, paper presented at IGARSS IEEE International Geoscience and Remote Sensing, Land Degradation and Fires Session, Geophys. Inst., Univ. of Alaska Fairbanks, Anchorage, Alaska, 20–24 Sept.
- Boschetti, L., H. Eva, P. A. Brivio, J. Gallego, and J.-M. Grégoire (2004b), Validation protocols for GBA2000, paper presented at CEOS Cal-Val Land Cover Validation Workshop, Comm. on Earth Observ. Satellites, Boston Univ., Boston, Mass., 2–4 Feb.
- Boschetti, L., H. D. Eva, P. A. Brivio, and J. M. Grégoire (2004c), Lessons to be learned from the comparison of three satellite-derived biomass burning products, *Geophys. Res. Lett.*, *31*, L21501, doi:10.1029/2004GL021229.
- Cooke, W. F., and J. J. N. Wilson (1996), A global black carbon aerosol model, *J. Geophys. Res.*, *101*, 19,395–19,409.
- Cooke, W. F., C. Lioussé, and H. Cachier (1999), Construction of a $1^\circ \times 1^\circ$ fossil fuel emission data set for carbonaceous aerosol and implementation and radiative impact in the ECHAM4 model, *J. Geophys. Res.*, *104*, 137–162.
- Crassier, V., K. Suhre, P. Tulet, and R. Rosset (2000), Development of a reduced chemical scheme for use in mesoscale meteorological models, *Atmos. Environ.*, *34*, 2633–2644.
- DeFries, R., M. Hansen, J. R. G. Townshend, and R. Sohlberg (1998), Global land cover classifications at 8 km spatial resolution: The use of training data derived from Landsat imagery in decision tree classifiers, *Int. J. Remote Sens.*, *19*, 3141–3168.
- Dignon, J., and J. E. Penner (1991), Biomass burning: A source of nitrogen oxides in the atmosphere, in *Biomass Burning and Global Change*, edited by J. S. Levine, pp. 370–375, MIT Press, Cambridge, Mass.
- Eastwood, J. A., S. E. Plummer, B. K. Wyatt, and B. J. Stocks (1998), The potential of SPOT-VEGETATION data for fire scare detection in boreal forests, *Int. J. Remote Sens.*, *19*, 3681–3687.
- Ershov, D. V., and V. P. Novik (2001), Features of burnt area mapping in forest of Siberia using SPOT S1-VEGETATION data, paper presented at GOCF Fire Satellite Product Validation Workshop, Guilbenkian Found., Lisbon, 9 July.
- Eva, H., and E. F. Lambin (1998), Burnt area mapping in Central Africa using ATSR data, *Int. J. Remote Sens.*, *19*(18), 3473–3497.
- Fraser, R. H., and Z. Li (2002), Estimating fire-related parameters in boreal forest using SPOT-VEGETATION, *Remote Sens. Environ.*, *82*, 95–110.
- Grégoire, J.-M., K. Tansey, and J. M. N. Silva (2003), The GBA2000 initiative: Developing a global burned area database from SPOT-VEGETATION imagery, *Int. J. Remote Sens.*, *24*(6), 1369–1376.
- Hansen, M., R. DeFries, J. R. G. Townshend, and R. Sohlberg (2000), Global land cover classification at 1km resolution using a decision tree classifier, *Int. J. Remote Sens.*, *21*, 1331–1365.
- Hao, W. M., M. H. Liu, and P. J. Crutzen (1990), Estimates of annual and regional releases of CO₂ and other trace gases to the atmosphere from fires in the tropics, based on the FAO Statistics for the period 1975–1980, in *Fire in the Tropical Biota, Ecol. Stud.*, vol. 84, edited by J. C. Goldammer, pp. 440–462, Springer, New York.
- Hobbs, P. V., J. S. Reid, J. A. Herring, J. D. Nance, R. E. Weiss, J. L. Ross, D. A. Hegg, R. D. Ottmar, and C. Lioussé (1996), Particle and trace gas measurements in the smoke from prescribed burns of forest products in the Pacific Northwest, in *Biomass Burning and Global Change*, edited by J. S. Levine, pp. 697–715, MIT Press, Cambridge, Mass.
- Hoelzemann, J. J., M. G. Schultz, G. P. Brasseur, C. Granier, and M. Simon (2004), Global Wildland Fire Emission Model (GWEM): Evaluating the use of global area burnt satellite data, *J. Geophys. Res.*, *109*, D14S04, doi:10.1029/2003JD003666.
- Hoffa, E. A., D. E. Ward, W. M. Hao, R. A. Susott, and R. H. Wakimoto (1996), Seasonality of carbon emissions from biomass burning in a Zambian savanna, *J. Geophys. Res.*, *101*(D11), 13,841–13,853.
- Huebert, B. J., T. Bates, P. B. Russell, G. Shi, Y. J. Kim, K. Kawamura, G. Carmichael, and T. Nakajima (2003), An overview of ACE-Asia: Strategies for quantifying the relationships between Asian aerosols and their climatic impacts, *J. Geophys. Res.*, *108*(D23), 8633, doi:10.1029/2003JD003550.
- Hurst, D. F., D. W. T. Griffith, and G. D. Cook (1994), Trace gas emissions from biomass burning in tropical Australian savannas, *J. Geophys. Res.*, *99*(D8), 16,441–16,456.
- Kasischke, E. S., and J. E. Penner (2004), Improving global estimates of atmospheric emissions from biomass burning, *J. Geophys. Res.*, *109*, D14S01, doi:10.1029/2004JD004972.
- Kasischke, E. S., B. J. Stocks, K. O'Neill, N. H. F. French, and L. L. Bourgeau-Chavez (2000), Direct effect of fire on the boreal forest carbon budget, in *Biomass Burning and Its Inter-Relationships With the Climate System*, edited by J. L. Innes, M. Beniston, and M. M. Verstraet, pp. 61–71, Dordrecht, Norwell, Mass.
- Levine, J. S. (2000), Global biomass burning: A case study of the gaseous and particulate emissions released to the atmosphere during the 1997 fires in Kalimantan and Sumatra, Indonesia, in *Biomass Burning and Its Inter-Relationships With the Climate System*, edited by J. L. Innes, M. Beniston, and M. M. Verstraete, pp. 15–31, Dordrecht, Norwell, Mass.
- Lioussé, C., J. E. Penner, C. Chuang, J. J. Walton, H. Eddleman, and H. Cachier (1996), A global three-dimensional model study of carbonaceous aerosols, *J. Geophys. Res.*, *101*, 19,411–19,432.
- Lioussé, C., et al. (2004), Deriving global quantitative estimates for spatial and temporal distributions of biomass burning emissions, in *Emissions of Atmospheric Trace Compounds*, edited by C. Granier, P. Artaxo, and C. Reeves, pp. 71–113, Dordrecht, Norwell, Mass.

- Middleton, P., W. R. Stockwell, and W. P. L. Carter (1990), Aggregation and analysis of volatile organic compound emissions for regional modelling, *Atmos. Environ. Part A*, *24*, 1107–1133.
- Olivier, J. G. J., and J. J. M. Berdowski (2001), Global emission sources and sinks, in *The Climate System*, edited by J. Berdowski, R. Guicherit, and B. J. Heij, pp. 33–78, A. A. Balkema, Brookfield, Vt.
- Olson, J. S., J. A. Watts, and L. J. Allison (1985), Major world ecosystem complexes ranked by carbon in live vegetation: A database NPD017, Oak Ridge Lab., Oak Ridge, Tenn.
- Palacios, A., E. Chuvieco, and C. Camona-Moreno (2002), *FUEGO II Project: Development of Global Fire Analysis GIS Modules—Trace Gas Emission Estimation in Biomass Burning*, Rep. EUR 20376 EN: 41, Eur. Comm., Luxembourg.
- Scholes, R. J., D. E. Ward, and C. O. Justice (1996), Emissions of trace gases and aerosol particles due to vegetation burning in southern hemisphere Africa, *J. Geophys. Res.*, *101*, 23,677–23,682.
- Seiler, W., and P. J. Crutzen (1980), Estimates of gross and net fluxes of carbon between the biosphere and the atmosphere from biomass burning, *Clim. Change*, *2*, 207–248.
- Stockwell, W. R., P. Middleton, J. S. Chang, and X. Tang (1990), The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modelling, *J. Geophys. Res.*, *95*, 16,343–16,367.
- Stockwell, W. R., F. Kirchner, M. Kühn, and S. Seefeld (1997), A new mechanism for regional atmospheric chemistry modelling, *J. Geophys. Res.*, *102*, 25,847–25,879.
- Streets, D. G., K. F. Yarber, J.-H. Woo, and G. R. Carmichael (2003), Biomass burning in Asia: Annual and seasonal estimates and atmospheric emissions, *Global Biogeochem. Cycles*, *17*(4), 1099, doi:10.1029/2003GB002040.
- Susott, R. D., D. E. Ward, R. E. Babitt, and D. J. Latham (1991), The measurement of trace emissions and combustion characteristics for a mass fire, in *Global Biomass Burning: Atmospheric, Climatic and Biospheric Implications*, edited by J. S. Levine, pp. 245–257, MIT Press, Cambridge, Mass.
- Tansey, K. (2002), Implementation of regional burnt area algorithms for the GBA2000 initiative, Rep. EUR 20532, 159 pp., Eur. Comm., Luxembourg.
- Tansey, K., et al. (2004), Vegetation burning in the year 2000: Global burned area estimates from SPOT VEGETATION data, *J. Geophys. Res.*, *109*, D14S03, doi:10.1029/2003JD003598.
- Tansey, K., et al. (2005), A global inventory of burned areas at 1km resolution for the year 2000 derived from SPOT VEGETATION data, *Clim. Change*, *67*(2), 345–377.
- Trigg, S., and S. Flasse (2000), Characterizing the spectral-temporal response of burned savannah using in situ spectroradiometric and infrared thermometry, *Int. J. Remote Sens.*, *21*, 3161–3168.
- Van der Werf, G. R., J. T. Randerson, G. J. Collatz, and L. Giglio (2003), Carbon emissions from fires in tropical and subtropical ecosystems, *Global Change Biol.*, *9*(4), 547–562.
- Woo, J., et al. (2003), Contribution of biomass and biofuel emissions to trace gas distributions in Asia during the TRACE-P experiment, *J. Geophys. Res.*, *108*(D21), 8812, doi:10.1029/2002JD003200.

G. R. Carmichael and J.-H. Woo, Center for Global and Regional Environmental Research, University of Iowa, Iowa City, IA 52242, USA.
 J.-M. Grégoire, European Commission's Joint Research Center, Institute for Environment and Sustainability, TP 440, I-21020 Ispra (VA), Italy.
 C. Lioussé and C. Michel, Laboratoire d'Aérodynamique, OMP, UMR 5560 CNRS-UPS, 14 Avenue E. Belin, F-31400 Toulouse, France. (micc@aero.obs-mip.fr)
 K. Tansey, Department of Geography, University of Leicester, University Road, Leicester LE1 7RH, UK.

Figure 2. A comparison of black carbon (BC) emission locations over a 10 day sampling period (the daily emissions are summed) in 2001. (a) BC (ACCESS) 1–10 March 2001, (b) BC (ABBI) 1–10 March 2001, (c) BC (ACCESS) 11–20 March 2001, (d) BC (ABBI) 11–20 March 2001, (e) BC (ACCESS) 20–31 March 2001, (f) BC (ABBI) 21–31 March 2001, (g) BC (ACCESS) 1–10 April 2001, (h) BC (ABBI) 1–10 April 2001, (i) BC (ACCESS) 11–20 April 2001, (j) BC (ABBI) 11–20 April 2001, (k) BC (ACCESS) 21–30 April 2001, (l) BC (ABBI) 21–30 April 2001, (m) BC (ACCESS) 1–10 May 2001, (n) BC (ABBI) 1–10 May 2001, (o) BC emissions (t/pixels).

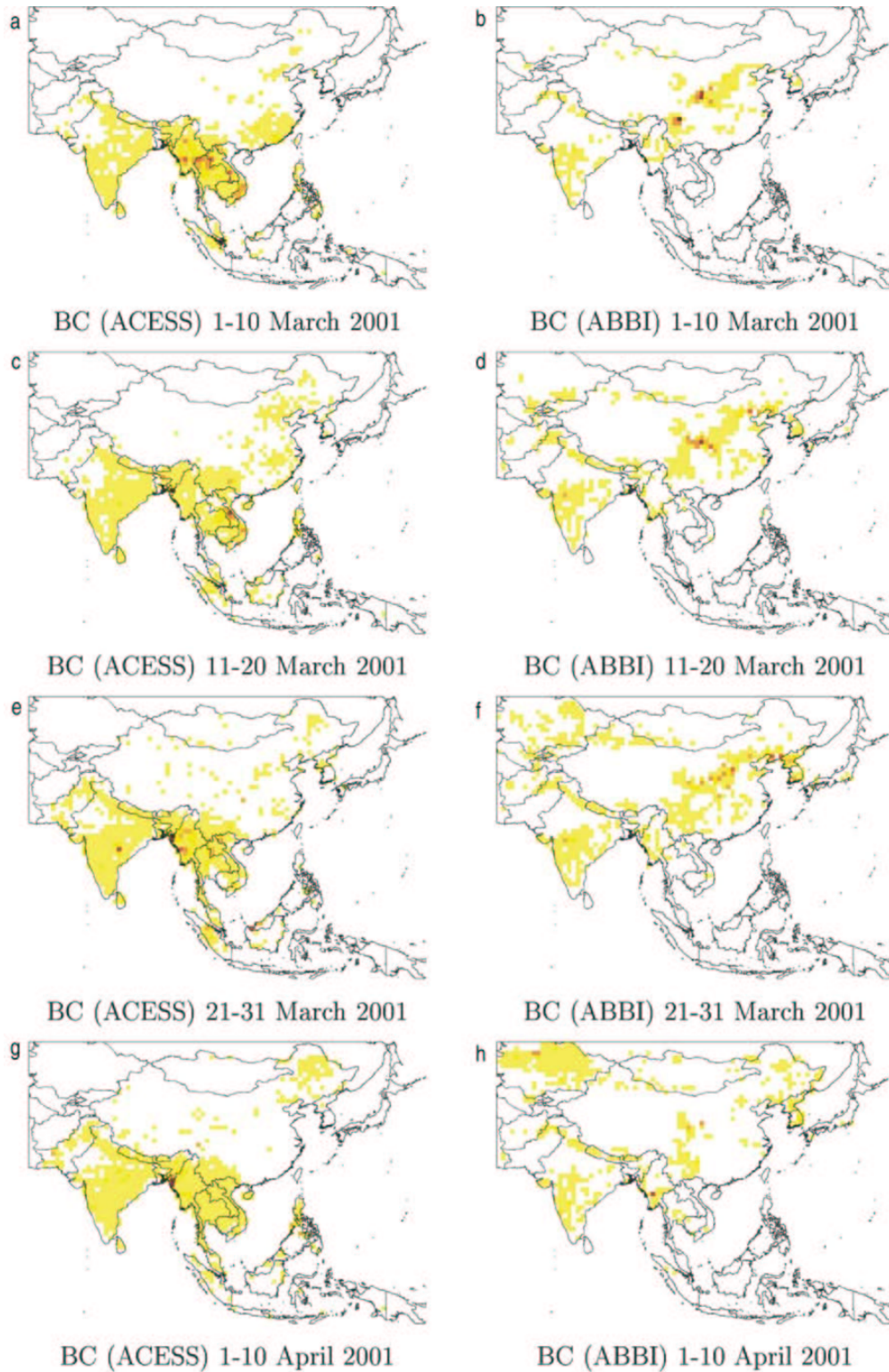


Figure 2

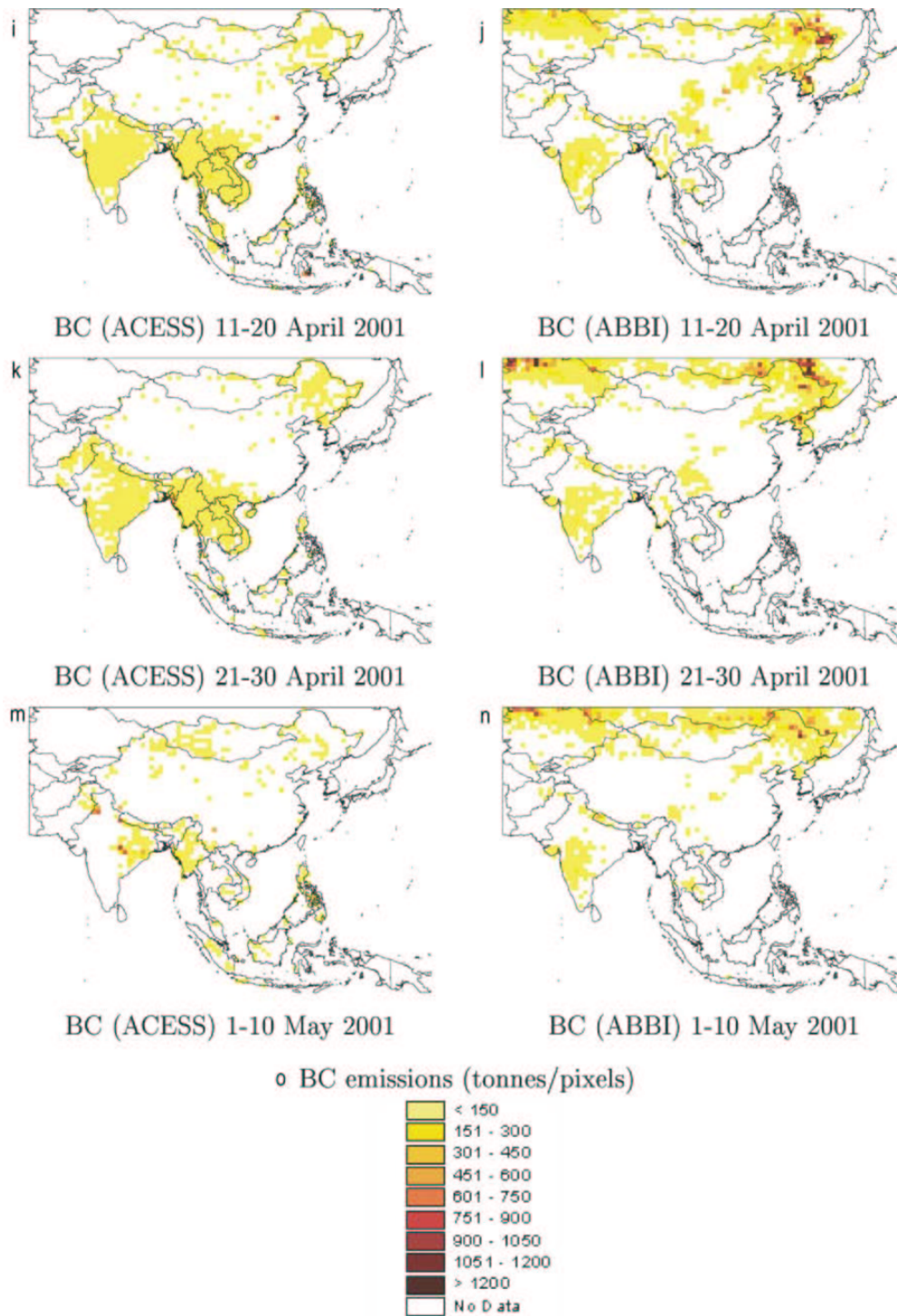


Figure 2. (continued)

Chapitre 3

Modélisation de l'aérosol carboné

Sommaire

| | | |
|------------|---|-----------|
| 3.1 | Introduction | 70 |
| 3.2 | Présentation du modèle ORISAM | 71 |
| 3.2.1 | Traitement général des aérosols | 71 |
| 3.2.2 | Choix de la représentation granulométrique | 72 |
| 3.2.3 | Le modèle microphysique | 73 |
| 3.2.4 | Le modèle thermodynamique pour les espèces minérales | 75 |
| 3.2.5 | Formation des aérosols organiques secondaires | 75 |
| 3.2.6 | Le modèle de cinétique chimique | 80 |
| 3.3 | Le modèle MésoNH-C | 82 |
| 3.3.1 | Présentation de MésoNH-C | 82 |
| 3.3.2 | Couplage MésoNH-C/ORISAM | 85 |
| 3.4 | Choix des conditions d'initialisation de MésoNH-C-ORISAM | 89 |
| 3.4.1 | Configuration du modèle pour notre étude | 89 |
| 3.4.2 | Choix d'initialisation météorologique et de la chimie gazeuse | 89 |
| 3.4.3 | Condition d'initialisation des particules | 92 |
| 3.5 | Conclusion | 94 |

3.1 Introduction

La modélisation des aérosols est complexe, car elle nécessite la prise en compte conjointe de la phase gazeuse et de la phase particulaire et de leurs interactions, ainsi que des processus microphysiques affectant les particules. Devant cette difficulté, la plupart des modèles d'aérosols précédemment développés ne considéraient que certaines espèces aérosols (sulfates, ou particules carbonées) découplées de la chimie gazeuse ou bien, utilisant des équations simplifiées (cas des sulfates). Le modèle ORISAM (ORganic and Inorganic Spectral Aerosol Module) [Bessagnet, 2000; Bessagnet and Rosset, 2001; Bessagnet *et al.*, 2004], présente la particularité de prendre en compte à la fois, en mélange interne, les espèces organiques et inorganiques dans les aérosols et leur formation, ainsi que leurs interactions avec les gaz.

Les espèces particulières du module ORISAM sont les suivantes :

- BC : carbone suie
- OC_p : carbone organique primaire
- SOAA : aérosol organique secondaire d'origine anthropique
- SOAB : aérosol organique secondaire d'origine biogénique
- H₂SO₄ : sulfates
- HNO₃ : nitrates
- NH₃ : ammonium
- Water : eau

BC, OC_p, et NH₃ sont de nature primaire (émis directement à la source), alors que les autres espèces (dites secondaires) sont formées par oxydation de leur précurseurs gazeux. La composition de ces particules est supposée en mélange interne (par opposition au mélange externe), c'est à dire qu'elles ont la même composition chimique pour une même classe de taille (ou section).

Dans ce chapitre, les processus microphysiques inclus dans le modèle ORISAM seront

présentés. Les processus concernant les particules carbonées seront détaillés, notamment la formation des aérosols organiques secondaires. Ensuite, une présentation succincte du modèle MésoNH-C, ainsi que les modifications effectuées pour le couplage avec ORISAM seront exposées.

3.2 Présentation du modèle ORISAM

3.2.1 Traitement général des aérosols

L'évolution de la concentration en nombre de l'espèce i dans l'aérosol, caractérisée par sa concentration et sa composition chimique, est gouvernée par l'équation suivante [Friedlander, 1977]:

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} = -\vec{\nabla}(n_i \cdot \vec{v}) + \nabla \vec{K} \nabla n_i + \left(\frac{\partial n_i}{\partial t}\right)_{grow} + \left(\frac{\partial n_i}{\partial t}\right)_{coag} + \left(\frac{\partial n_i}{\partial t}\right)_{rem} + \left(\frac{\partial n_i}{\partial t}\right)_{emis} \quad (3.1)$$

avec

$-\vec{\nabla}(n_i \cdot \vec{v})$: advection

$\nabla \vec{K} \nabla n_i$: diffusion

$\left(\frac{\partial n_i}{\partial t}\right)_{grow}$: croissance ou décroissance du nombre d'aérosols dues à la condensation des gaz, à l'évaporation des aérosols, au changement de densité de l'aérosol et de la nucléation de nouveaux aérosols

$\left(\frac{\partial n_i}{\partial t}\right)_{coag}$: coagulation entre aérosols

$\left(\frac{\partial n_i}{\partial t}\right)_{rem}$: perte par sédimentation

$\left(\frac{\partial n_i}{\partial t}\right)_{emis}$: émission d'aérosols primaires

Le modèle ORISAM (ORganic and Inorganic Spectral Aerosol Module) comporte plusieurs modules couplés entre eux :

- un module de cinétique chimique (pour les espèces gazeuses organiques et inorganiques)
- un module de microphysique
- un module thermodynamique (pour les espèces particulières inorganiques)

- un module de formation des SOA (aérosol organique secondaire)

Le modèle ORISAM est un modèle de « boîte » dont la hauteur est définie par l'épaisseur de la couche limite. Seule l'évolution physico-chimique des composés est représentée dans un contexte météorologique imposé.

Pour évaluer les différents processus qui gouvernent l'évolution de l'aérosol, il importe au préalable de choisir une description de l'évolution en taille des particules.

3.2.2 Choix de la représentation granulométrique

L'une des difficultés en modélisation des aérosols réside dans le traitement de leur granulométrie et de son évolution (du mode nucléation au mode grossier). En effet, comme souligné au chapitre 1, la taille des aérosols joue un rôle important, particulièrement en terme d'impact sanitaire ou radiatif (cf paragraphe 1.2.1.3). A des fins de modélisation, il existe plusieurs descriptions mathématiques possibles pour traduire cette information. La figure 3.1 illustre ces différentes approches.

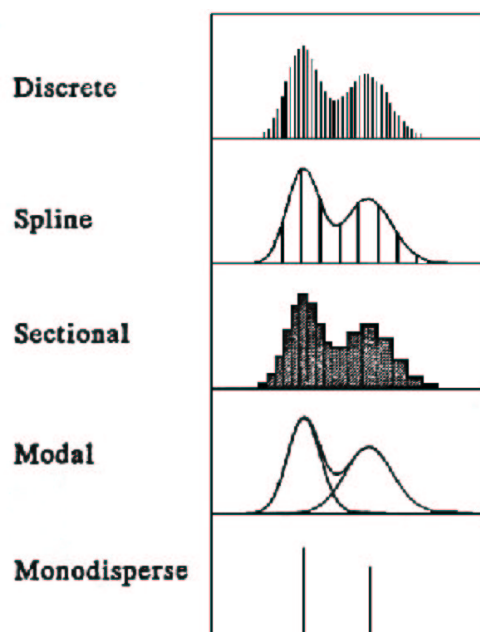


FIG. 3.1 – Types de répartitions granulométriques des aérosols.

La modélisation utilise le plus souvent deux types de représentations pour le com-

portement des aérosols : la représentation modale et la représentation sectionnelle. Les différentes gammes de tailles dans la représentation modale [Whitby, 1991 ; Crassier, 1999] sont représentées par des fonctions de distribution mathématiques, le plus souvent une loi de type log-normal. Cette approche a l'avantage de limiter le nombre de variables, mais le choix de la fonction mathématique (log-normal, Gamma ...) impose la forme de la distribution.

La représentation sectionnelle réalise l'approximation d'une distribution continue en taille par un nombre fini de sections ou bins [Warren, 1986 ; Jacobson, 1997]. Chaque bin contient un nombre de particules ayant toutes le même volume moyen et la même composition chimique. Quand les particules grossissent, leur volume augmente et elles peuvent passer dans une classe supérieure, le nombre de particules étant au total conservé. Cette procédure fait l'hypothèse d'une masse volumique constante et aboutit à une distribution des tailles en forme d'histogrammes. Plusieurs études ont été consacrées à la comparaison des deux représentations [Seigneur *et al.*, 1986 ; Tsang and Rao, 1988 ; Harrington and Kreidenweis, 1998].

Bien que la représentation sectionnelle nécessite un plus grand nombre de variables, elle s'avère plus robuste que l'approche modale : elle permet aussi une étude plus fine et détaillée des processus microphysiques. C'est pourquoi elle a été adoptée dans le module ORISAM.

3.2.3 Le modèle microphysique

3.2.3.1 Coagulation

La coagulation correspond à l'agglomération de particules entre elles selon différents processus physiques. Ce phénomène conduit au déplacement continu des petites particules vers de plus grosses. Les particules peuvent entrer en collision par effets :

- brownien (déplacement aléatoire, supposé isotrope)
- hydrodynamique (lié à la turbulence, aux gradients de vitesse dans l'air ...)
- électrique
- gravitationnel

- induit par d'autres types de forces

Pour les petites particules de diamètre inférieur à 1 μm , la coagulation brownienne est prédominante. Les autres types de coagulation sont souvent considérés comme négligeables et rarement pris en compte dans les modèles. Aussi, seule la coagulation brownienne est prise en compte dans ORISAM.

3.2.3.2 Absorption et condensation

Le deuxième processus important pris en compte dans ORISAM est la conversion gaz-particule qui affecte en particulier les aérosols de tailles comprises entre 0.01 et 1.0 μm de diamètre. La conversion gaz-particule est le processus par lequel les molécules de vapeur se regroupent en embryons, lesquels embryons deviennent « stables » après qu'un nombre suffisant de molécules soit réuni.

Par souci de clarté, il est important de définir les 3 processus suivants relatifs au transfert gaz-particule :

- absorption : pénétration du composé dans la particule (dissolution)
- adsorption : fixation du composé à la surface de la particule (phénomène physique) en un certain nombre de sites
- condensation : passage de l'état gazeux à l'état liquide

Dans ORISAM, ces trois processus sont pris en compte, à la fois pour les espèces organiques et inorganiques. Le flux F de l'espèce gazeuse associé s'écrit :

$$F = \frac{1}{\tau}(G - G^{eq}) \quad (3.2)$$

avec

F : flux de l'espèce gazeuse vers la particule ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$)

τ : temps caractéristique de fixation (dépend des propriétés des particules et de l'espèce transférée) (s)

G : concentration de l'espèce en phase gazeuse ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)

G^{eq} : concentration à l'équilibre de l'espèce gazeuse, à la surface de la particule ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)

Dans le cas de particules de petites tailles ($< 1 \mu\text{m}$) ou de tailles importantes ($> 2 \mu\text{m}$), les temps caractéristiques pour atteindre l'équilibre sont très rapides, voir quasi-instantanés. Par contre, lorsque les particules sont de tailles intermédiaires (mode d'accumulation), le temps caractéristique d'équilibre est plus important, et il convient de considérer alors la cinétique de transfert, traitée de manière différente suivant les espèces.

3.2.4 Le modèle thermodynamique pour les espèces minérales

Comme montré dans l'équation 3.2, le flux de l'espèce gazeuse qui se fixe sur une particule dépend de la concentration à l'équilibre, G^{eq} , aussi bien pour les espèces organiques que pour les espèces inorganiques.

Dans le cas d'espèces semi-volatiles inorganiques (sulfates, nitrates et ammonium), le calcul de ce paramètre est effectué dans un module thermodynamique. Cet équilibre est fortement dépendant de l'humidité relative et de la température.

Dans la première version d'ORISAM, l'équilibre thermodynamique des espèces inorganiques entre phase particulaire et phase gazeuse était géré par le module SCAPE2 [Kim and Seinfeld, 1995]. Ce dernier a été remplacé par ISORROPIA [Nenes *et al.*, 1998] pour intégrer ORISAM dans le modèle 3D MésoNH-C pour des raisons de temps de calcul. En effet, en terme de modélisation, la concentration à l'équilibre est « délicate » à obtenir, dans le sens où elle est généralement très coûteuse en CPU. Lorsque Nenes *et al.* (1998) ont développé ISORROPIA, une attention particulière a été portée sur la réduction des temps calcul.

3.2.5 Formation des aérosols organiques secondaires

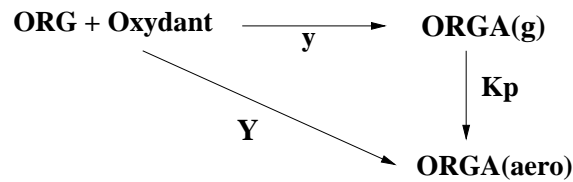
3.2.5.1 Description générale

Les SOA sont formés dans l'atmosphère par transfert de masse des produits d'oxydation des gaz organiques (à faible tension de vapeur saturante), vers la phase aérosol. Quand ces gaz sont oxydés par les espèces oxydantes (OH, O₃, NO₃...), les produits d'oxydation s'accumulent dans l'atmosphère. Seuls les précurseurs de masses molaires élevées

et à forte réactivité vis à vis des espèces oxydantes, pourront former des aérosols organiques secondaires. Si la concentration de ces espèces, à faibles tensions de vapeur saturantes et à nombre important d'atomes de carbone, dépasse la concentration de saturation (concentration pour laquelle la pression de vapeur saturante est atteinte), alors, il y aura condensation sur les particules avec rétablissement de l'équilibre entre la phase gazeuse et la phase particulaire.

3.2.5.2 Modélisation de la formation des SOA

Les processus de formation des espèces condensées sont extrêmement complexes et souvent mal connus. Une première approche consiste à simplifier les calculs en utilisant la méthode empirique des rendements :



avec :

ORG : espèces organiques volatiles

ORGA_(g) : espèces condensables

ORGA_(aero) : espèces condensées

FAC : rendement empirique brut défini par :

$$FAC = \frac{\text{masse de ORGA}_{(aero)} \text{ formée}}{\text{masse de ORG initiale}} \quad (3.3)$$

Le rendement FAC a été déterminé expérimentalement en « smog-chamber » [Grosjean and Seinfeld, 1989], pour un certain nombre de gaz à chaînes carbonées simples (mais supérieures à 7 atomes de carbone). Pour les autres gaz organiques volatils à plus longues chaînes carbonées, plusieurs méthodes permettant le calcul des rendements ont été appliquées. Ces calculs d'interpolation tiennent compte des limitations dans la formation

des aérosols organiques secondaires liées :

- aux effets de réactivité des gaz, lorsque les réactions en phase gazeuse sont trop lentes dans l’atmosphère
- aux effets de volatilité des gaz, à savoir lorsque le produit de réaction de l’oxydation est formé en quantité trop faible pour atteindre sa concentration de saturation.

Bien que la méthode « FAC » simplifie la prise en compte de la formation des particules secondaires, elle soulève un problème de par la notion même de rendement. En effet, les aérosols organiques secondaires sont considérés comme étant « émis » directement dans l’atmosphère comme des composés primaires. Elle néglige les effets de cinétique chimique et le rendement est déterminé dans des conditions initiales (température, humidité relative, concentrations initiales des particules ...) données.

Par ailleurs, la mesure du rendement dépend de la durée de l’expérience : si l’espèce volatile condensable (ORG) n’a pas réagi en totalité à la fin de l’expérience, la formation d’aérosols est toujours en cours et le rendement obtenu n’est pas représentatif du potentiel de formation des aérosols.

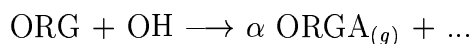
De plus, il est difficile d’utiliser ce rendement brut dans les modèles de qualité de l’air où les espèces volatiles condensables sont émises en continuité (c’est-à-dire, avec des concentrations initiales jamais réellement identifiables) avec des conditions de températures et d’humidité relative qui varient au cours du temps.

Par conséquent, une autre définition du rendement a été proposée par Wang *et al.* (1992) :

$$Y = \frac{\text{masse de ORGA}_{(aero)} \text{ formée}}{\text{masse de ORG ayant réagi}} \quad (3.4)$$

Ces rendements sont également mesurés en chambre, et tiennent compte de la réactivité des espèces et de la présence d’oxydants. Cette méthode permet de considérer les effets de cinétique chimique. D’après Pandis *et al.* (1992), l’essentiel des composés condensables formés se trouve en phase condensée. En effet, il a été montré que lors du schéma de

réaction suivant :



Y, le rendement aérosol, pouvait s'écrire :

$$Y = \alpha - \frac{S_g}{\text{masse d'ORG ayant réagi}} \quad (3.5)$$

avec

α : coefficient stœchiométrique relatif à une molécule d'ORG

S_g : concentration de saturation du gaz condensable $\text{ORGA}_{(g)}$

Les concentrations de saturation des espèces « aérosols secondaires » sont souvent inférieures à 1 ppb. Or, le rendement aérosol est calculé après qu'environ 500 ppb de ORG aient réagi en chambre à combustion. On peut donc raisonnablement admettre que pour chaque espèce :

$$Y \simeq \alpha \quad (3.6)$$

et donc directement utiliser le rendement aérosol Y calculé, au lieu des coefficients stœchiométriques du gaz condensable ($\text{ORGA}_{(g)}$).

Cette méthode permet ainsi de prendre en compte la formation d'aérosols organiques secondaires, ainsi que les effets de cinétique chimique, mais ne tient toujours pas compte des conditions dans lesquelles cette formation se produit (température, humidité relative, concentrations initiales en particules ...).

Néanmoins, elle suggère que toutes les espèces condensables gazeuses sont en quantités négligeables. Or, si les concentrations particulières en masse absorbante sont faibles, ou si les températures sont élevées, les espèces semi-volatiles restent de préférence en phase gazeuse.

Une approche complémentaire a donc été appliquée pour tenir compte de l'équilibre entre phase gazeuse et phase particulaire via un coefficient de partition dépendant de la température.

Yamasaki *et al.* (1982), par son étude sur les HAP (hydrocarbures aromatiques polycycliques), a montré qu'en appliquant les équations d'adsorption de Langmuir, l'état

des HAP (gazeux ou particulaire) pouvait être expliqué. Il a ainsi établi une relation linéaire entre les concentrations de HAP et de TSP (total suspended particulate) et la température, dans le cas d'une faible couverture des gaz à la surface des particules (c'est à dire que la masse de gaz adsorbée est inférieure à celle nécessaire pour recouvrir la surface totale disponible). Cette relation a été étendue à d'autres types de composés organiques [Pankow, 1987] et peut s'exprimer sous la forme :

$$\log \frac{F_i}{A_i \times TSP} = \frac{A}{T} + B \quad (3.7)$$

avec

F_i : concentration du composé à l'état gazeux (ng/m^3)

A_i : concentration du composé à l'état particulaire (ng/m^3)

TSP : concentration en TSP (ng/m^3)

T : température de l'air ambiant (K)

A et B : constantes dépendant du composé organique considéré

où

$$\frac{F_i}{A_i \times TSP} = K_p \quad (3.8)$$

K_p représente le coefficient de partition à l'équilibre entre la phase gazeuse et la phase particulaire.

Dans la littérature, nous trouvons des coefficients de partition associés, qui peuvent s'exprimer ainsi :

$$K_{OM} = \frac{A_i}{F_i \times OM} \quad (3.9)$$

où

OM représente la concentration totale en matière organique dans la phase particulaire ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

A_i et F_i sont respectivement les concentrations du composé à l'état particulaire et gazeux, exprimées en ng/m^3

Les processus mis en jeu dans cet équilibre sont l'adsorption (fixation du composé gazeux à la surface de la particule) et l'absorption (pénétration du « composé gazeux » au sein de la particule, dans la phase organique composée d'autres produits organiques). Ces deux processus permettent un passage de l'état gazeux à l'état particulaire, même si la pression du gaz organique est inférieure à sa pression de vapeur saturante. La prise en compte de ces deux processus amène à proposer une nouvelle définition du coefficient de partition, fonction de la pression de vapeur saturante [Pankow and Bidleman, 1992]:

$$\log K_p = m_r \log p_L^0 + b_r \quad (3.10)$$

où

p_L^0 : pression de vapeur saturante du composé pur « sous-refroidi »

m_r et b_r sont des constantes relatives au composé organique considéré

Contrairement à la « simple » notion de rendement, le recours à un coefficient de partition permet de tenir compte des conditions selon lesquelles la formation des aérosols secondaires a lieu: température, concentrations initiales en particules (TSP) et humidité relative. En effet, l'humidité relative a un impact essentiel sur la quantité d'eau des aérosols, laquelle se retrouve dans la masse particulaire. C'est donc via la quantité TSP que l'humidité relative est prise en compte.

Dans ORISAM, la modélisation des aérosols organiques secondaires se fait via le coefficient de partition décrit dans l'équation 3.8 et qui dépend de la température.

3.2.6 Le modèle de cinétique chimique

3.2.6.1 Description

Les espèces chimiques gazeuses sont gérées dans le module de cinétique chimique RACM (Regional Atmospheric Chemistry Mechanism) [Stockwell *et al.*, 1997].

Dans ce schéma chimique, les espèces organiques sont regroupées selon leur structure et leur niveau de réactivité avec le radical hydroxyle OH, principal oxydant diurne. Ces classes regroupent donc des espèces ayant des valeurs de constantes de réactions avec OH

proches. Néanmoins, certaines classes ne comportent qu'une seule espèce lorsque cette dernière possède une réactivité chimique particulière ou une forte abondance.

3.2.6.2 Modification du schéma RACM pour la formation des SOA

Le schéma RACM a été modifié par Bessagnet (2000) pour intégrer la formation des composés condensables. Pour cela, il a été tout d'abord nécessaire de répertorier l'ensemble des précurseurs organiques gazeux capables de former des espèces condensées. Se basant sur les travaux de Moucheron and Milford (1996) pour les espèces anthropiques et incluant les espèces biogéniques susceptibles de former des aérosols secondaires, les 10 classes RACM du tableau 3.1 ont été retenues.

Les rendements obtenus en chambre par Grosjean and Seinfeld (1989) s'appliquent à des composés, et non à des classes. Moucheron and Milford (1996) les ont donc pondérés en fonction de la contribution de chaque espèce au sein de sa classe, calculée en fonction de l'importance relative des émissions, du type de groupement fonctionnel et de sa réactivité avec le radical OH, afin d'obtenir un rendement global par classe. Les rendements en aérosols secondaires sont présentés dans le tableau 3.2. Pour une espèce précurseur X, sa classe d'espèce secondaire associée est appelée XA.

| Classe des précurseurs RACM | Composés correspondants |
|-----------------------------|--|
| HC5 | Alcanes (k_{OH} entre 3.4×10^{-12} et $6.8 \times 10^{-12} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$) |
| HC8 | Alcanes (k_{OH} entre 6.8×10^{-12} et $1.36 \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$) |
| OLT | Alcène à double liaison terminale |
| OLI | Alcène à double liaison interne |
| TOL | Toluène, Benzènes,... (k_{OH} inférieur à $1.36 \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$) |
| XYL | Aromatiques (k_{OH} supérieur à $1.36 \times 10^{-11} \text{ cm}^3 \text{ s}^{-1}$) |
| CSL | Phénols et crésols |
| ALD | Aldéhydes $\geq C_2$ |
| API | α -pinène et autres cycloterpènes à double liaison |
| LIM | <i>d</i> -limonène et autres cycloterpédiènes |

TAB. 3.1 – Composition des classes de RACM précurseurs d'aérosols secondaires.

| Classe des précurseurs RACM | Rendements associés ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{ppm}$) | Classe des aérosols organiques secondaires |
|-----------------------------|---|--|
| HC5 | 4 | HC5A |
| HC8 | 278 | HC8A |
| OLT | 29 | OLTA |
| OLI | 57 | OLIA |
| TOL | 295 | TOLA |
| XYL | 346 | XYLA |
| CSL | 220 | CLSA |
| ALD | 1 | ALDA |
| API | 750 | APIA |
| LIM | 750 | LIMA |

TAB. 3.2 – Rendement des précurseurs RACM.

Pour tenir compte des espèces condensables dans RACM, Bessagnet (2000) a complété les réactions d'oxydation en considérant les espèces aérosols condensables (XA) comme de nouveaux produits. En considérant OH comme le principal oxydant diurne avec lequel réagissent les COV, il suffit d'ajouter chaque espèce condensée aux réactions déjà prises en compte dans RACM, via le rendement adimensionné Y qui fournit directement le coefficient stœchiométrique de la réaction correspondante (cf paragraphe 3.2.5.2).

L'équation suivante illustre cette démarche pour l'espèce précurseur HC5 :



où $\mathbf{Y_{HC5} \text{HC5A}}$ est le terme ajouté pour l'espèce condensable.

3.3 Le modèle MésoNH-C

3.3.1 Présentation de MésoNH-C

Le modèle MésoNH est un modèle numérique à aire limitée non-hydrostatique développé conjointement par le CNRM (Centre National de Recherches Météorologiques) et le Laboratoire d'Aérodynamique. Une description détaillée de ce modèle dans sa version dynamique et chimie gazeuse est donnée par Lafore *et al.* (1998) ; Mari *et al.* (1999) ; Suhre *et al.* (2000) ; Donnadille (2000) ; Tulet *et al.* (2003). MésoNH permet de simuler des écoulements at-

mosphériques allant de l'échelle synoptique jusqu'à la micro-échelle (résolution horizontale s'étendant de plusieurs dizaines de kilomètres à une centaine de mètres).

Les équations classiques de Navier-Stokes sont simplifiées dans le modèle suivant l'approximation anélastique pseudo-incompressible de Durran (1989), ce qui permet de filtrer les ondes acoustiques, lesquelles créent des problèmes d'instabilité numérique en se propageant trop rapidement, et d'utiliser une discrétisation temporelle entièrement explicite.

Les variables pronostiques du modèle sont les trois composantes du vent (u, v, w), la température potentielle (θ), les rapports de mélange pour la vapeur d'eau r_v , l'eau nuageuse r_c , l'eau précipitante r_r , la glace r_i , et tout scalaire passif r_{sp} (masse de substance par masse d'air sec). La pression est représentée par la fonction d'Exner :

$$\Pi = \left(\frac{P}{P_{00}} \right)^{\frac{R_d}{C_{pd}}}$$

où P est la pression absolue, P_{00} , la valeur de référence de la pression absolue 1000 hPa, R_d , la constante des gaz pour l'air sec et C_{pd} , la chaleur spécifique de l'air sec sous pression constante. Elle est déduite des variables pronostiques u , v , w , et θ par inversion d'un opérateur elliptique.

Le système de coordonnées horizontales est basé sur une projection conforme. La coordonnée verticale \hat{z} , définie par Gal-Chen and Sommerville (1975), a la particularité de suivre le relief :

$$\hat{z} = H \frac{(z - z_s)}{(H - z_s)}$$

avec H , la hauteur du modèle, z , l'altitude, et z_s , la hauteur du relief local.

Le modèle MésoNH permet une représentation détaillée des processus physiques par un ensemble complet de paramétrisations. Celles utilisées dans le cadre de cette thèse sont succinctement présentées ci-après :

- Le schéma microphysique utilisé est le schéma ICE3 [Pinty and Jabouille, 1998] qui prend en compte les réservoirs en vapeur, eau de pluie, eau nuageuse, glace, neige et grésil.
- Le schéma de turbulence [Cuxart *et al.*, 2000] d'ordre 1,5, introduit une équation pronostique pour l'énergie cinétique turbulente avec une fermeture par une longueur

de mélange [Bougeault and Lacarrère, 1989]. Dans notre cas d'étude, une valeur plancher du mélange turbulent a été imposée pour pallier les conditions très stables rencontrées près du sol dans certaines régions d'Asie, en particulier la nuit, et qui conduisaient dans le modèle à un découplage total avec les niveaux au dessus. Ces conditions s'appliquent sur les premières couches jusqu'à une altitude maximale de 200 mètres environ. Une valeur minimale de $0,1 \text{ m}^2/\text{s}^2$ est fixée pour l'énergie cinétique turbulente et de 100 mètres pour la longueur de mélange.

- Le schéma d'advection choisi est MPDATA (Multidimensional Positive Definite Advection Transport Algorithm) développé par Smolarkiewicz and Grabowski (1990).
- Le schéma de convection est celui développé par Bechtold *et al.* (2001), dérivé de celui de Kain and Fritsch (1993).
- Le schéma de rayonnement est celui du Centre Européen de Prévision Météorologique à Moyen Terme (ECMWP) [Morcrette, 1989]. Il détermine les flux radiatifs dans les domaines infra-rouge et visible en atmosphère claire et nuageuse.
- Le schéma de surface utilisé par le modèle est de Mascart *et al.* (1995) basé sur le formalisme de Louis (1979). Au niveau de la surface, les échanges turbulents sont déterminés en considérant l'écoulement stationnaire, homogène horizontalement et en négligeant les forces de pression et de Coriolis. Sur le continent, l'Interface Sol-Biosphère-Atmosphère (ISBA) [Noilhan and Planton, 1989] permet d'obtenir les conditions de surface. Sur les océans, la température de surface de la mer (SST) est fournie par les analyses ARPEGE, et la longueur de rugosité, à partir du formalisme de Charnock (1955).

L'une des principales caractéristiques du module de chimie MésoNH-C (Mesoscale NonHydrostatic Chemistry) est son couplage on-line avec le modèle météorologique ce qui permet le calcul des champs chimiques à chaque pas de temps et en chaque point de grille, résultant simultanément du transport par advection, par diffusion turbulente et par la convection sous-maille. Cela signifie que toutes les formulations de transport implicites et explicites sont les mêmes, à la fois pour les espèces chimiques et les variables thermodynamiques (advection, flux convectif, diffusion turbulente).

Le schéma réactionnel utilisé en 3D est le schéma ReLACS [Crassier *et al.*, 2000; Crassier, 1999] qui consiste en une réduction du schéma chimique RACM [Stockwell *et al.*, 1997]. ReLACS comprend 37 espèces chimiques et 128 réactions, comparé aux 77 espèces et 237 réactions de RACM, ce qui permet de réduire considérablement le coût en temps calcul. Le détail des espèces ReLACS est présenté dans le tableau ?? de la publication 2.4 du chapitre 2.

Le solveur chimique utilisé est le solveur EXQSSA (Extrapolation Quasi-Steady-State Approximation) [Hesstvedt *et al.*, 1978].

Le modèle TUV (Tropospheric Ultraviolet-Visible Model) calcule les taux de photolyse en fonction de l'angle solaire [Madronich, 1987], avec correction en présence de nuages d'après la paramétrisation de Chang *et al.* (1987).

3.3.2 Couplage MésoNH-C/ORISAM

De même que le modèle MésoNH est couplé avec le module de chimie ReLACS, il a été aussi couplé on-line avec le module d'aérosol ORISAM, présenté précédemment au paragraphe 3.2. L'implantation du module ORISAM dans MésoNH-C a été effectuée par Cousin [Cousin, 2004; Cousin *et al.*, 2005].

Pour ce faire, plusieurs modifications et nouveaux développements ont été apportés à la fois à ORISAM et à MésoNH-C. Une présentation succincte sera faite ici, une description plus détaillée étant disponible dans les travaux de thèse de Cousin [Cousin, 2004].

3.3.2.1 Modification du schéma ReLACS

Le schéma chimique réduit ReLACS [Crassier *et al.*, 2000] est celui utilisé dans la version 3D de MésoNH-C. Or, dans ORISAM, le schéma de référence est RACM [Stockwell *et al.*, 1997]. Dans un premier temps, le schéma ReLACS a dû être adapté pour traiter la formation des espèces secondaires en suivant la même procédure qu'avec RACM (cf paragraphe 3.2.6.2).

Cousin (2004) a repris la procédure de réduction développée par Crassier *et al.* (2000), en tenant compte des modifications apportées à RACM [Bessagnet, 2000] pour considérer

la formation des SOA. Tout d'abord, une simulation 0D utilisant RACM a été effectuée dans des conditions (températures, humidité, émissions...) caractéristiques d'ESCOMPTE [Cachier *et al.*, 2005]. Puis, la procédure de réduction a été appliquée aux classes de chimie gazeuse, et deux nouvelles classes de condensables ont été introduites : SOAA et SOAB (Secondary Organic Aerosol Anthropic (SOAA) and Biogenic (SOAB)). La procédure de réduction permet ainsi d'obtenir de nouveaux coefficients d'aggrégation, ainsi que les constantes cinétiques (K_{OH}) et les coefficients stœchiométriques des nouvelles réactions. Les rendements en aérosols secondaires associés aux classes ReLACS sont présentés dans le tableau 3.3.

| Classe des précurseurs RACM | Classe des précurseurs ReLACS | Rendements associés ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{ppm}$) | Classe des aérosols organiques secondaires |
|-----------------------------|-------------------------------|---|--|
| HC3 HC5 HC8 | ALKA | 81.26 | SOAA |
| ETE OLT OLI DIEN | ALKE | 3.17 | SOAA |
| TOL XYL CSL | ARO | 327.8 | SOAA |
| ALD | ALD | 1.617 | SOAA |
| API LIM | MONO | 750 | SOAB |

TAB. 3.3 – Rendement des précurseurs ReLACS.

Au regard de ces résultats, les classes ayant un rendement important en espèces condensables sont la classe ARO pour les SOAA et la classe MONO pour les SOAB. Ces classes contiennent elles-mêmes les espèces RACM qui possédaient de forts rendements : TOL, XYL, CSL, API, et LIM (cf tableau 3.2).

3.3.2.2 Nucléation

La nucléation est le processus par lequel de nouvelles particules se forment à partir d'espèces en phase gazeuse. Ce processus n'était originellement pas pris en compte dans

le module ORISAM.

Pour que la nucléation ait lieu à un taux de production significatif, la pression partielle des espèces nucléées doit être suffisamment élevée pour excéder la pression de vapeur saturante. En dessous de cette valeur seuil, dite rapport de saturation critique, la nucléation n'est pas un processus significatif. Il a été démontré que la nucléation pouvait aussi bien se produire en atmosphère polluée [Hildemann *et al.*, 1989] qu'en atmosphère propre [Shaw, 1989].

Wexler *et al.* (1984) a mis en évidence l'importance de la nucléation de l'acide sulfurique sous certaines conditions : faible dépôt en surface, concentration élevée en $\text{SO}_{2(g)}$, température faible et forte humidité relative. Le système $\text{H}_2\text{SO}_4 - \text{H}_2\text{O}$ va ainsi rapidement grossir pour atteindre une taille où il peut affecter la composition et la distribution en taille de l'aérosol. Compte tenu des conditions requises pour la formation d'aérosols par nucléation, ce processus n'interviendra que très ponctuellement dans la journée, avec pour conséquence une augmentation importante du nombre de particules.

De nombreuses études ont porté sur la nucléation de l'acide sulfurique et l'eau, mais des études plus récentes ont révélé que des espèces comme l'ammonium pouvaient également participer à la nucléation. Toutefois, seule la nucléation du système $\text{H}_2\text{SO}_4 - \text{H}_2\text{O}$ actuellement bien connue est introduite ici.

La nucléation du système $\text{H}_2\text{SO}_4 - \text{H}_2\text{O}$ a donc été introduite dans MésoNH-C par Cousin (2004), suivant le formalisme de Kulmala *et al.* (1998).

3.3.2.3 Dépôt sec

Le dépôt sec est un puit important pour le bilan des espèces chimiques. Il permet en effet leur élimination par captation par la surface et le sol (végétation, constructions...) Ce processus a été paramétrisé dans MésoNH-C par Tulet (2000) pour les espèces gazeuses dans MésoNH-C. Il est exprimé via une vitesse de dépôt qui permet de schématiser différents processus complexes mis en jeu.

Le flux F de dépôt sec s'exprime de la façon suivante :

$$F = -v_d.C \quad (3.11)$$

avec :

F : flux de dépôt

C : concentration en particules

v_d : vitesse de dépôt

La vitesse de dépôt est définie par analogie avec un système de résistances électriques [Wesely and Hicks, 1977]. Elle s'exprime en fonction de 3 résistances :

$$v_d = \frac{1}{r_a + r_b + r_c} \quad (3.12)$$

avec :

r_a : résistance aérodynamique

r_b : résistance dans la couche quasi-laminaire

r_c : résistance de la canopée

Pour les aérosols, le dépôt sec est défini par le formalisme suivant [Seinfeld and Pandis, 1998] :

$$v_d = \frac{1}{r_a + r_b + r_a \cdot r_b \cdot v_s} + v_s \quad (3.13)$$

avec :

r_a et r_b : identiques aux résistances pour les gaz.

v_s : vitesse gravitationnelle de sédimentation

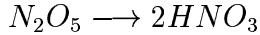
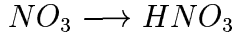
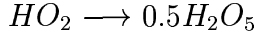
La vitesse de sédimentation représente la vitesse de chute des particules liée à leur gravité.

3.3.2.4 Chimie hétérogène

L'ozone est formé dans la troposphère par oxydation en phase gazeuse des hydrocarbures et du CO, catalysé par les radicaux hydroxyle (HO_x) et les oxydes d'azote (NO_x). La chimie hétérogène implique des réactions au sein des particules et des gouttelettes de nuages qui peuvent affecter les concentrations en O_3 .

Le modèle MésoNH-C considérant globalement la chimie de l'ozone, la chimie hétérogène a été codée pour tenir compte de l'impact des particules sur la production et la perte d'ozone.

Les quatre réactions suivantes, identifiées comme ayant le plus d'influence [Jacob, 2000] ont été ajoutées à MésoNH-C :



L'approche utilisée consiste à décrire l'absorption des espèces gazeuses par les aérosols avec la probabilité γ (dépendant de la composition de l'aérosol et de sa distribution en taille) qu'une molécule, entrant en collision avec un aérosol, se fixe à lui.

3.4 Choix des conditions d'initialisation de MésoNH-C-ORISAM

3.4.1 Configuration du modèle pour notre étude

Les simulations MésoNH ont été réalisées sur une grille de 90 points en latitude sur 150 points en longitude, avec une résolution spatiale de 75 km. Le domaine d'étude s'étend ainsi entre 0.8°N - 59.3°N et 58.66°E - 181.34°E. La résolution verticale utilisée s'étend sur 74 niveaux (jusqu'à 20 km d'altitude), avec une résolution étirée, 50 m au niveau de la couche limite, environ 200 m en troposphère libre, et 400 m au sommet du modèle dans la stratosphère.

3.4.2 Choix d'initialisation météorologique et de la chimie gazeuse

- **Forçage dynamique et chimique et concentrations de fond**

Les analyses d'ARPEGE fournissent le forçage à grande échelle des paramètres dynamiques, lesquels sont interpolées sur la grille MésoNH. Les espèces chimiques sont initialisées et fixées aux limites du modèle par les simulations du modèle de transport global

MOCAGE [Peuch *et al.*, 1999 ; Josse *et al.*, 2004].

• **Emissions gazeuses**

Comme soulignée aux chapitres précédents, une grande incertitude affecte la connaissance des émissions, tant au niveau des quantités émises que de leur répartition géographique. Aussi, une attention particulière a été portée sur cette phase d'initialisation, en lien avec les travaux décrits au chapitre 2. L'inventaire d'émissions des feux de biomasse utilisé est celui que j'ai spécifiquement développé au cours de ma thèse : ABBI (Asian Biomass Burning Inventory).

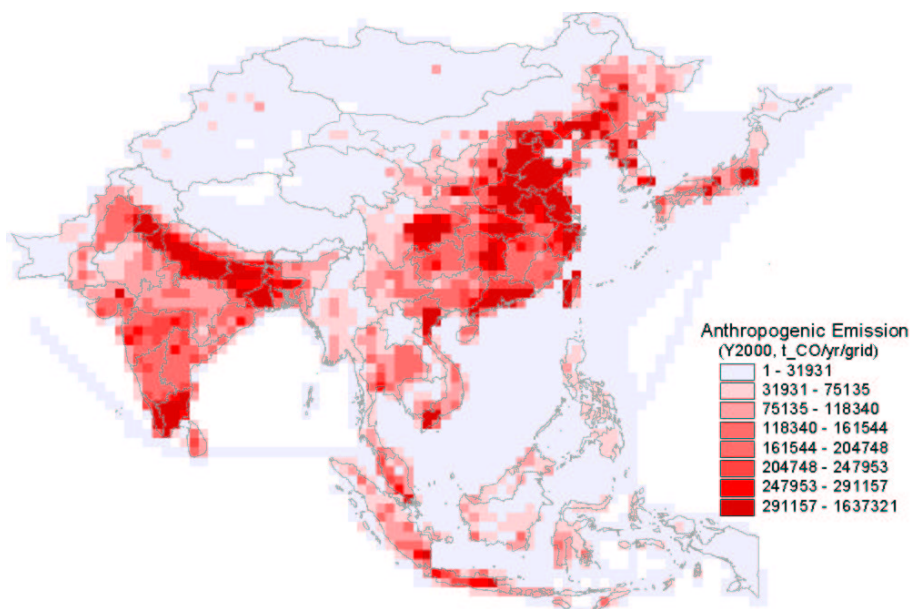


FIG. 3.2 – *Domaine de l'inventaire d'émissions de Streets et al., [2003], pour les émissions de fuels fossiles*

Concernant les émissions de fuels fossiles et biofuels, j'ai effectué une compilation portant sur plusieurs inventaires disponibles. En effet, Streets *et al.* (2003) a spécialement développé un inventaire pour les campagnes TRACE-P et ACE-Asia, basé sur les émissions de l'année 2000. Néanmoins, le domaine considéré pour cet inventaire (cf figure 3.2) est plus restreint que le domaine de notre étude (voir figure ?? du chapitre 2). L'inventaire GEIA (Global Emissions Inventory Activity) [<http://geiacenter.org/>] pour l'année 1990 a donc été utilisé en complément sur la partie ouest du domaine (Kazakhstan, Pakistan,

Afghanistan, Tadjikistan, Kirghiskistan ...) et la partie nord (Russie). Les deux inventaires ont donc été combinés de telle sorte que les valeurs de GEIA soient prises en compte lorsque celles de l'inventaire de Streets étaient inexistantes ou nulles. L'inventaire de Streets ne comportant pas de valeur pour les espèces biogéniques, GEIA a donc été utilisé sur toute la zone d'étude.

Une attention particulière a été portée à l'agrégation des espèces chimiques en espèces modèles, à la fois de type RACM et de type ReLACS. Cela a demandé un travail conséquent, en raison de la diversité et de l'inhomogénéité des espèces dans les différents inventaires (GEIA, Streets, ABBI ...). Les espèces ReLACS utiles aux simulations MésoNH-C issues de ce traitement pour les émissions de fuels fossiles et de biofuels sont ALD, ALKA, ALKE, ARO, BIO, CH₄, CO, ETH, HCHO, KET, NH₃, NO, NO₂ et SO₂.

Les données résultantes sont les émissions (en ppp.m.s⁻¹) pour les fuels fossiles et les biofuels réparties sur une grille de 1°x 1°, mois par mois.

• **Suivi de l'origine des combustions**

Le CO peut être considéré comme un traceur des combustions de différentes origines. Afin de tester leurs importances relatives, (c'est à dire identifier l'impact des émissions suivant leur origine), une distinction entre les origines biofuel, fuel fossile et feux de biomasse a été effectuée. Trois espèces « monoxyde de carbone », COFF (fuels fossiles), COBB (feux de biomasse), et COBF (biofuels) ont été intégrées dans le modèle en tant qu'espèces passives : contrairement à l'espèce CO_{tot}, celles-ci ne réagissent pas en cours de simulation avec d'autres espèces, subissant uniquement les effets de la dynamique. Elles sont donc seulement émises, transportées et déposées. Les trois cartes de la figure 3.3 illustrent les émissions de ces trois espèces : COFF et COBF correspondent à une journée typique du mois d'avril et COBB à la journée du 27 avril 2001.

3.4.3 **Condition d'initialisation des particules**

• **Emissions particulières**

Une partie importante du travail a été dédiée au développement et à l'amélioration des

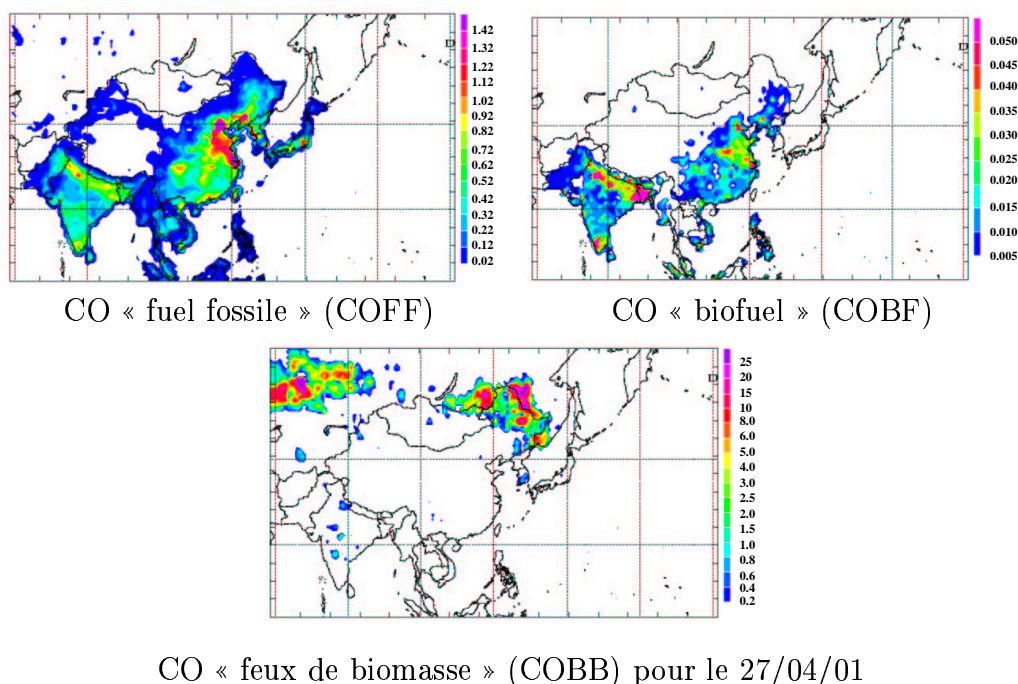


FIG. 3.3 – Emissions de CO par les fuels fossiles, les feux de biomasse et les biofuels en $10^{+9} \text{ppp.m.s}^{-1}$

inventaires d'émissions de particules carbonées (BC et OC_p) au cours de ma thèse.

Comme vu au chapitre 2, j'ai développé un inventaire d'émissions pour les *feux de biomasse* (ABBI) pour l'année 2001.

Par ailleurs, j'ai participé à la mise à jour de l'inventaire d'émissions de *fuels fossiles* de Cooke *et al.* (1999) pour l'année 1997. Au cours de cette réactualisation, plusieurs améliorations ont été apportées pour pallier un certain nombre de faiblesses des algorithmes développés par Cooke *et al.* (1999) [Michel, 2001] (cf Annexe B).

En ce qui concerne les feux de déchets agricoles et les feux domestiques (*biofuels*), j'ai utilisé l'inventaire de Liousse *et al.* (1996), typique des années 1980-1990. Dans le cadastre de Liousse *et al.* (1996), les émissions de BC et OC étaient disponibles pour les combustions de bois et charbon, les déchets agricoles et les cultures. Les données pour ces cultures n'ont pas été prises en compte, car déjà comptabilisée dans l'inventaire ABBI.

Comme cela a déjà été exposé, de grandes incertitudes affectent les cadastres d'émissions. En effet, les estimations sont différentes suivant les équipes de travail, et une intercom-

paraison internationale est actuellement en cours [Workshop émissions (Toulouse - juin 2002)]. Néanmoins, aucune décision n'a actuellement été prise au niveau international, en particulier pour les facteurs d'émissions des espèces particulaires carbonées.

Les émissions des cadastres fuels fossiles et feux de biomasse portent sur une grille de $1^\circ \times 1^\circ$, alors que celles pour les déchets agricoles et les feux domestiques sont distribuées sur une grille de $2.5^\circ \times 5^\circ$. J'ai donc re-spatialisé ces inventaires. Les émissions de particules sont exprimées en $\text{kg}(\text{aérosol}).\text{kg}(\text{air})^{-1}.\text{m}.\text{s}^{-1}$.

- **Initialisation des concentrations de fond**

- ***Spatialisation :***

L'initialisation des particules dans MésoNH-C est une phase délicate en raison du manque de données, notamment au niveau de la distribution géographique des concentrations.

Une valeur moyenne des concentrations de fond de BC et de OC a été calculée à partir des mesures sol (valeur moyenne pour toutes les stations de la campagne ACE-Asia pour la journée du 25/04/01). Les deux valeurs résultantes sont :

- $\text{BC} = 1,28 \mu\text{g}.\text{m}^{-3}$

- $\text{OC} = 2,30 \mu\text{g}.\text{m}^{-3}$

Les particules carbonées, tout particulièrement le BC, peuvent être considérées comme traceurs de combustion, tout comme CO, avec des origines pouvant être supposées communes. Les concentrations de CO ont donc été utilisées pour répartir géographiquement les concentrations initiales des particules carbonées [Cousin, 2004]. Les concentrations de CO en surface sont récupérées à partir des données MOCAGE, et les rapports BC/CO et OC_p/CO constants, sont appliqués en chaque point de grille. Les concentrations de BC et OC_p possèdent donc la spatialisation 3D des concentrations de CO, obtenues directement en sortie de MOCAGE, à une résolution de $1^\circ \times 1^\circ$.

- ***Conditions aux limites :***

Les flux de BC et OC aux limites du domaine sont également obtenus à partir des

flux de CO donnés par MOCAGE et des rapports BC/CO et OC/CO.

Pour les autres espèces aérosols, les concentrations initiales et les flux aux limites du domaine sont fixés à zéro. Ceci n'est évidemment pas très représentatif de la réalité, mais donner des valeurs indicatives moyennes paraissait être insuffisamment justifié, et la valeur zéro a été considérée comme étant la plus convenable.

• **Tailles des particules**

Une fois les émissions et les concentrations de fond des particules fixées, il convient de les répartir dans les différentes sections.

La variation en taille dans le modèle varie de 0.039 μm à 10 μm , avec une répartition sur 4 bins, pour toutes les espèces aérosols du modèle :

- bin 1 : de (0,039 à 0,156) μm
- bin 2 : de (0,156 à 0,625) μm
- bin 3 : de (0,625 à 2,500) μm
- bin 4 : de (2,500 à 10,00) μm

Pour les concentrations de fond (calculées selon le rapport BC/CO et OC/CO), une répartition identique dans chaque bin a été appliquée, d'après le rapport BC/CO/4 (4=nombre de bins). Pour les émissions, la répartition en taille est basée sur une loi modale, contenant 2 modes. Les distributions lognormales de chaque mode donnent un coefficient d'émission pour chaque bin. La taille des particules a été choisie d'après les premières études menées à Pékin par l'équipe de Cachier [Cachier, com. pers., 2004]. Les caractéristiques de chaque mode et les pourcentages de BC et OC_p émis dans chaque mode figurent dans le tableau 3.4.

| Modes | diamètre (μm) | écart type | % BC | % OC |
|-------|----------------------------|------------|------|------|
| 1 | 0,327 | 1,63 | 50 | 50 |
| 2 | 1,700 | 2,86 | 50 | 50 |

TAB. 3.4 – Initialisation des 2 modes.

3.5 Conclusion

Ce chapitre présente le couplage du modèle ORISAM avec MésoNH-C et son initialisation. Une attention toute particulière a été portée aux émissions, en particulier les émissions d'aérosols carbonés, mais une incertitude importante tient à l'initialisation des concentrations de fond et des conditions aux limites, qui mériteraient encore un travail d'approfondissement.

La configuration de MésoNH-C présentée ci-dessus a été choisie afin de permettre l'étude de processus chimiques et dynamiques (transport de polluants, impact des feux, formation de l'aérosol secondaire ..), en conciliant à la fois un grand domaine d'étude et une période suffisamment longue pour suivre le transport des espèces chimiques. Ainsi, la résolution horizontale $75\text{km} \times 75\text{km}$ a permis un compromis entre une bonne résolution spatiale permettant de prendre en compte au mieux la contribution des sources anthropiques d'origine fuels fossiles et feux de biomasse dans le panache asiatique et des temps de calcul raisonnables.

Deux simulations ont été réalisées à l'aide de MésoNH-C couplé à ORISAM en région asiatique pendant la campagne ACE-Asia, laquelle s'est déroulée en mars-avril 2001. Les résultats de ces deux études sont présentés au chapitre suivant, de même que leur comparaison avec les mesures effectuées lors de cette campagne.

Chapitre 4

ACE-Asia : Etude de l'aérosol carboné avec MésoNH-C

Sommaire

| | | |
|------------|--|------------|
| 4.1 | Introduction | 99 |
| 4.2 | Analyse météorologique des journées d'études | 99 |
| 4.2.1 | Choix de la période d'étude | 99 |
| 4.2.2 | Situation synoptique générale | 100 |
| 4.2.3 | Transport des polluants émis par les feux de biomasse sur Pékin | 104 |
| 4.2.4 | Conclusion | 119 |
| 4.3 | Etude de l'aérosol carboné durant les vols du 27 avril 2001 | 121 |
| 4.3.1 | Description des plans de vols | 121 |
| 4.3.2 | Comparaison dynamique des vols | 122 |
| 4.3.3 | Comparaison des concentrations gazeuses obtenues par mesures et simulations | 126 |
| 4.3.4 | Comparaison des concentrations en aérosols obtenues par mesures et modélisation | 130 |
| 4.4 | Comparaison des concentrations de BC et OC obtenues par mesures et simulations avec le Twin-Otter pour les vols des 26, 27 et 28 avril 2001 | 136 |

| | | |
|------------|--|------------|
| 4.5 | Comparaison des concentrations d'aérosols aux stations de mesures | 142 |
| 4.6 | Conclusion | 150 |

4.1 Introduction

4.2 Analyse météorologique des journées d'études

4.2.1 Choix de la période d'étude

L'objectif principal de ce travail est de montrer la contribution des émissions de feux de biomasse à la pollution asiatique et d'étudier la formation des aérosols secondaires.

Plusieurs limitations liées au module d'aérosol ont influencé le choix des journées d'étude. Tout d'abord, le module aérosol ne possède pas de mode grossier qui permettrait de traiter les grosses particules. Les journées à fortes concentrations en poussières désertiques sont donc à éliminer (8, 9, 17 et 19 avril 2001). De plus, le dépôt humide n'étant pas encore intégré dans le modèle, les journées à fortes précipitations sont également à exclure. En outre, compte tenu de l'étendue de la zone d'étude, une attention particulière a été portée pour qu'il n'y ait pas de pluies sur les zones d'échantillonnage, étant donné qu'il n'est pas possible d'éliminer toutes les journées de précipitation.

D'après Mader *et al.* (2002), l'avion Twin Otter du CIRPAS a échantillonné des masses d'air les 26, 27 et 28 avril qui sembleraient contenir une pollution provenant de feux de biomasse. En effet, d'après la littérature, le rapport TC/BC permet d'identifier la source d'aérosol carboné ambiant. Par exemple, Novakov *et al.* [2000a, 2000b], a reporté des valeurs de TC/BC de 9 et de 2 pour les aérosols formés respectivement à partir des feux de biomasse et des fuels fossiles. Les forts rapports TC/BC mesurés au cours des vols RF16, RF17 et RF18 (correspondant respectivement aux journées des 26, 27 et 28 avril 2001) laisseraient supposer l'influence des feux de biomasse et/ou une forte contribution des SOA.

En particulier, un rapport TC/BC de 18 et des valeurs de OC de $28,9 \mu\text{gC.m}^{-3}$ et de BC de $1,62 \mu\text{gC.m}^{-3}$ (concentrations les plus fortes observées à bord du Twin Otter durant la campagne de mesure) ont été mesurés le 27 avril dans la couche de pollution au large du Japon. Des niveaux similaires de concentrations en aérosol carboné organique (OC) ont été également observés aux alentours par l'avion C-130 du NCAR, ce jour là.

Par ailleurs, d'après les rétro-trajectoires [ACE-Asia Field Catalog 2001, disponibles

sur www.joss.ucar.edu/ace-asia/planning.htm], les masses d'air échantillonnées les 26, 27 et 28 avril sont originaires de la même région, la Chine continentale où l'on note la présence de feux, et ont mis environ deux jours à atteindre le site où elles ont été mesurées.

Au regard de ces observations, les journées d'étude choisies sont les 25, 26, 27 et 28 avril 2001. La journée du 25 avril sert de spin-up pour initialiser le modèle et permet aussi de prendre en compte le temps nécessaire aux masses d'air pour être transportées depuis leur site d'émission jusqu'au site d'échantillonnage.

4.2.2 Situation synoptique générale

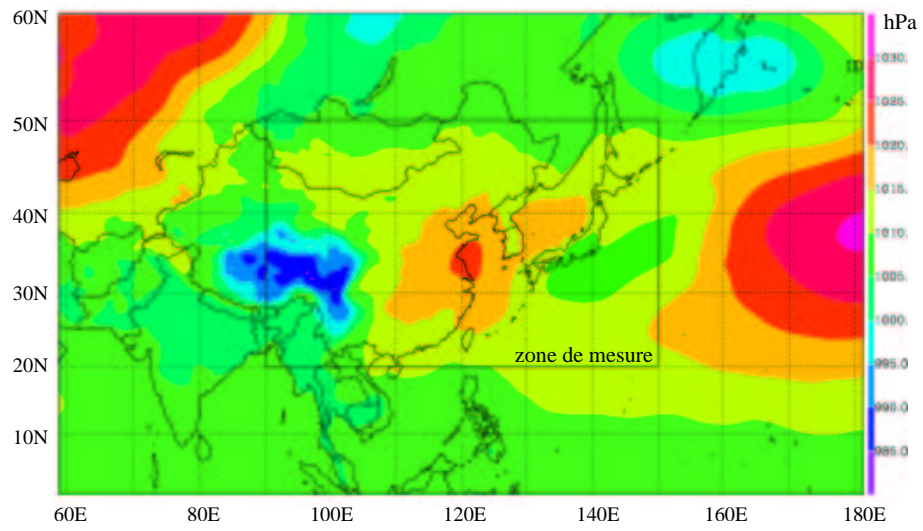
Les trois journées d'étude (26, 27 et 28 avril 2001) sont globalement sous un régime anticyclonique autour de la zone de mesures sols et avions (fenêtre 90E-150E - 20N-50N). Une description détaillée est présentée dans la figure 4.1.

L'anticyclone, dont le cœur se situe au sud-est de Pékin le 26 avril, se déplace vers le Japon le 27 avril où il se renforce. Par ailleurs, en fin de journée, il y a gonflement d'une dorsale au nord du Japon sur l'île de Sakhaline, qui va progressivement fusionner avec l'anticyclone du Japon.

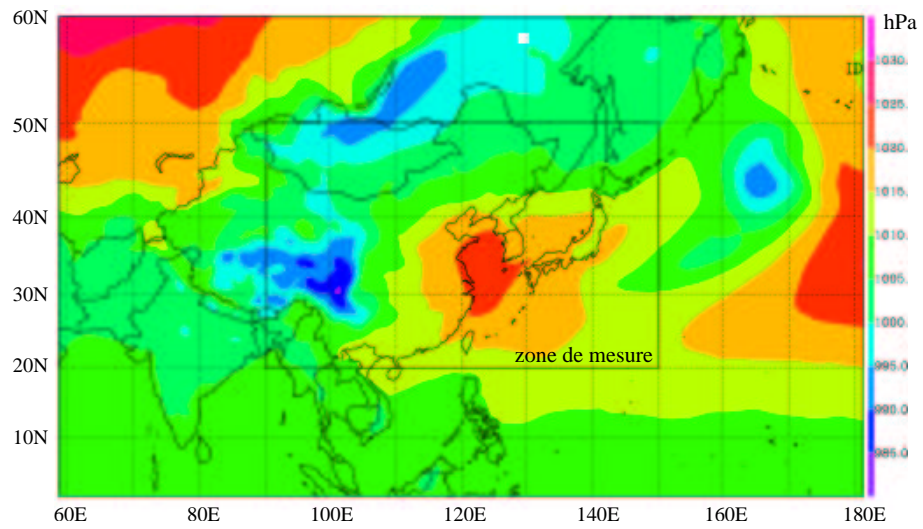
Du 25 au 27 avril, au nord-ouest du domaine, un anticyclone est présent au dessus du Kazakhstan. Il se déplace très peu, mais se gonfle. A compter du 28 avril, il pénètre plus au centre du domaine d'étude.

A l'ouest de ce système anticyclonique, sur le continent, deux dépressions (l'une sur le centre de la Chine et l'autre en Mongolie) vont se creuser le 27 avril, pour se combler le 28 avril. La dépression de Mongolie se déplace sur le nord-est de la Russie le 28 avril et là, laisse place peu à peu à un anticyclone à 18 UTC (figure non présentée ici). Comme le montre la figure 4.2, un système frontal est combiné à la dépression présente sur le centre de la Chine, au sud-ouest de Pékin. Le front froid (matérialisé sur la figure 4.2 par une ligne de convergence) est associé à une zone de pluie qui apparaît le 26 avril à 18UTC et se déplace vers le nord-est pour atteindre la mer de Chine le 27 à 24UTC. La dépression située au nord-est de la Russie le 28 avril est elle aussi associée à des précipitations comme le montrent les précipitations cumulées sur 6h de la figure 4.3.

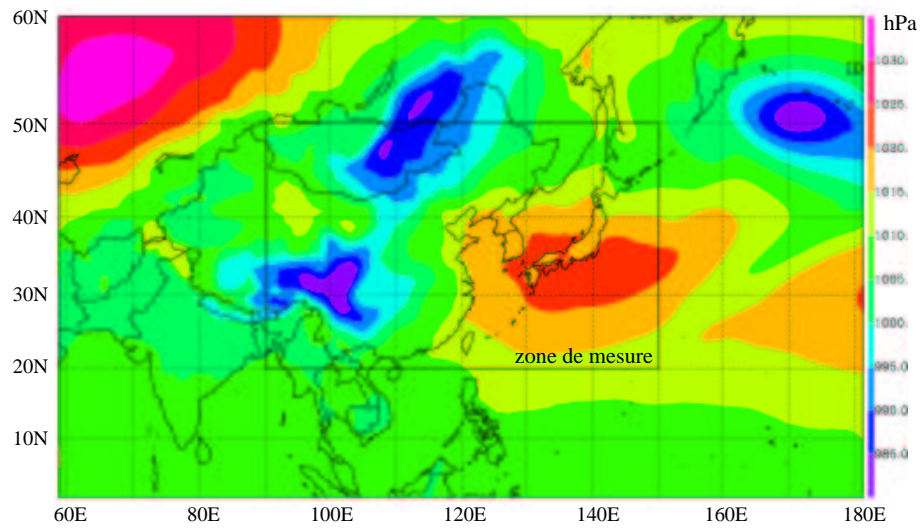
4.2. Analyse météorologique des journées d'études



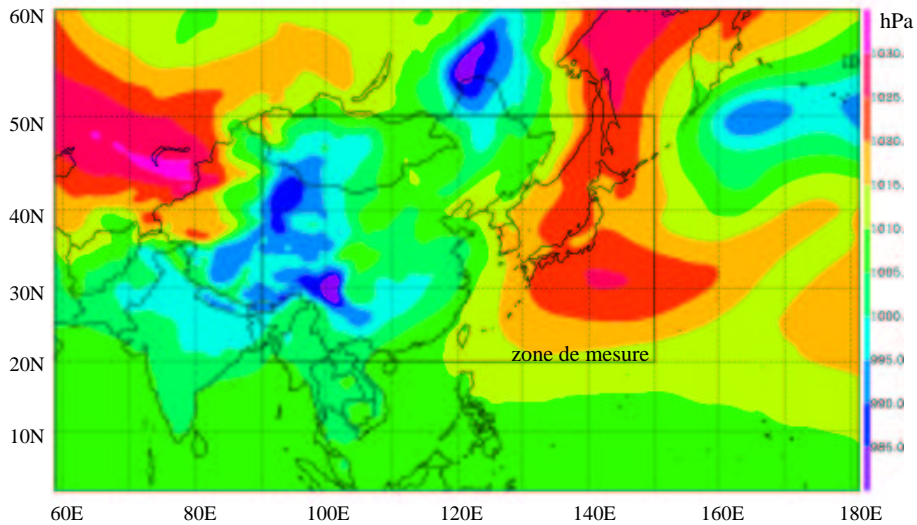
(a) 25 avril 2001



(b) 26 avril 2001



(c) 27 avril 2001



(d) 28 avril 2001

FIG. 4.1 – Pression au niveau de la mer (en hPa) à 6UTC les 25, 26, 27 et 28 avril 2001.

Un autre système dépressionnaire est présent sur le Pacifique au nord-est du Japon. Ce système s'est déplacé d'environ 800 km au nord-est entre le 26 et le 27 avril en se creusant, pour atteindre une valeur d'environ 980 hPa.

On peut noter que la forte dépression du Pacifique s'accompagne d'un front froid très marqué (cf figure 4.2) au sud-est du Japon, et d'une bande de précipitations associées (cf figure 4.3). Toutefois, il n'a pas d'influence dans la zone de mesures, située plus à l'ouest, à l'arrière du front. Il est cependant représentatif des grands systèmes dépressionnaires souvent invoqués pour le transport trans-océanique de pollution depuis les basses couches de l'Asie.

Enfin, la figure 4.4 montre la position du jet subtropical, situé à l'est du Japon le 27 avril, avec de fortes valeurs de vitesse de vents (jusqu'à 75 m.s^{-1}). Ce jet est situé au dessus du Japon le 26 avril (ce qui est typique de la saison dans cette région) et se déplace vers l'est les 27 et 28 avril tout en s'intensifiant : le cœur du jet atteint des vitesses de 90 m.s^{-1} le 28 avril.

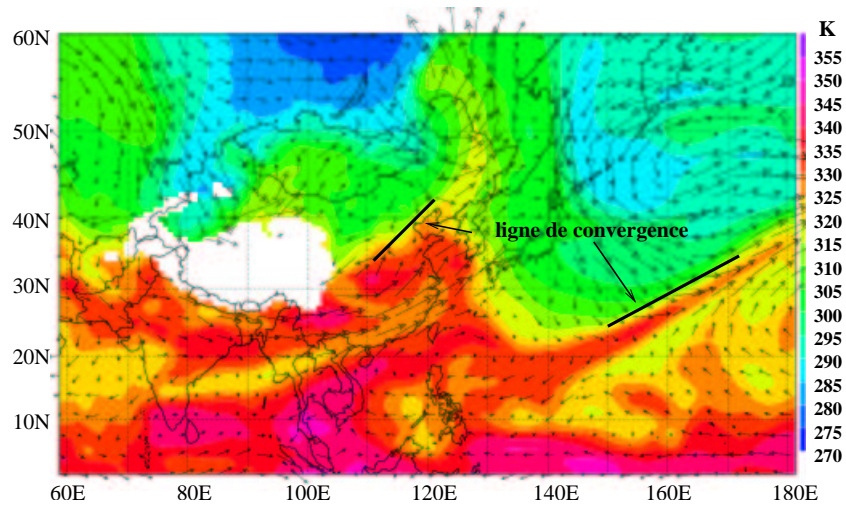


FIG. 4.2 – Température potentielle équivalente à 700 hPa (en K) à 6UTC le 28 avril 2001.

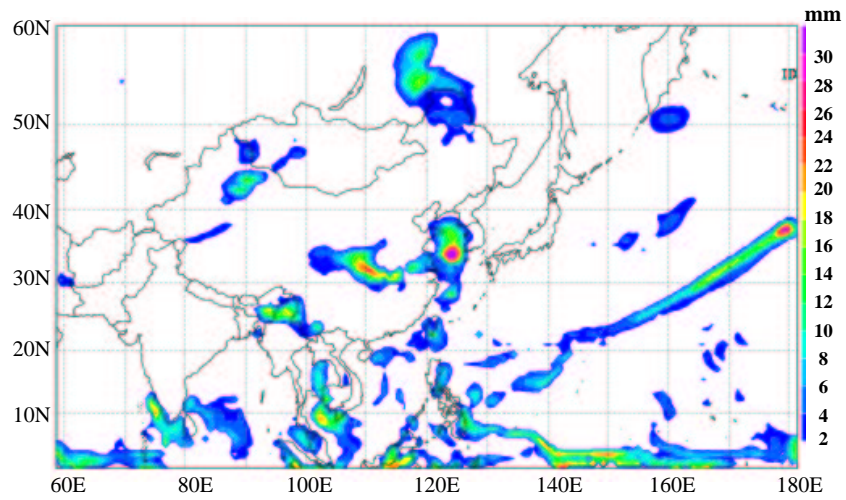


FIG. 4.3 – Précipitations cumulées sur 6h (en mm) le 28 avril 2001 à 6UTC.

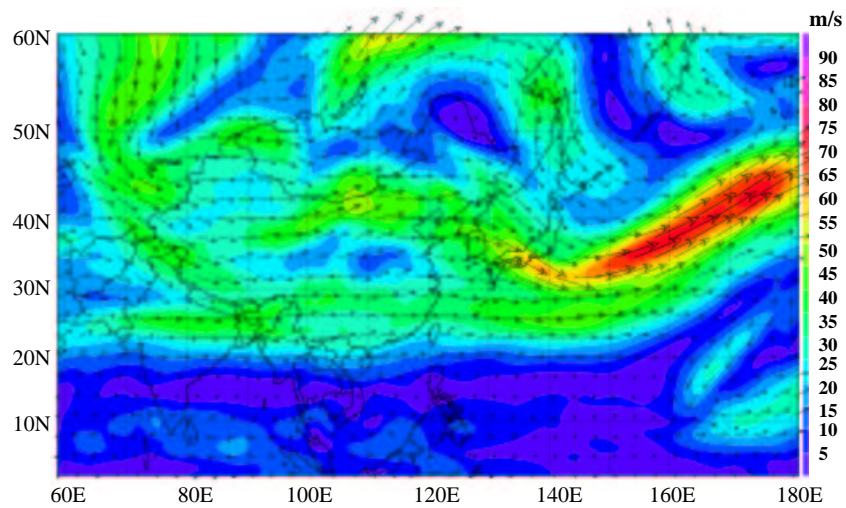


FIG. 4.4 – Vecteur et module du vent (en m/s) à 300 hPa le 27 avril 2001 à 6UTC.

4.2.3 Transport des polluants émis par les feux de biomasse sur Pékin

4.2.3.1 Zoom sur le traceur CO_{feux}

Comme cela est présenté au chapitre 1, la zone de mesures ACE-Asia, et plus particulièrement Pékin, se situe dans une zone fortement influencée par les émissions urbaines et de produits de fuels fossiles, mais également par d'importantes quantités de poussières désertiques [Zhang *et al.*, 2003]. D'après Wang *et al.* (2004), différentes voies de transport ont été identifiées comme étant les trajectoires moyennes les plus fréquemment empruntées lors de forts épisodes de pollution particulaire observés sur Pékin provenant des poussières désertiques.

Il est probable que les polluants gazeux et particulaires émis par les feux de biomasse soient transportés par cette même voie sur Pékin : c'est ce que je vais étudier dans cette partie.

Nous avons vu au chapitre 2 que d'importantes zones de feux étaient présentes au Kazakhstan durant les dix derniers jours d'avril. Grâce à une étude qualitative, basée sur l'utilisation de traceurs lagrangiens, le transport de ces polluants a pu être suivi, et les résultats sont exposés ici.

La méthode lagrangienne retenue est celle développée par Gheusi and Stein (2002) qui permet d'obtenir des rétro-trajectoires arrivant à Pékin et de connaître ainsi à rebours dans le temps les positions des particules d'air toutes les deux heures, depuis l'instant d'initialisation du modèle.

Dans un premier temps, nous l'avons appliquée pour mieux comprendre la distribution verticale du CO au dessus de Pékin. Plus précisément, la figure 4.5 présente les concentrations de CO_{feux} (c'est à dire les concentrations provenant uniquement des émissions par les feux de végétation) le 29 avril 2001 à 6UTC. Trois couches distinctes apparaissent sur ce profil vertical : la couche C1 à environ 1000 m d'altitude, la couche C2 à 2000 m d'altitude et la couche C3 à 3000 m d'altitude.

La figure 4.6 représente les rétro-trajectoires atteignant le 29 avril 2001 à 6UTC la

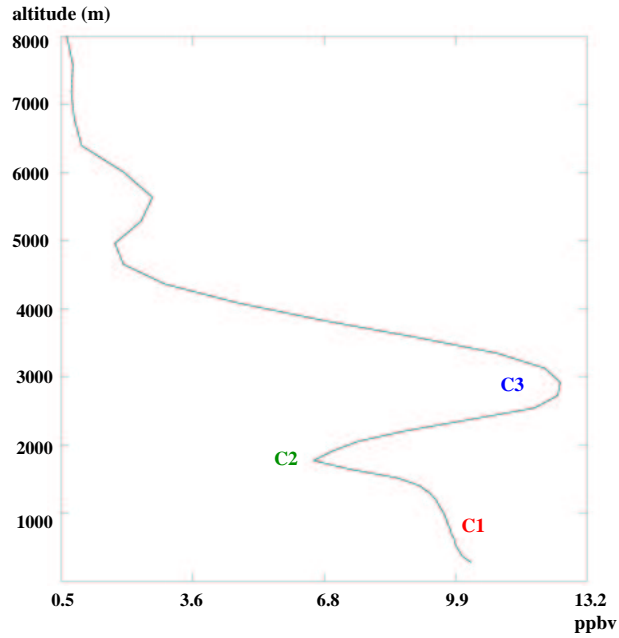


FIG. 4.5 – Profil vertical de $CO_{2\text{eux}}$ obtenu sur Pékin le 29 avril 2001 à 6UTC

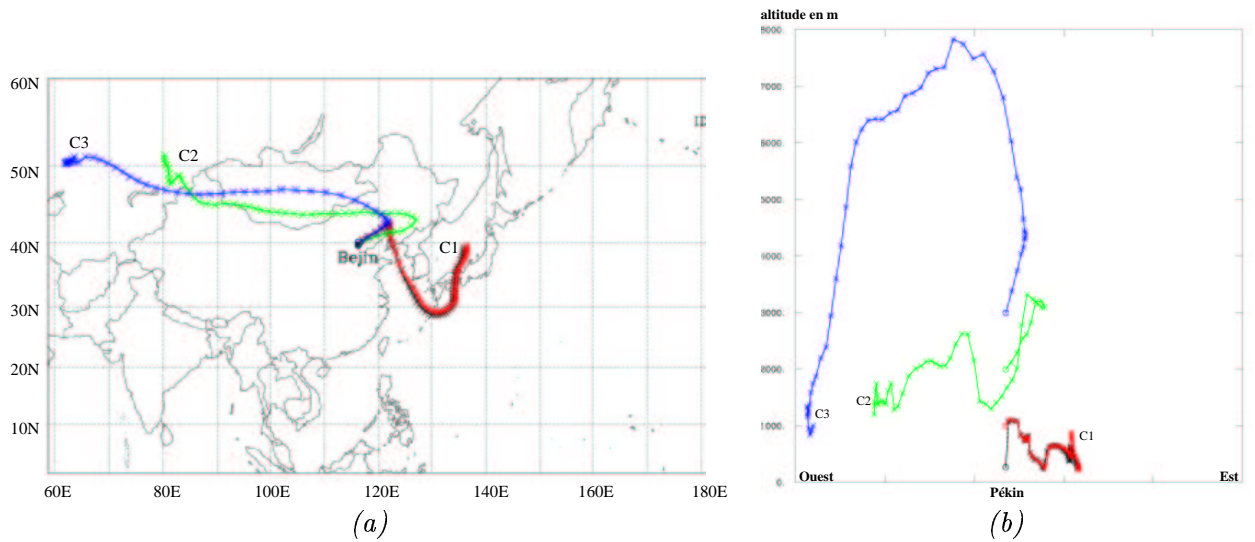


FIG. 4.6 – Rétro-trajectoire aboutissant à Pékin le 29 avril à 6UTC. (a) Projection horizontale. (b) Projection dans le plan vertical zonal entre 60E-180E et 0-8000 m d'altitude.

verticale de Pékin pour différents niveaux correspondant aux couches C1, C2 et C3. Les étoiles représentent la localisation des particules toutes les deux heures.

La couche C1 (représentée par les rétro-trajectoires en noir (50 m) et rouge (1000 m) sur la figure 4.6) constitue la couche limite au dessus de Pékin le 29 avril à 6UTC. La masse d'air C1 se trouve en mer du Japon quatre jours auparavant, le 25 avril, où elle suit un mouvement anticyclonique jusqu'au 28 avril 14UTC. Au cours de ce mouvement, elle survole le Japon, et passe à la pointe de la Corée du Sud le 28 avril vers 0UTC où elle subit un mouvement subsident qui l'entraîne à une altitude d'environ 300 m. Au cours de la journée du 28 avril, elle survole la mer Jaune pour ensuite pénétrer dans les terres au niveau de la province du Liaoning. Lorsqu'elle arrive sur le continent vers 12UTC le 28 avril, elle traverse une zone influencée par les feux de biomasse, située à l'est de la Mandchourie. Bien qu'au cours de sa trajectoire la masse d'air C1 reste plutôt au dessus des mers, elle est dans une zone relativement polluée (influence du Japon, de la Corée et de la Chine pour les combustions de fuels fossiles et de la Mandchourie pour les combustions de biomasse). De plus, elle reste toujours confinée dans les mille premiers mètres de l'atmosphère, et donc est sous forte influence des émissions locales.

La couche C2 (trajectoire en vert sur la figure 4.6) atteint Pékin à une altitude de 2000 m le 29 avril à 6UTC. Elle est située à l'est du Kazakhstan le 25 avril, à une altitude d'environ 1200 m.

La couche C3 (trajectoire en bleu sur la figure 4.6) est elle-aussi située au Kazakhstan le 25 avril à la même latitude que la couche C2, mais à environ 1500 km à l'ouest, et à une altitude de 900 m. Elle atteint Pékin le 29 avril à 6UTC à une altitude de 3000 m.

Ces deux couches traversent d'importantes zones de feux (cf chapitre 2).

Les particules des couches C2 et C3 ont été transportées jusqu'au nord de Pékin par un flux d'ouest d'un même système dépressionnaire. Néanmoins, comme l'indique la figure 4.6b, il y a une grande différence entre les altitudes où ces particules ont voyagé.

Au cours du 25 avril, la couche C2 est transportée jusqu'à la frontière chinoise par un flux de nord-ouest, lié à une dépression naissante au nord du Kazakhstan. La couche C3 est elle au cœur d'un système anticyclonique avec des vents très faibles, et évolue peu (système stable).

Le 26 avril, la dépression, naissante la veille, se creuse et ondule en cours de journée par deux thalwegs méso-échelle. La figure 4.7 représente les isohypses (courbes de niveau d'une surface isobare) à 700 hPa, où les axes des deux thalwegs et les lignes de convergence associées ont été représentés.

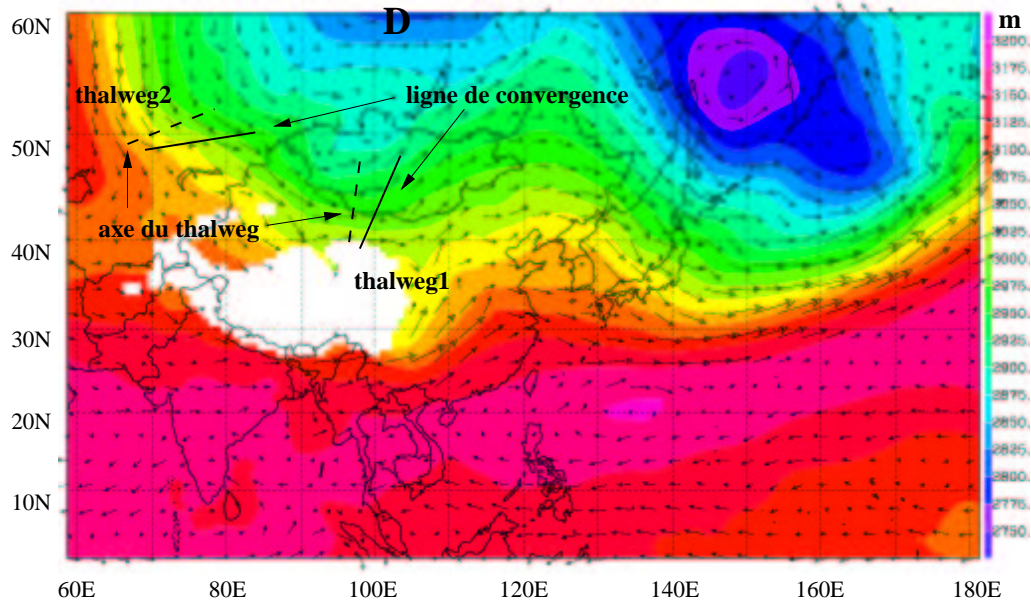


FIG. 4.7 – Isohypses à 700 hPa le 26 avril 2001 à 12UTC

Les particules de la couche C2 sont à l'arrière de la ligne de convergence du thalweg n°1. Elles sont donc dans une zone stable et sont transportées à une altitude quasi-constante (entre 1500 m et 2500 m) tout au long de la journée du 26 par le flux d'ouest généré par ce système dépressionnaire jusqu'au 28 avril 14UTC.

Les particules de la couche C3 en revanche, sont situées à l'avant du front froid associé au thalweg n°2. Elles vont subir une ascendance importante (environ 4500 m) par entraînement dans l'air chaud à l'avant de ce front.

La figure 4.8a montre les déplacements verticaux intégrés sur 12h en moyenne troposphère. Les couleurs chaudes représentent une ascendance, les couleurs froides une subsidence.

Cette approche permet de distinguer nettement la zone d'ascendance associée à la présence du front froid au nord-est du Kazakhstan (front associé au thalweg n°2). De même, elle souligne l'absence de front marqué à l'avant de l'axe du thalweg n°1.

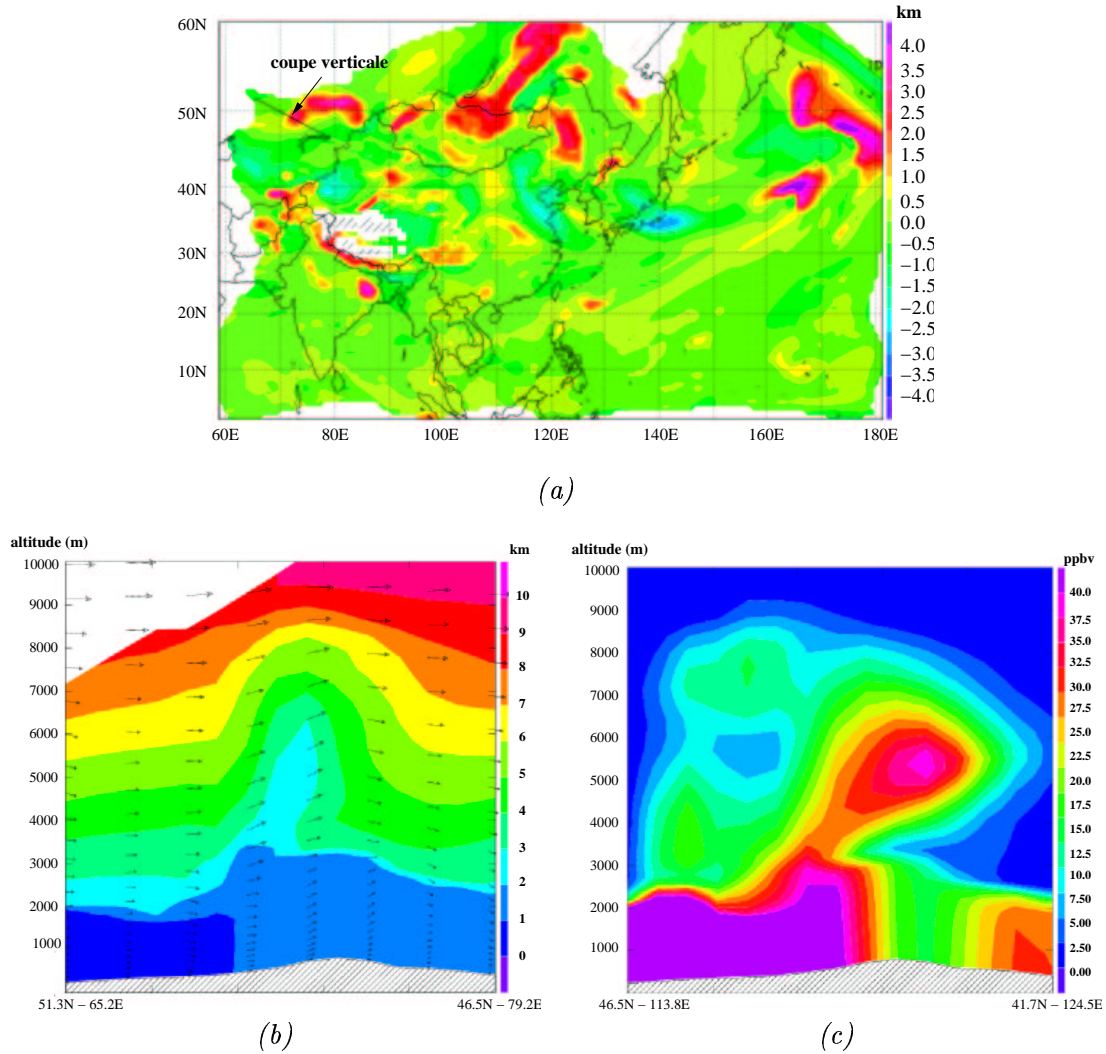


FIG. 4.8 – (a) Déplacement vertical des particules durant les 12h précédant le 26 avril 2001 à 12UTC : $\Delta Z = Z - Z_0$ (en km) à $Z = 5000$ m. (b) coupe verticale de Z_0 le 26 avril à 12UTC (en km) qui représente l'altitude initiale qu'avaient les masses d'air le 26 avril 2001 à 00UTC.

(c) coupe verticale des concentrations de CO_{feux} (en ppb), traceurs émis par les feux de biomasse, le 26 avril à 12UTC.

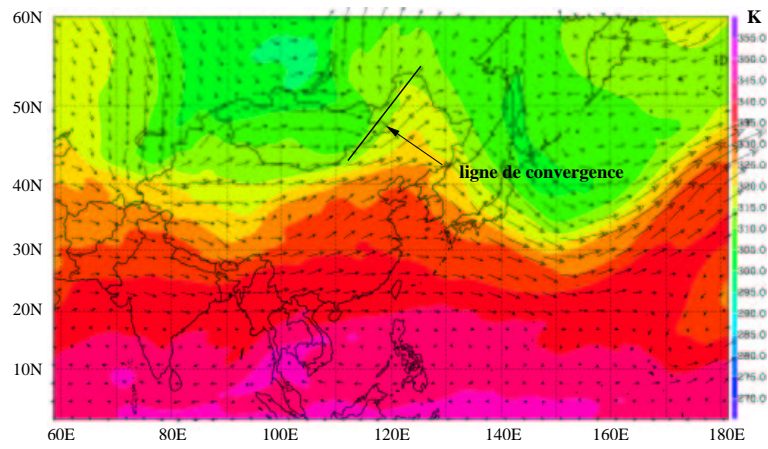
Les coupes verticales illustrent l'ascendance subie par les particules de la couche C3 (figure 4.6). En effet, au centre de la figure 4.8b et à l'altitude de 5-6 km, la langue d'air, en bleu clair, représente les particules situées entre 2 et 3 km d'altitude, 12h auparavant. Le vent vertical montre également le mouvement instantané d'ascendance. Sur la coupe de concentration en CO_{feux} correspondante (figure 4.8c), une poche de CO se distingue à l'altitude de 5-6 km, ce qui correspond au CO émis par les feux du Kazakhstan en surface, et soulevé dans le front.

Au cours de la journée du 27 avril, les particules de la couche C3 continuent leur ascendance jusqu'à 20UTC où elles atteignent une altitude de 7800 m, tout en traversant la Mongolie, transportées par le flux d'ouest lié au système dépressionnaire principal (basé sur le sud de la Russie).

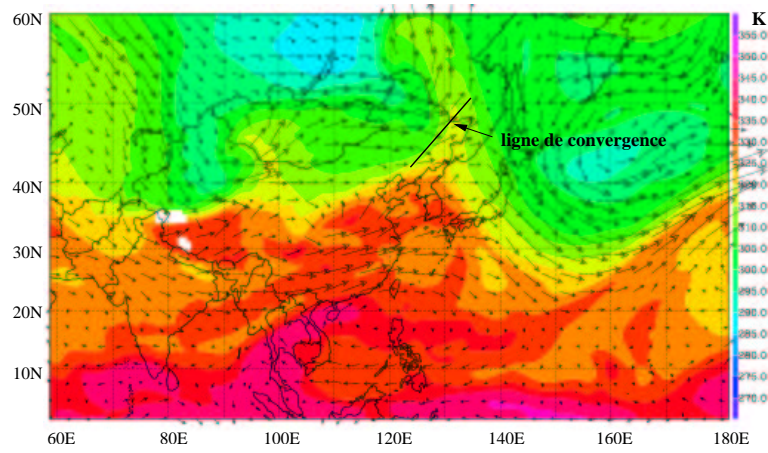
A partir de 2UTC le 28 avril, la couche C3 subit une subsidence importante liée à un système de basses pressions très marqué (980 hPa), situé au nord de la Mandchourie. Les figures 4.9 représentent la température potentielle équivalente à 3 altitudes différentes correspondant aux altitudes de la particule C3 lors de sa subsidence: 350 hPa le 27 avril à 24UTC (figure 4.9a), 530 hPa le 28 avril à 12UTC (figure 4.9b) et 615 hPa le 28 avril à 24UTC (figure 4.9c). Sur les figures 4.9a et 4.9b, la ligne de convergence du front a été ajoutée. Contrairement à la journée du 26 avril (où la particule se situait à l'avant du front dans la masse d'air chaud, et avait donc subi une ascendance), au cours de cette journée du 28 avril, jusqu'à 14UTC, elle est à l'arrière du front, et est entraînée au sein de la masse d'air froid dans un mouvement de subsidence.

La figure 4.10 représente à $Z = 5$ km le 28 avril 2001, à 12UTC, l'altitude initiale qu'avaient les particules 12h auparavant. Sur la figure 4.10a apparaît une zone importante de subsidence (représentée en bleu) au nord-est de Pékin, à l'arrière du front. Cette zone de subsidence correspond à des particules de la masse d'air C3 qui étaient à 7800 m à 24UTC le 27 avril et qui 12h après se situent à une altitude de 5 km. Les coupes verticales (figures 4.10a et 4.10b) précisent ce déplacement vertical et les concentrations en CO_{feux} associées.

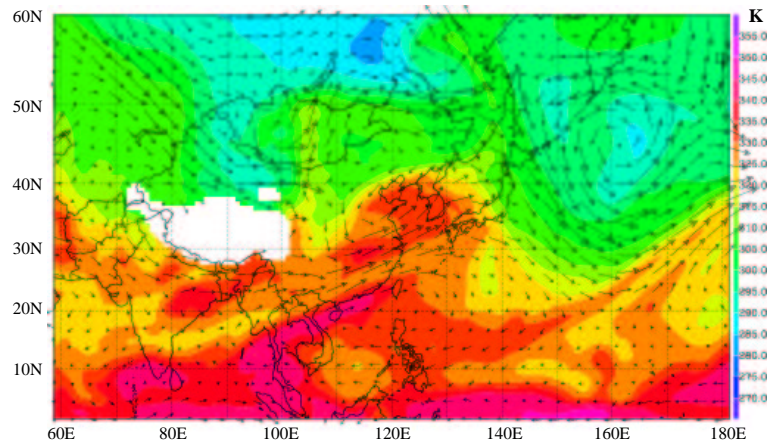
A partir de 14UTC le 28 avril, les trois couches C1, C2 et C3 suivent toutes les trois un même mouvement anticyclonique subsident dont le cœur se situe à environ 700 km au



(a) θ_e à 350 hPa le 27 avril 2001 à 24 UTC



(b) θ_e à 530 hPa le 28 avril 2001 à 12 UTC



(c) θ_e à 625 hPa le 28 avril 2001 à 24 UTC

FIG. 4.9 – Température potentielle équivalente (en K).

nord-ouest de Pékin, qui conduit les 3 couches à Pékin le 29 avril à 6UTC.

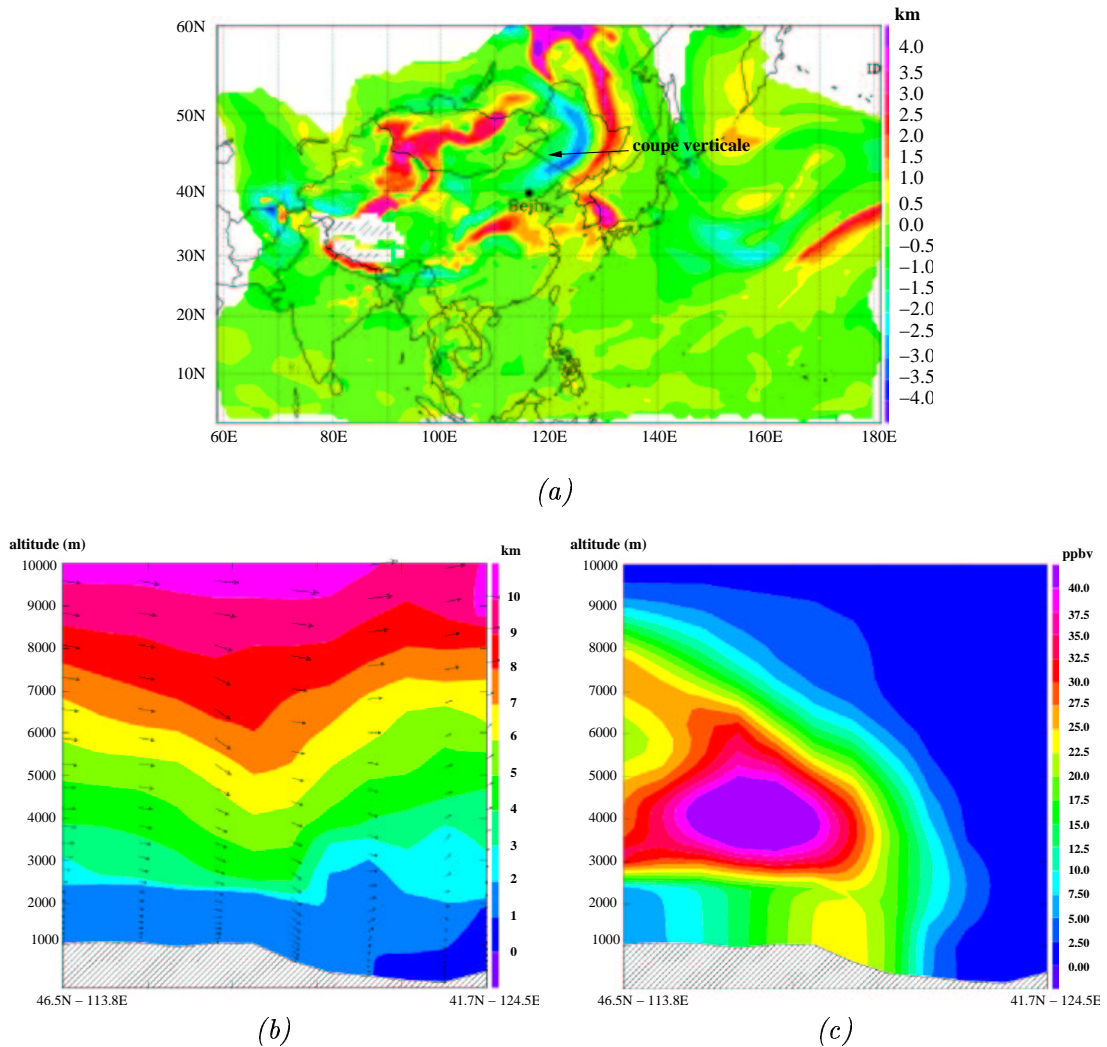


FIG. 4.10 – (a) Déplacement vertical des particules au cours des 12 dernières heures, le 28 avril 2001 à 12UTC : $\Delta Z = Z - Z_0$ (en km). (b) coupe verticale de Z_0 (en km) le 28 avril à 12UTC. (c) coupe verticale des concentrations de CO_{feux} (en ppb) le 28 avril à 12UTC.

Enfin, on distingue nettement un mouvement de subsidence sur les figures 4.11, analogue à la figure 4.10 mais pour le 28 avril à 24UTC. La zone matérialisée en bleu clair sur la figure 4.11a désigne les particules qui ont subi un déplacement vertical descendant de 2 à 2,5 km au cours des douze dernières heures. La figure 4.11b présente la coupe verticale désignée sur la coupe horizontale par un trait noir (cf figure 4.11a), illustrant le déplacement vertical subi par les particules de la couche C3 et la fin de leurs mouvements

subsidents qui les transportent sur Pékin.

Il est important de souligner que le pic de CO_{feux} présent à l'altitude de 3-4 km sur les figures 4.10c et 4.11c ne provient pas du transport des émissions de feux du Kazakhstan, mais des émissions du nord de la Mongolie. Cette poche de CO_{feux} n'est toutefois pas emportée par le mouvement de subsidence considéré.

La figure 4.11c montre l'arrivée de C3 (laquelle transporte des polluants émis par les feux du Kazakhstan) dans le mouvement de subsidence, avec des concentrations supérieures à la valeur de fond (de 7,5 à 12 ppb).

L'étude des concentrations simulées le long des rétrotrajectoires pour les différentes couches (figure non présentée ici) montre que les concentrations du traceur CO_{feux} lors du transport de la couche C3 augmentent jusqu'à 6UTC le 26 avril, pour atteindre la valeur de 52 ppb à une altitude de 3000 m environ. Au cours du déplacement vertical jusqu'à 6000 m ce même jour, les concentrations se stabilisent. En effet, à haute altitude, le transport des espèces est favorisé car la durée de vie des espèces chimiques est plus longue en raison de la réduction des puits et de l'absence de dépôt en surface, et également du fait d'une moindre dilution (moins de turbulence en troposphère libre). A partir de 14UTC le 26 avril jusqu'à 6UTC le 29 avril, les concentrations en CO_{feux} dans la couche C3 se diluent au fur et à mesure de son transport, pour atteindre une valeur de 11,95 ppb sur Pékin à 3000 m. La couche C3, du fait de son altitude de transport, s'est faiblement diluée au regard de la distance effectuée, et ne s'est pas rechargée par les émissions de feux de biomasse du nord de la Mongolie ou de l'est de la Mandchourie.

Tout comme l'évolution des concentrations de CO_{feux} pour la couche C3, les concentrations relatives à la couche C2, qui se situe en pleine zone d'émissions de feux de biomasse le 25 avril 2001 au début de la simulation sont élevées. Cependant, au cours du transport de cette masse d'air, on peut noter que les concentrations en CO_{feux} sont bien moindres que celles observées pour la couche C3. Tout d'abord, elles ne dépassent jamais 30 ppb et cette valeur est atteinte au début du transport de C2, lorsqu'elle est encore sous influence directe des émissions. Ensuite, au cours du transport via le flux d'ouest, elles oscillent aux

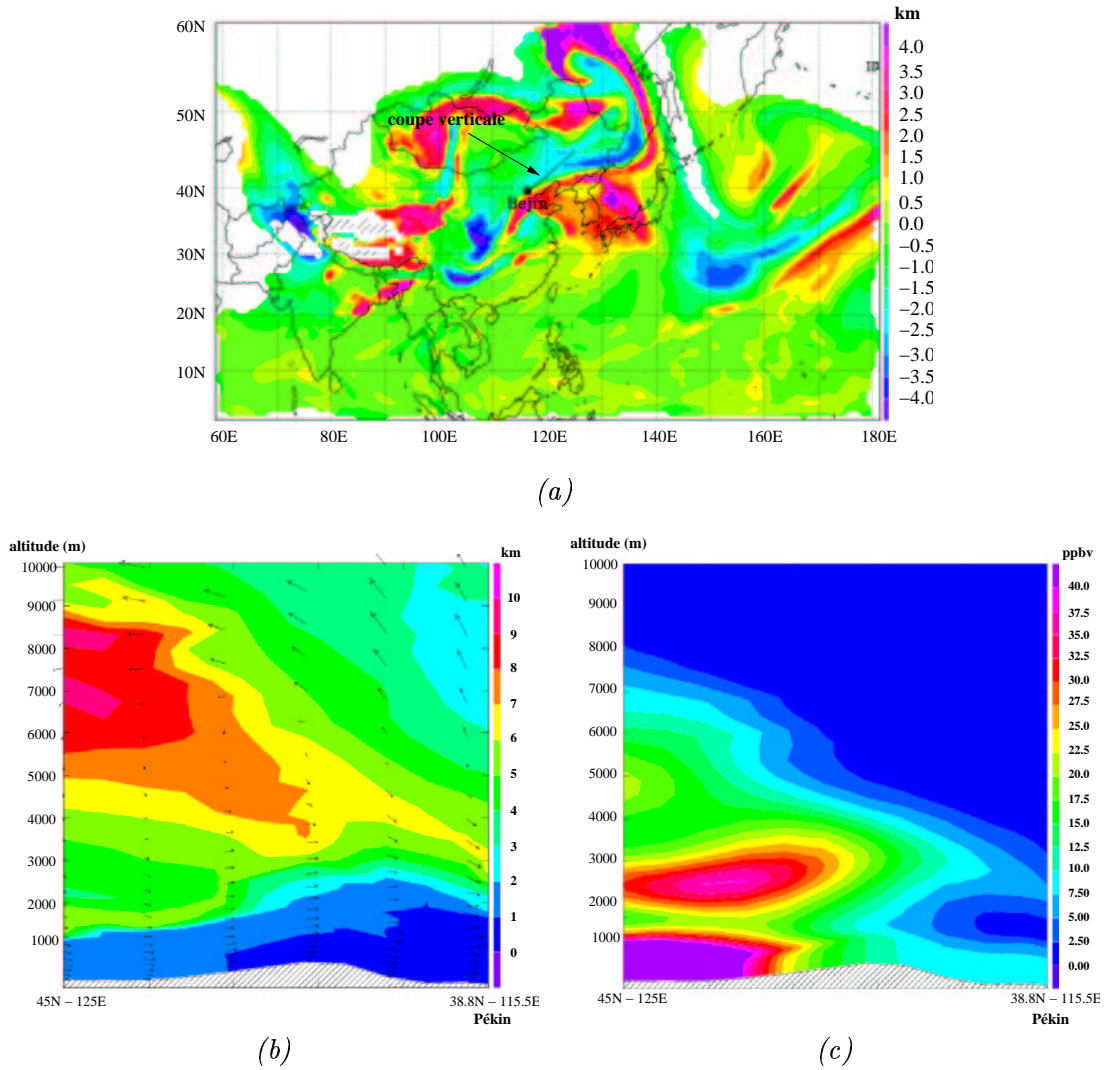


FIG. 4.11 – (a) Déplacement vertical des particules au cours des 12 dernières heures, le 28 avril 2001 à 24 UTC : $\Delta Z = Z - Z_0$ (en km). (b) coupe verticale de Z_0 (en km) le 28 avril à 24 UTC. (c) coupe verticale de CO_{feux} (en ppb) le 28 avril à 24 UTC.

alentours de 7 ppb et la couche C2 reste confinée entre 1500 et 3000 m. En traversant une zone sous l'influence des feux de Mongolie, la couche C2 se recharge en CO_{feux} entre 12UTC le 27 avril et 4UTC le 28 avril : les concentrations doublent. Néanmoins, une chute importante des concentrations atteignant une valeur de 7 ppb sur Pékin est observée en fin de simulation, lors de la subsidence liée au mouvement anticyclonique.

En résumé, il est intéressant de noter que la distribution verticale des concentrations de CO_{feux} et son hétérogénéité, obtenue sur Pékin le 29 avril à 6UTC (figure 4.5) s'expliquent par le transport vertical et horizontal des masses d'air, et les zones d'émissions qu'elles traversent. En effet :

- La couche C1 est la masse d'air qui constitue la couche limite de Pékin le 29 avril à 6UTC (de 0 à 1000 m d'altitude). Au cours de son transport, cette couche traverse une partie du Liaoning, qui est sous l'influence des émissions de nord-est de la Mandchourie (province de Jilin). Les concentrations de CO_{feux} sont de l'ordre de 9 ppb sur Pékin dans la couche limite.
- La couche C2 arrive sur Pékin à une altitude de 2000 m. Bien que prenant sa source dans une zone fortement influencée par les feux du Kazakhstan, la pollution présente dans la couche C2 s'est diluée au cours de son transport, et les concentrations observées en CO_{feux} sur Pékin sont moins importantes que la couche C1 : de l'ordre de 6,8 ppb.
- La couche C3 provient elle aussi directement de la zone des émissions de feux de biomasse du Kazakhstan, mais son transport à haute altitude lui a permis de peu se diluer (pas de dépôt et moins de turbulence) et les concentrations obtenues sur Pékin à l'altitude de 3000 m sont plus fortes que pour la couche C2 : de l'ordre de 12 ppb.

4.2.3.2 Importance relative des concentrations du traceur CO_{feux} sur le contenu global en CO à Pékin

Afin d'étudier la contribution des émissions de CO issues des feux de végétation sur les concentrations de CO totales obtenues à Pékin, la contribution de chaque traceur de CO (CO_{feux} , $\text{CO}_{\text{fuel fossile}}$ et $\text{CO}_{\text{biofuels}}$) a été étudiée.

Tout d'abord, nous allons quantifier la part relative de CO, d'origine primaire, issue directement des émissions de notre domaine d'étude (COD), puis celle incluant à la fois les influences de l'extérieur du domaine et la composante secondaire de CO, d'origine photochimique (COM). Les figures 4.12a et 4.12b présentent les comparaisons des distributions verticales des différents CO. Dans la figure 4.12a, on a tracé le pourcentage de COD ($\text{COD} = \text{COA} (= \text{fuel fossile}) + \text{COB} (= \text{feux de biomasse}) + \text{COC} (= \text{biofuel})$) par rapport au CO total simulé par le modèle (COM) pour différentes altitudes à la verticale de Pékin le 29 avril 2001 à 6UTC. Dans les 1000 premiers mètres, la contribution des émissions de notre domaine d'étude est assez importante ($\simeq 75\%$), puis oscille autour de 35% jusqu'à 11 km d'altitude pour finalement atteindre une contribution proche de zéro, du fait de la provenance de masses d'air situées à l'extérieur du domaine d'étude et de la production photochimique de CO.

La figure 4.12b représente le pourcentage des différents traceurs de CO (COA, COB, COC) par rapport à la somme de ces traceurs (COD). Les concentrations de CO d'origine biofuels (COC) étant très faibles, nous ne développerons pas son évolution, nous focalisant essentiellement sur les grandes tendances. Dans la couche limite, les émissions de fuels fossiles sur Pékin entraînent une prédominance de $\text{CO}_{\text{fuel fossile}}$, malgré un apport de CO_{feux} lié au transport de la couche C1. Par contre, à l'altitude de 3000 m, la contribution de CO_{feux} atteint 95% du CO_{total} en raison des feux de végétation du Kazakhstan, comme il l'a été montré dans le paragraphe précédent avec l'étude du transport de la couche C3.

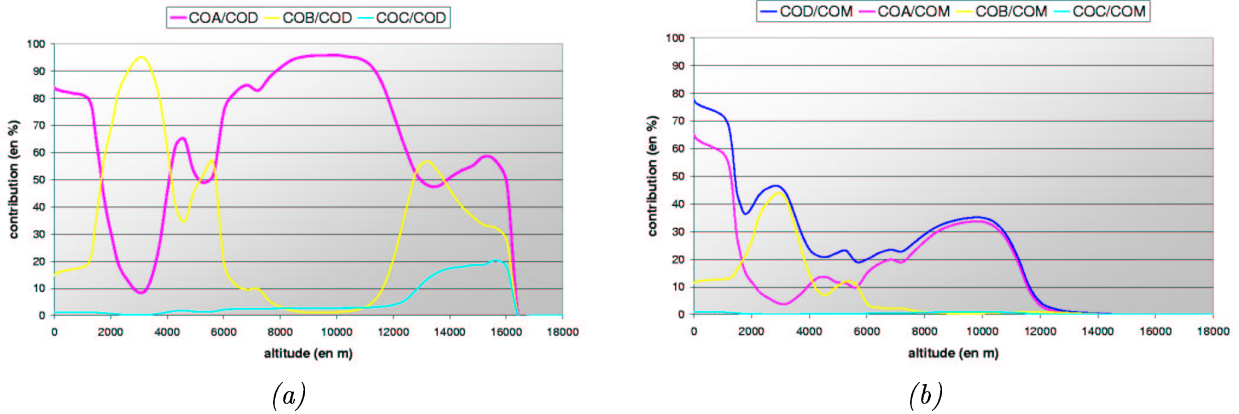


FIG. 4.12 – Contribution des différentes sources de CO sur Pékin le 29 avril 2001 à 6UTC. (a) par rapport au CO total simulé par le modèle. (b) par rapport à la somme des traceurs de CO (CO_{feux} , $CO_{fuel\ fossile}$ et $CO_{biofuels}$).

4.2.3.3 Analyse de la distribution verticale de l'aérosol carboné sur Pékin

De même que l'évolution de CO_{feux} sur les trajectoires des couches C2 et C3 a été étudiée, l'évolution des concentrations en BC et OC le long des trajectoires C1, C2 et C3 est présentée ici. Nous n'avons pas distingué dans nos simulations l'origine (sources fuels fossils, biofuels et feux de biomasse) de ces espèces particulières, et donc seul le suivi de l'évolution des concentrations totales est possible.

Les figures 4.13, 4.14 et 4.15 représentent l'évolution temporelle des concentrations obtenues au cours des trajectoires des masses d'air C1, C2, et C3, pour les particules carbonées (BC, OC_p et SOA) : les résultats pour le CO (CO_{total} , $CO_{fuels\ fossiles}$ et CO_{feux}) sont également présentés.

L'évolution des concentrations de BC et OC_p le long de la trajectoire C1 (figure 4.13b) possède le même profil que celle des concentrations de CO (figure 4.13a). Les concentrations de BC et OC_p sont quasi-constantes jusqu'au 27 avril 22UTC. Elles augmentent ensuite jusqu'au 28 avril 24UTC pour ensuite diminuer légèrement entre 00UTC et 6UTC le 29 avril. Les concentrations en aérosols organiques secondaires (SOA_{total}) augmentent pour leur part le 25 avril à 24UTC. Auparavant, les valeurs en SOA étaient quasi-nulles. Elles suivent ensuite le profil de CO, BC et OC_p jusqu'à leurs arrivées sur Pékin où elles

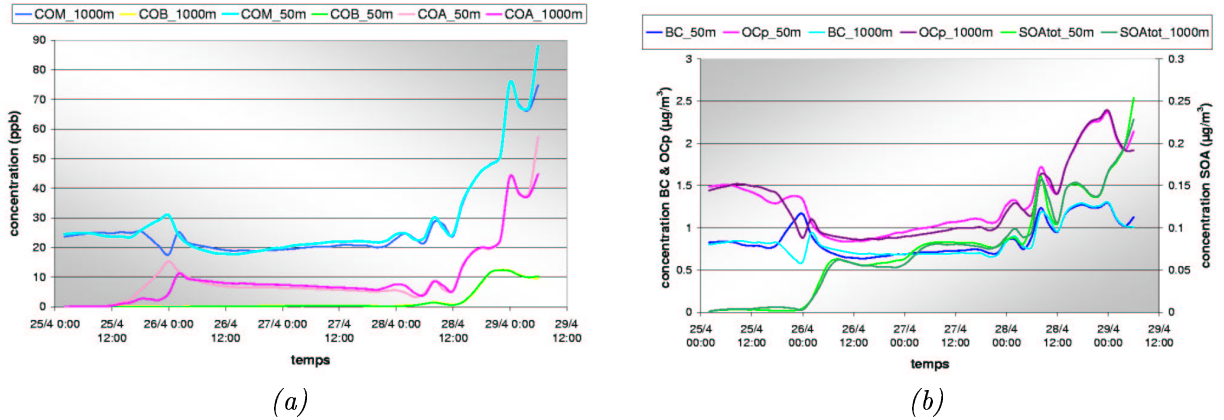


FIG. 4.13 – Evolution temporelle des concentrations en CO (a) et en particules carbonées (b) le long des deux trajectoires représentatives de la couche C1 (voir figure 4.6).

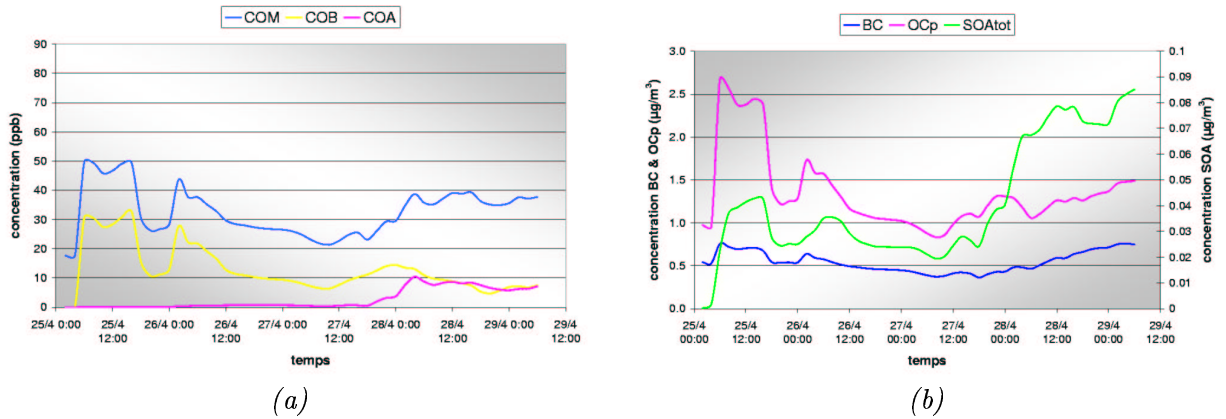


FIG. 4.14 – Evolution temporelle des concentrations en CO (a) et en particules carbonées (b) le long de la trajectoire C2.

continuent d'augmenter, alors que les concentrations de CO, BC et OC_p augmentent plus lentement.

Tout comme pour la couche C1, l'évolution des particules le long de la trajectoire C2 est très similaire à l'évolution des concentrations de CO (figure 4.14a et 4.14b). Au cours de la journée du 25 avril, les concentrations augmentent jusqu'à 14UTC, alors que l'altitude de la trajectoire de la couche C2 est constante (environ 1500 m). Un second pic apparaît à 2UTC le 26 avril pour BC et OC_p (identique au CO), alors qu'il apparaît décalé pour les concentrations en SOA (à 6UTC le même jour). Entre le 26 avril 2UTC

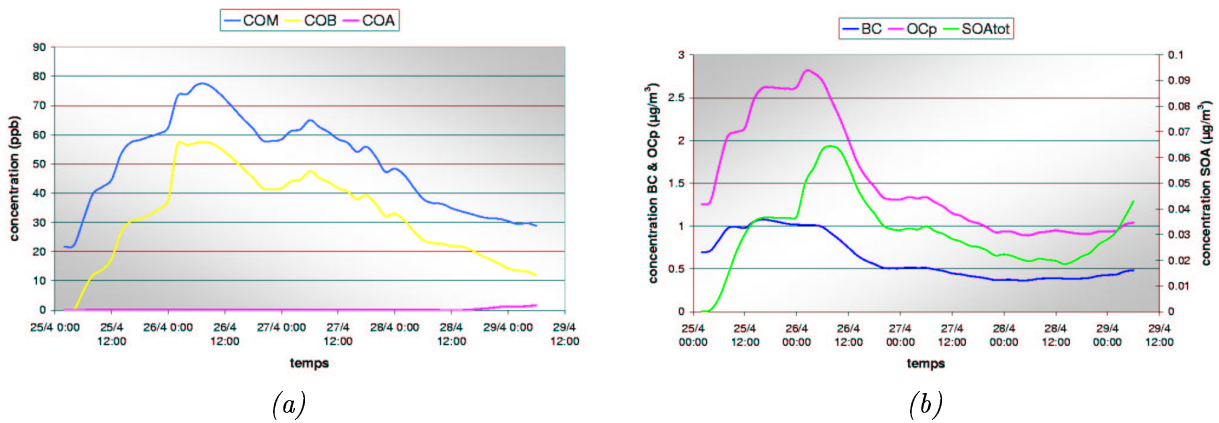


FIG. 4.15 – Evolution temporelle des concentrations en CO (a) et en particules carbonées (b) long de la trajectoire C3.

et le 27 avril 10UTC alors que la masse d'air C2 se situe à une altitude constante de 2000 m, les concentrations diminuent faiblement. A partir de 10UTC le 27 avril jusqu'au 29 avril 6UTC, toutes les concentrations augmentent, à l'exception de CO_{feux} qui diminue à compter du 27 avril 24UTC. On observe une nette augmentation des concentrations en aérosols secondaires pendant cette période, en particulier aux abords de Pékin.

Le long de la trajectoire C3, une fois de plus, l'évolution des concentrations en aérosols carbonés possède le même profil que celles des concentrations en CO (figure 4.15a et 4.15b). Les concentrations en OC_p et CO augmentent au cours de la journée du 25 avril jusqu'à 2UTC le 26 avril pour OC_p et 6UTC le 26 avril pour CO, quand la couche C3 atteint l'altitude de 3000 m. BC, lui, reste constant autour de $1 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. Une augmentation importante des concentrations en SOA est observé à 24UTC le 25 avril. Jusqu'au 27 avril 24UTC, l'altitude de transport de la couche C3 augmente et les concentrations diminuent (gazeuses et particulaires). Au cours de la subsidence, alors que les concentrations en CO (total et feux) diminuent nettement, celles en BC et OC_p se stabilisent autour de $0,35 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ et $0,9 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ respectivement. Par contre, à partir de 14UTC le 28 avril, les concentrations de SOA augmentent.

La couche C1 est sous influence anthropique quasiment tout le long de sa trajectoire, et les concentrations moyennes en BC ($0,84 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) sont plus élevées que dans les couches

C2 et C3 ($0,54 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ et $0,62 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ respectivement). Pour les valeurs des concentrations en carbone organique primaire, la tendance est inversée : les concentrations moyennes sont plus fortes pour les couches C2 et C3 ($1,35 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ et $1,52 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ respectivement) que pour la couche C1 ($1,29 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$).

Bien que la couche C1 soit confinée dans les mille premiers mètres durant son transport, les concentrations en particules organiques sont plus importantes en début de simulation en altitude (couches C2 et C3), dans les zones proches des émissions de feux, que dans la couche limite (couche C1).

Par la suite, en raison de sa faible altitude, la couche C1 se mélange avec la pollution locale. Dès que l'altitude des couches C2 et C3 diminue, on note que les concentrations en particules augmentent de nouveau. En particulier, les concentrations en aérosols secondaires sont maximales le 29 avril, lorsque les particules arrivent sur Pékin.

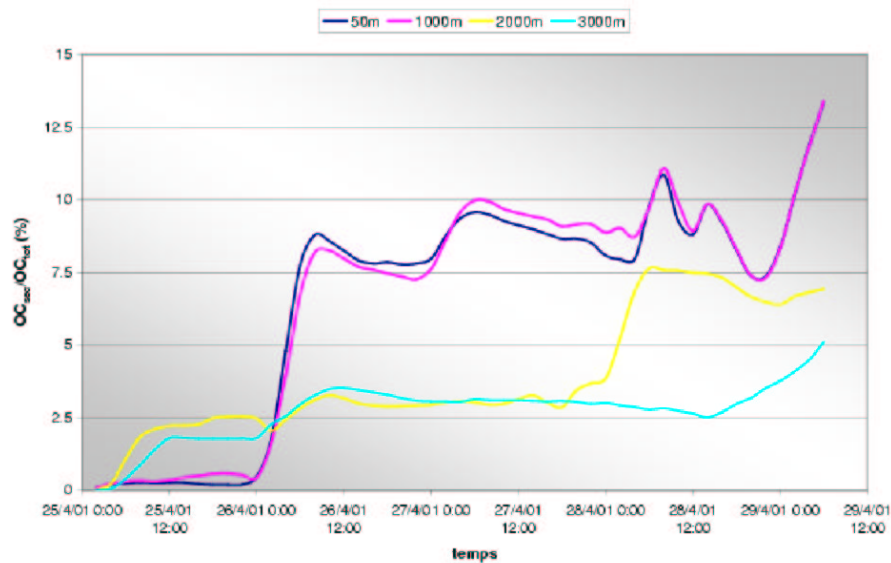


FIG. 4.16 – Evolution temporelle du rapport OC_{sec}/OC_{tot} au cours des trois trajectoires C1, C2 et C3.

La figure 4.16 illustre l'évolution du rapport OC_{sec}/OC_{tot} au cours du transport des trois masses d'air. Ces rapports sont faibles et nous obtenons à partir de nos simulations une formation en SOA peu importante, sur laquelle nous reviendrons plus tard.

Néanmoins, lorsque la pollution est d'origine « fuel fossile », la formation est plus importante que pour une origine feu de biomasse, en raison des concentrations en OC_p plus fortes dans les émissions de feux que dans les émissions de fuels fossiles. En effet, la couche C1, qui est tout au long de sa trajectoire influencée par les émissions de fuels fossiles, possède un rapport OC_{sec}/OC_{tot} supérieur à ceux calculés pour les couches C2 et C3. On peut également noter que pour ces deux couches (C2 et C3), les rapports augmentent à leur arrivée sur Pékin, quand les masses d'air d'altitude peuvent se mélanger avec la pollution de la couche limite : ce phénomène est par ailleurs plus marqué pour la couche C2 que C3 en raison de son altitude plus faible.

4.2.4 Conclusion

Cette étude centrée sur l'analyse de rétrotrajectoires permet d'expliquer l'origine des concentrations de CO obtenues sur Pékin le 29 avril 2001 à 6UTC. Elle montre également l'importance des feux de biomasse dont les espèces émises peuvent en quelques jours être transportées d'un bout à l'autre de l'Asie via des systèmes frontaux, déjà désignés comme le processus de transport de la pollution le plus efficace et le plus fréquent [Liu *et al.*, 2003].

Au cours de ces analyses, nous avons pu établir que les trajectoires des masses d'air situées à 2000 m (C2) et 3000 m (C3) d'altitude étaient assez similaires du point de vue de leurs déplacements horizontaux (d'est en ouest). Il semblerait que la trajectoire moyenne employée par ces deux couches soit représentative de transports fréquemment observés, qui engendrent de forts épisodes de pollution particulaire sur Pékin. La figure 4.17 extraite des travaux de Wang *et al.* (2004) représente les rétrotrajectoires moyennes obtenues sur Pékin lors d'épisodes de pollution, le nombre de fois où ces trajectoires ont été observées ainsi que les concentrations associées en PM_{10} mesurées sur Pékin.

Les trajectoires empruntées par les masses d'air donnant lieu à de fortes concentrations en PM_{10} à Pékin au printemps 2001 sont les trajectoires A, B et C. Il est donc intéressant de noter que les deux masses d'air des couches C2 et C3 de notre étude ont une trajectoire très proche de la trajectoire B des travaux de Wang. Ce « couloir » semblerait pouvoir transporter les masses d'air aussi bien près de la surface (cas de la couche C2) qu'en alti-

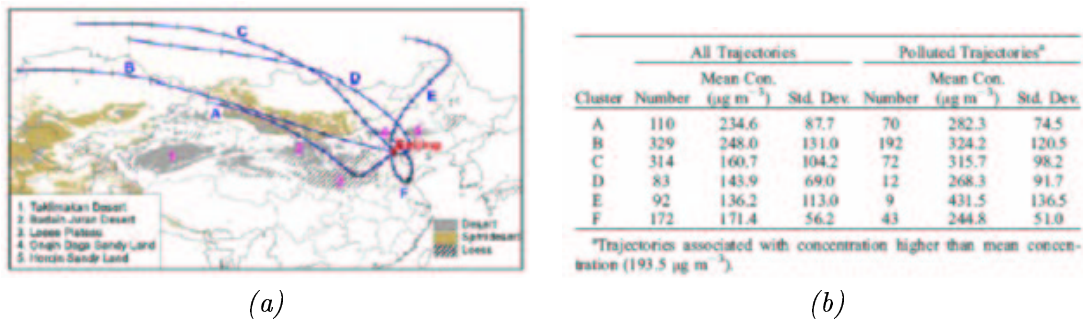


FIG. 4.17 – (a) rétrotrajectoires moyennes des masses d'air arrivant sur Pékin pour les printemps 2001 et 2003. (b) Nombre de trajectoires et concentrations en PM_{10} moyennes pour chaque masse d'air observées sur Pékin [Wang et al., 2004].

tude (cas de la couche C3). Les particules provenant de ce canal sont donc certainement constituées d'un mélange d'aérosol carboné et de poussières désertiques.

Par ailleurs, l'analyse de l'évolution des concentrations le long des trois trajectoires à 1000 m (C1), 2000 m (C2) et 3000 m (C3), a montré que le transport des particules et des gaz aux émissions d'origines similaires, au sein du modèle était comparable : CO, BC et OC_p ont des profils de concentrations semblables et les concentrations particulières ne sont pas plus affectées par les processus de dilution que celles des gaz.

Cependant, d'après Merrill and Kim (2004), le transport par les systèmes frontaux (cas de la couche C3), serait moins efficace pour les particules que pour les gaz. En effet, ces systèmes sont associés à des précipitations qui lessivent les particules de manière plus efficace que les gaz. Ce processus n'étant pas pris en compte à l'heure actuelle au sein de MésoNH-C-ORISAM (processus de dépôt humide), il serait intéressant par la suite de l'intégrer pour qualifier cet impact.

Concernant les concentrations en aérosols secondaires, elles sont extrêmement faibles (toujours inférieures à $0,5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ sur les cas présentés ici), et le rapport OC_{sec}/OC_{tot} est lui aussi très bas. Cependant, la comparaison de ce rapport, inférieur dans le cas d'une masse d'air fortement influencée par les feux de biomasse par rapport à une influence « fuels fossiles », peut s'expliquer selon deux raisons développées au cours du chapitre 5 : soit une forte contribution de l'aérosol organique primaire, qui est plus important pour les

émissions des feux de végétation que pour les émissions de fuels fossiles (OC_p grand), soit une formation en aérosols secondaires favorisée dans le cadre d'une pollution anthropique de type urbaine (OC_{sec} grand).

4.3 Etude de l'aérosol carboné durant les vols du 27 avril 2001

4.3.1 Description des plans de vols

Les deux vols du 27 avril 2001 ont été effectués entre le Japon et la Corée du Sud, en plein cœur d'un système anticyclonique.

Le vol du Twin-Otter RF17 a débuté le 26 avril 2001 à 23:31 UTC depuis la base MCAS (Marine Corps Air Station) d'Iwakuni au Japon, et s'est achevé le 27 avril à 5:22 UTC (heure locale = heure UTC + 10). Les figures 4.18 présentent la trajectoire et l'altitude du vol RF17. Le Twin-Otter effectue un premier palier à 700 hPa (segment [A-B] de la figure 4.18a). Il descend dans la couche limite où il traverse deux masses d'air différentes : une couche limite marine (segment [B-C] et [D-E]), et une couche de pollution (segment [C-D]) où de très fortes concentrations en particules sont mesurées. Il exécute ensuite une ascension jusqu'à 811 hPa (environ 1800 m d'altitude) (point E), et effectue successivement un palier en couche limite à 923 hPa (segment [E-F]) et un en altitude à 670 hPa (segment [F-G]) pour enfin revenir à la base d'Iwakuni.

Le vol du C-130 RF15 s'est déroulé le 27 avril 2001, lui aussi au départ de la base d'Iwakuni. Il a décollé à 00:36 UTC le 27 avril et atterri à 10:07 UTC. Un exercice d'intercomparaison a eu lieu entre les deux vols du C-130 et Twin Otter entre 01:35 UTC et 02:35 UTC. La boucle effectuée par le C-130 est beaucoup plus grande que celle effectuée par le Twin-Otter. Le C-130 monte à 590 hPa (segment [A-B]) en début de vol, puis redescend en couche limite pour effectuer l'intercomparaison avec le Twin-Otter

(segment [1-3]). Il effectue ensuite un palier à 420 hPa (segment [C-D]), puis échantillonne la couche limite au niveau de la mer jaune (segment [D-E]), et survole la Corée du Sud, à environ 600 hPa (segment [E-F]). Arrivé sur la mer du Japon, il descend de nouveau dans la couche limite et la basse troposphère (segment [F-G]), où il échantillonne le panache de pollution de la Corée. Il remonte enfin en altitude effectuant un premier palier à 838 hPa (segment [G-H]) puis un deuxième à environ 500 hPa (segment [H-I]), et redescend pour atterrir à Iwakuni.

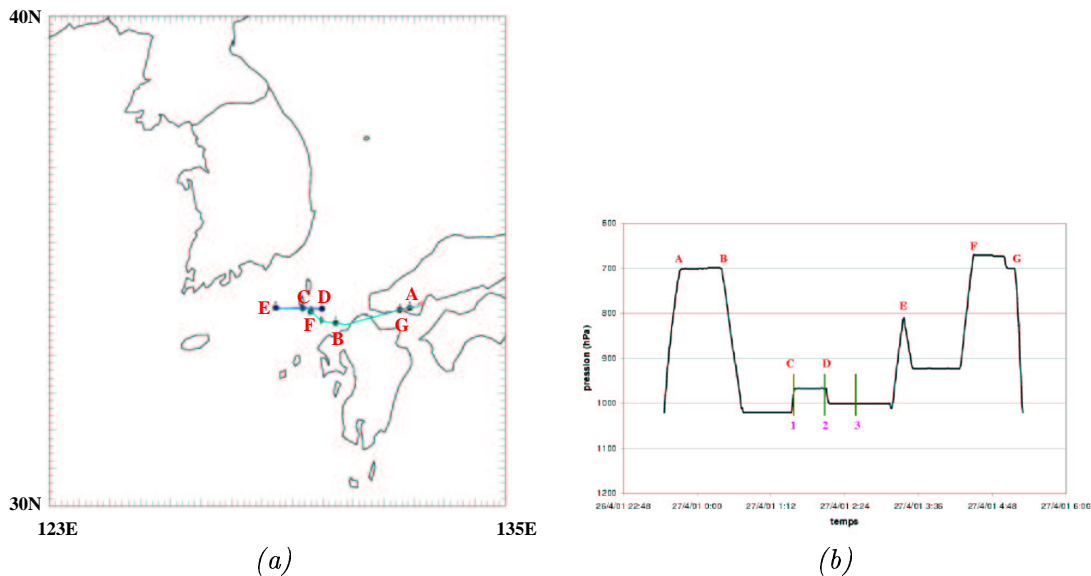


FIG. 4.18 – (a) Trajectoire du Twin-Otter durant le vol RF17 le 27 avril 2001. (b) Altitude (en hPa) du Twin Otter durant le vol RF17 le 27 avril 2001.

4.3.2 Comparaison dynamique des vols

Les figures 4.20 comparent les données météorologiques des observations aéroportées et des résultats du modèle MésoNH-C le long de la trajectoire du Twin Otter le 27 avril 2001.

La figure 4.20a montre que pour les faibles altitudes (couche limite et basse troposphère (segment [B-C], [D-E], [F-G] et [G-H])), le modèle restitue correctement la vitesse du vent. Par exemple, en couche limite où le vent est très faible, la vitesse du vent moyen simulé est de $2,1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ comparé à $1,9 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour le vent mesuré. En basse troposphère, la vitesse du

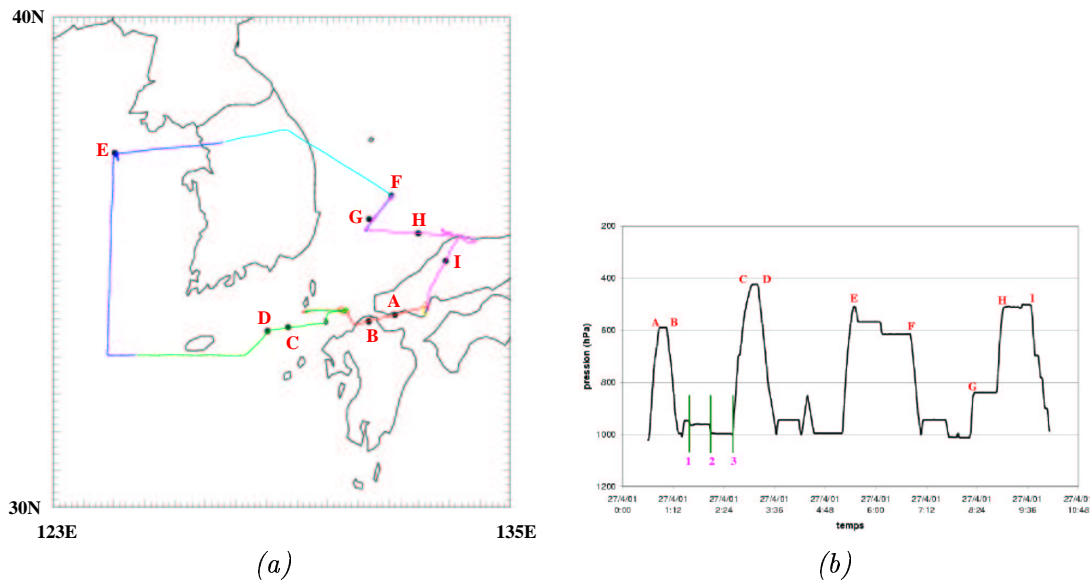


FIG. 4.19 – (a) Trajectoire du C-130 durant le vol RF15 le 27 avril 2001. (b) Altitude (en hPa) du C-130 durant le vol RF15 le 27 avril 2001.

vent simulée est légèrement sous-estimée par rapport aux observations : $3,7 \text{ m.s}^{-1}$ comparé à $4,3 \text{ m.s}^{-1}$ respectivement.

La direction du vent est aussi assez bien retranscrite au niveau temporel (figure 4.20b), mais il existe tout de même une différence d'une vingtaine de degrés en moyenne entre les résultats simulés et ceux observés, à l'exception du palier [B-C], où l'on remarque une différence de 40° . Le vent en couche limite est généralement orienté S-SE, et il tourne avec l'altitude pour prendre une direction sud en basse troposphère (segment [E-F]).

Concernant les données en altitude (segment [A-B] et [F-G]), la vitesse du vent est assez mal retranscrite pour les deux paliers : elle est surestimée par le modèle pour le segment [A-B] : $7,1 \text{ m.s}^{-1}$ et $4,6 \text{ m.s}^{-1}$ pour les valeurs simulées et mesurées respectivement, et elle est sous-estimée d'un facteur deux pour le segment [F-G] ($4,8 \text{ m.s}^{-1}$ simulé et 10 m.s^{-1} mesuré). La direction du vent en altitude modélisée possède un biais de 30° en moyenne par rapport aux valeurs mesurées : MésoNH-C simule un vent de N-NO, alors que les mesures indiquent un vent d'ouest, ce qui peut poser problème au niveau de la restitution du transport des polluants par le modèle.

La figure 4.20c précise que le rapport de mélange en vapeur d'eau est aussi sous-estimé tout le long du vol, aussi bien en basse couche qu'en altitude, à l'exception du segment

[F-G], pour lequel il y a surestimation des données modélisées. Pour les autres segments, la valeur simulée correspond à 76% en moyenne de la valeur observée, ce qui peut également avoir une incidence sur la chimie au sein du modèle, en particulier sur le contenu en eau des aérosols.

Tout comme pour le vol RF17 du Twin-Otter, les figures 4.21 comparent les données météorologiques simulées et mesurées le long de la trajectoire du vol RF15 de l'avion C-130 le 27 avril 2001.

L'avion C-130 a effectué 3 paliers en couche limite (segment [B-C], [D-E] et [F-G]), et un en basse troposphère (segment [G-H]).

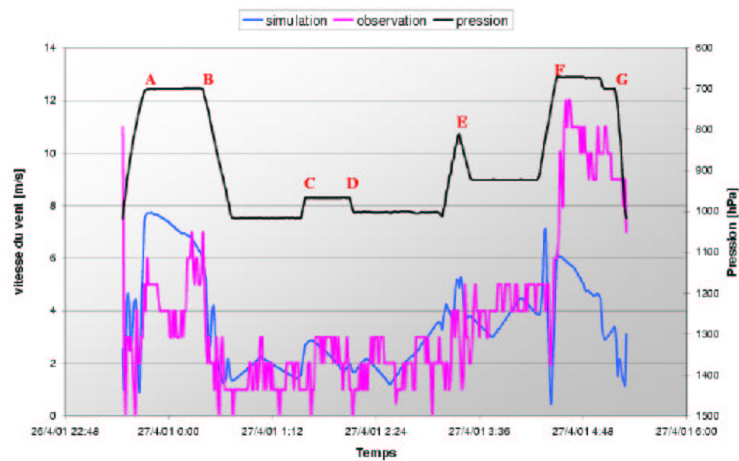
En couche limite, la vitesse du vent est relativement bien simulée par le modèle avec toutefois une légère surestimation par le modèle pour le palier [D-E] : 10 m.s^{-1} comparé à 7.8 m.s^{-1} pour la simulation et les mesures respectivement. Pour le palier [F-G], inversement, le modèle a tendance à sous-estimer la vitesse du vent : $3,1 \text{ m.s}^{-1}$ et $5,2 \text{ m.s}^{-1}$ pour la simulation et les observations respectivement. Pour le segment [G-H], la vitesse du vent est aussi surestimée : 8 m.s^{-1} pour la simulation et $5,2 \text{ m.s}^{-1}$ pour les mesures.

Par ailleurs, en altitude, la vitesse du vent est presque constamment sous estimée avec les données MésoNH. Par contre, les variations temporelles sont bien retranscrites : le modèle simule en moyenne 80% de la valeur observée.

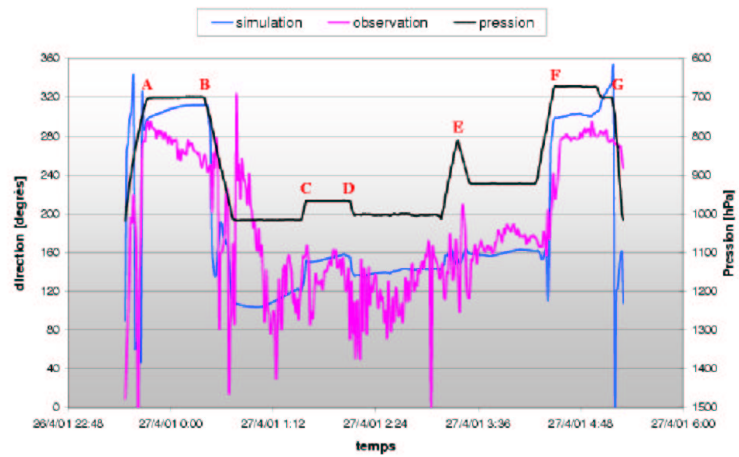
De manière générale, sur toute la trajectoire du vol, les directions de vent sont correctement retranscrites par le modèle : vent de S-SE en couche limite et un vent d'ouest en altitude. Les rapports de mélange en vapeur d'eau ont tendance à être surestimés avec des valeurs simulées supérieures d'environ 25% par rapport aux valeurs observées, mais leur variation temporelle est correcte.

4.3.3 Comparaison des concentrations gazeuses obtenues par mesures et simulations

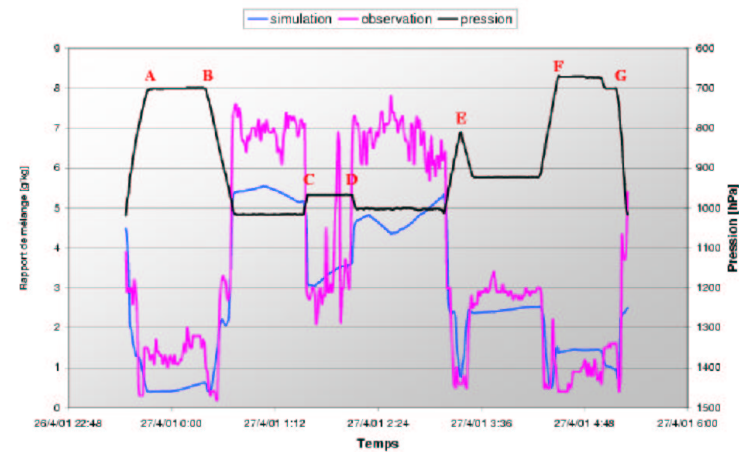
Avant d'étudier les données d'aérosols, il est important de comparer les concentrations gazeuses mesurées et simulées avec MésoNH-C. Toutefois, la campagne ACE-Asia étant



(a) vitesse du vent ($m.s^{-1}$)



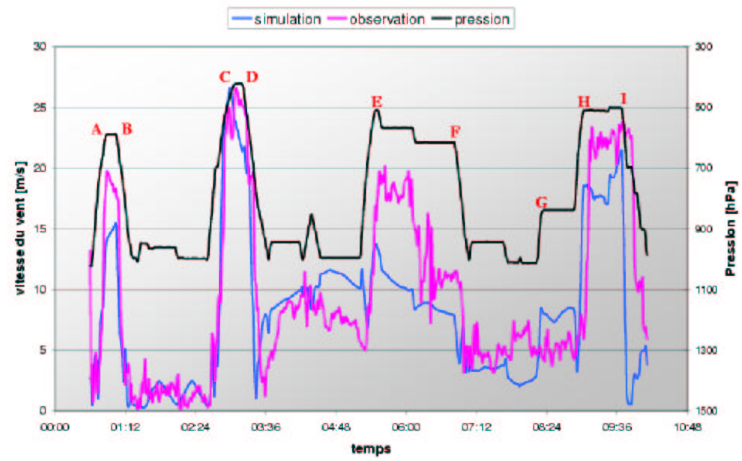
(b) direction du vent (degrès)



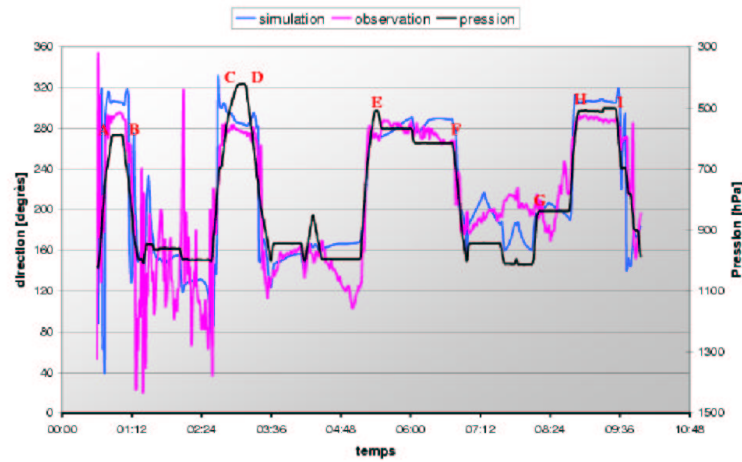
(c) rapport de mélange en vapeur d'eau ($g.kg^{-1}$)

FIG. 4.20 – Comparaison entre les observations (en rose) et les résultats de la simulation (en bleu) obtenus le long de la trajectoire du Twin-Otter le 27 avril 2001. La pression est indiquée (en noir) pour repérer l'altitude de l'avion.

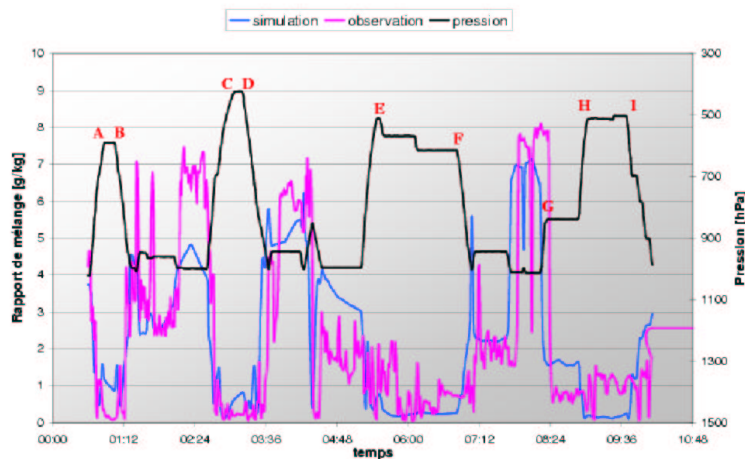
4.3. Etude de l'aérosol carboné durant les vols du 27 avril 2001



(a) vitesse du vent ($m.s^{-1}$)



(b) direction du vent (degrés)



(c) rapport de mélange en vapeur d'eau ($g.kg^{-1}$)

FIG. 4.21 – Comparaison entre les observations (en rose) et les résultats de la simulation (en bleu) obtenus le long de la trajectoire du C-130 le 27 avril 2001. La pression est indiquée (en noir) pour repérer l'altitude de l'avion.

dédiée à l'étude de l'impact radiatif de l'aérosol, très peu d'études sur les concentrations gazeuses ont été menées, ce qui rend délicate la validation de la chimie gazeuse.

Pour la journée du 27 avril 2001, seul le C-130 a effectué des mesures de constituants gazeux. La figure 4.22 représente la comparaison entre les concentrations simulées et mesurées pour le monoxyde de carbone, la figure 4.23 pour l'ozone et la figure 4.24 pour le dioxyde de soufre pour le vol RF15.

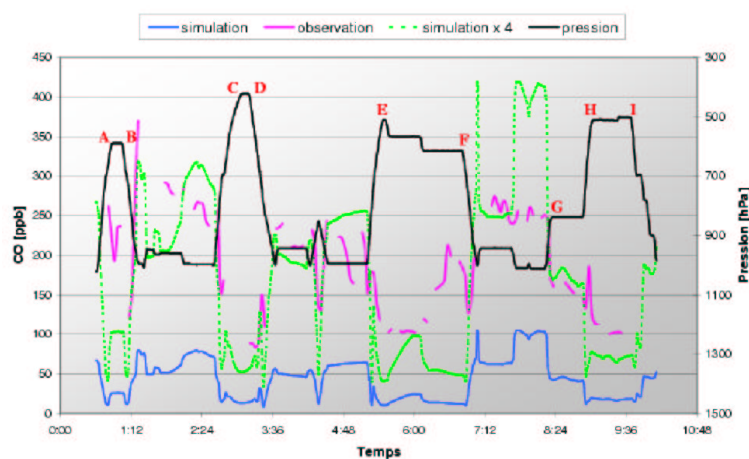


FIG. 4.22 – Comparaison des concentrations de monoxyde de carbone obtenues le long de la trajectoire du C-130 le 27 avril 2001 (vol RF15). Les observations sont représentées en rose et les résultats de la simulation en bleu.

Il est intéressant de noter que les données expérimentales de CO sont entâchées d'une grande incertitude, surtout au niveau des changements d'altitude de l'avion [<http://www.joss.ucar.edu/ace-asia/catalog/reports/c-130/20010427/report.200104271113.c-130.html>], ce qui explique la discontinuité dans les données expérimentales. D'après la figure 4.22, il apparaît clairement que le modèle sous-estime nettement CO. Sur le vol RF15, la concentration moyenne mesurée est de 189,6 ppb, alors que le modèle n'en retranscrit que 42,7 ppb. Bien que la différence soit de l'ordre d'un facteur 4, l'évolution temporelle est bien reproduite.

Selon de précédentes études effectuées avec MésNH-C, initialisées à partir des données MOCAGE, il semblerait que ce problème de sous-estimation des concentrations en monoxyde de carbone provienne des concentrations de fond, dérivées des valeurs du modèle global MOCAGE [Sauvage, 2004]. En effet, si on multiplie par quatre les concentrations si-

mulées (courbe verte de la figure 4.22), la comparaison avec les mesures devient meilleure, même si des différences résident notamment au niveau de la couche limite pour le segment [F-G]. Cette sous-estimation pourrait donc être résolue avec un ajustement des concentrations de fond en sortie de MOCAGE.

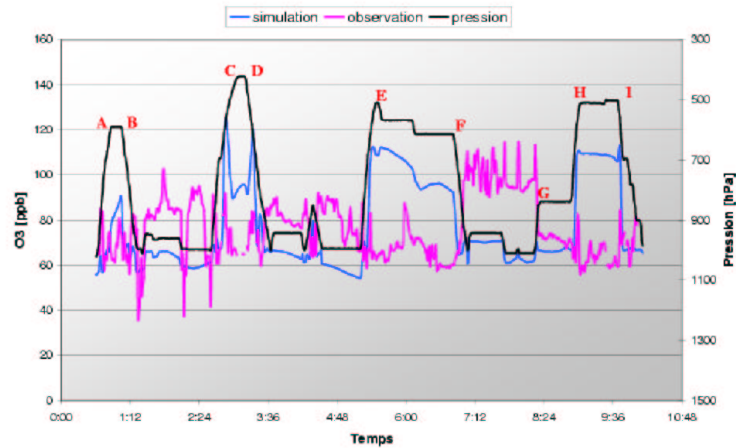


FIG. 4.23 – Comparaison des concentrations d'ozone obtenues le long de la trajectoire du C-130 le 27 avril 2001 (vol RF15). Les observations sont représentées en rose et les résultats de la simulation en bleu.

Même si pour les données d'ozone, la concentration moyenne mesurée le long de la trajectoire de l'avion est bien retranscrite par le modèle : 76,88 ppb simulé comparé à 76,37 ppb mesuré, une différence relativement importante intervient sur les segments [E-F] et [H-I] (mesure en altitude) et le segment [F-G] (mesure dans la couche limite). En effet, le modèle surestime les concentrations d'ozone pour le segment [E-F] : 102 ppb simulés comparés 66 ppb mesurés en moyenne sur le palier. A l'inverse, au niveau du segment [F-G], le modèle sous-estime les concentrations d' O_3 : 66 ppb simulé comparé à 98 ppb mesuré (en moyenne). De nouveau, pour le segment en altitude [H-I], les concentrations simulées sont supérieures à celles mesurées : 108 ppb comparé à 63 ppb.

Au sein du modèle, on observe une corrélation entre les concentrations en ozone et l'altitude, alors que les mesures montrent qu'au contraire les concentrations diminuent avec l'altitude. Sur le palier [F-G] en particulier, les fortes concentrations observées par le C-130 ne sont pas retranscrites par le modèle.

Enfin, le modèle retranscrit de façon satisfaisante les concentrations en SO_2 , avec toutefois une légère surestimation sur la totalité du vol : 1,52 ppb simulé comparé à 0,99 ppb mesuré. La variation temporelle est correcte, mais de même que pour l'ozone, le segment [F-G] n'est pas convenablement reproduit, avec cette fois un forte surestimation des concentrations dans le modèle : 3,3 ppb simulé comparé à 1,1 ppb observé.

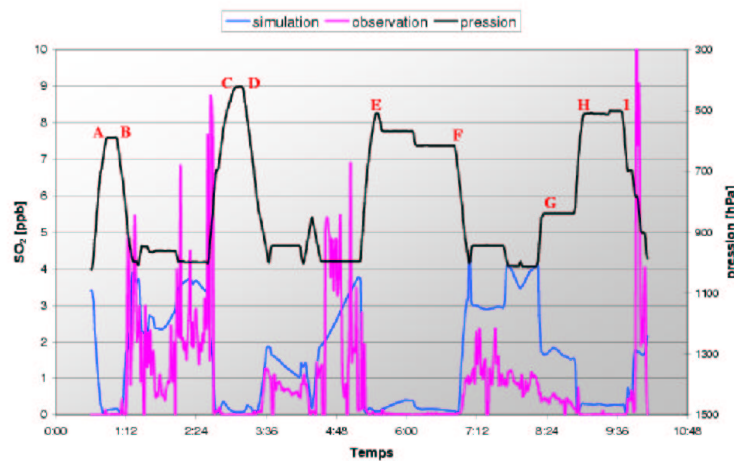


FIG. 4.24 – Comparaison des concentrations de dioxyde de soufre obtenues le long de la trajectoire du C-130 le 27 avril 2001 (vol RF15). Les observations sont représentées en rose et les résultats de la simulation en bleu.

Outre la comparaison satisfaisante entre les concentrations simulées et mesurées de SO_2 , la comparaison des données gazeuses n'est pas concluante. Les comparaisons des données météorologiques étant dans l'ensemble convenables, ce problème ne provient pas d'un mauvais transport. En effet, la couche de pollution traversée par l'avion le long du segment [F-G] est visible sur les concentrations de CO et de SO_2 simulées. Aussi, ce problème peut provenir soit de la chimie de l'ozone dans MésoNH-C, soit d'un champ initial (concentrations de fond provenant de MOCAGE) incorrect (pour O_3 et CO).

4.3.4 Comparaison des concentrations en aérosols obtenues par mesures et modélisation

La comparaison des concentrations de carbone suie (BC) et de carbone organique, incluant à la fois la partie primaire et secondaire (OC_{tot}) mesurées et simulées dans les différentes couches traversées par les avions C-130 et Twin-Otter le 27 avril 2001 est présentée sur les figures 4.25 et 4.26.

• Vol RF15 du C-130

En général sur l'ensemble des mesures effectuées pendant le vol, les concentrations moyennes de BC sont légèrement surestimées par le modèle : $BC_{obs} = 1,79 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ et $BC_{simu} = 2,18 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. Cependant, lorsque l'on examine les concentrations de BC en détail, c'est-à-dire à des altitudes précises, on observe une tendance : BC_{simu} est surestimé dans la couche limite, mais par contre sous-estimé en altitude.

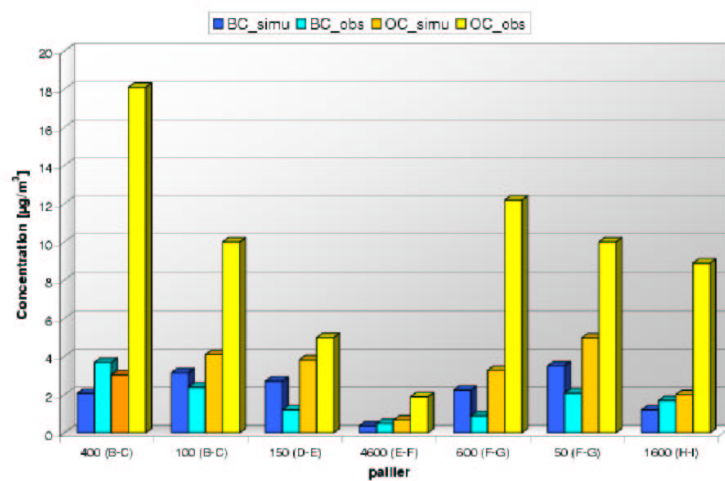


FIG. 4.25 – Comparaison des concentrations de BC et OC mesurées et simulées sur les différents paliers effectués par le C-130 le 27 avril 2001 (vol RF15). Les altitudes (en m) des paliers ont été ajoutés.

Les comparaisons sont moins satisfaisantes pour le carbone organique (OC) : le modèle sous-estime systématiquement les concentrations : en moyenne sur les paliers échantillonnés, les concentrations de OC sont de l'ordre de $9,44 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, alors que les simulations donnent

$3,13 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. Il est important de rappeler que la concentration de OC_{tot} simulée est calculée comme étant la somme de l'aérosol carboné organique primaire OC_p ($2,95 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) et de l'aérosol carboné organique secondaire OC_{sec} ($=\text{SOA}/1,5$) ($0,27 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$). Par exemple, au maximum, les observations en carbone organique sont 6 fois supérieures aux concentrations simulées sur le segment [1-2] (compris dans le palier [B-C]).

• Vol RF17 du Twin-Otter

La concentration de BC moyenne sur la totalité du vol simulée par le modèle est en très bon accord avec les mesures : $\text{BC}_{\text{obs}} = 1,87 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ et $\text{BC}_{\text{simu}} = 1,71 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. Les concentrations mesurées par le Twin-Otter n'ont été échantillonnées qu'en couche limite (pas d'observation en altitude). Deux tendances apparaissent : une bonne concordance entre simulation et mesures dans la couche de pollution, et une surestimation des concentrations simulées par le modèle dans la couche limite marine.

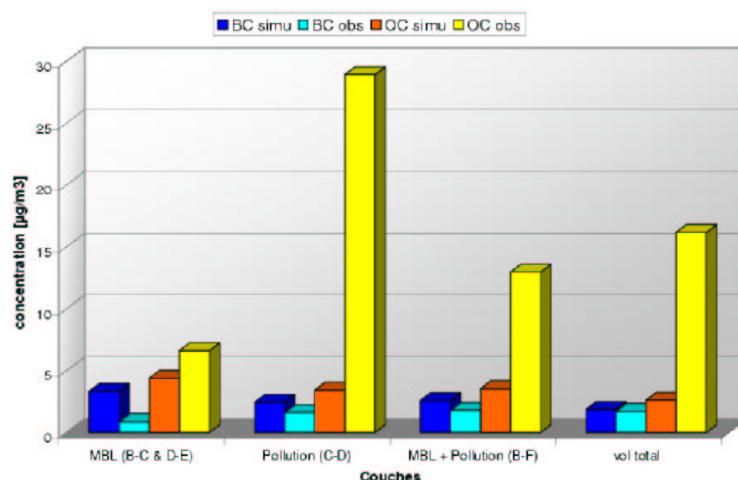


FIG. 4.26 – Comparaison des concentrations de BC et OC mesurées et simulées sur les différents paliers effectués par le Twin-Otter le 27 avril 2001 (vol RF17).

Les concentrations en carbone organique sont aussi très largement sous-estimées par le modèle : $2,62 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ pour OC obtenu par simulation comparé à $16,18 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ pour OC mesuré. Pour le segment [1-2] (palier [C-D]), la différence est aussi très importante entre la simulation et les observations : $28,94 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ pour OC mesuré comparé à $3,44 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$

pour OC simulé (soit un facteur 8).

• **Analyse de la comparaison des deux vols**

La comparaison entre les deux vols accomplis le 27 avril 2001, présente les mêmes tendances : une surestimation du BC en couche limite, et une sous-estimation en altitude (visible sur les données du vol du C-130, seul à avoir échantillonné cette zone). De manière générale, les concentrations simulées de BC sont proches les mesures relevées.

Les résultats de comparaisons obtenus sur les autres paliers effectués par les deux avions sont identiques à celui du segment [1-2] : le modèle surestime toujours les concentrations en BC (et probablement en OC_p) pour la couche limite marine, mais les sous-estime en altitude au dessus des terres (segment [E-F] au dessus de la Corée du Sud, et segment [H-I] au dessus du Japon).

Ce problème de surestimation en couche limite et de sous-estimation en altitude peut avoir deux origines :

- Un temps de spin-up insuffisant qui ne laisserait pas le temps aux émissions de se répartir correctement dans l'atmosphère.
- Un problème d'initialisation des concentrations de fond, lié à la méthode utilisée basée sur les concentrations de monoxyde de carbone et sa répartition géographique. En effet, les concentrations de CO sont sous-estimées par MOCAGE, et donc l'utilisation du rapport BC/CO entraîne une surestimation des concentrations de fond de BC.

On note par contre une sous-estimation permanente des concentrations en carbone organique total, notamment pour le segment [1-2], où les expériences ont mis en évidence la présence d'une pollution importante.

En effet, d'après les travaux de Mader *et al.* (2002) sur les mesures effectuées à bord du Twin-Otter, la couche entre 500 m et 1500 m présente de très fortes concentrations en BC et OC, caractéristiques d'une couche de pollution (avec un coefficient d'Angström $\dot{a} = 1,61$). Comme expliqué au paragraphe 4.2.1, cette couche de pollution avec un rapport TC/BC de 18 provenant du centre de la Chine continentale, serait très fortement influencée par les feux de biomasse et/ou les aérosols organiques secondaires. Mader *et al.*

(2002) a également montré que cette couche de pollution reste confinée aux premiers niveaux, et qu'elle est bien séparée des couches supérieures et inférieures.

Aussi, nous avons tracé sur les figures 4.27 les distributions verticales des concentrations de BC, OC_{tot} et des valeurs de θ_{e} au dessus du segment [1-2].

Le modèle restitue une très faible inversion à 700 m d'altitude visible à 1UTC, en accord avec les observations, mais qui s'est dissipée à 2UTC (figure 4.27a et 4.27b). Par contre, la distribution des concentrations en particules carbonées diminue avec l'altitude, et ne reproduit pas l'effet de cette légère inversion. Les faibles concentrations observées en couche limite marine ne sont pas correctement restituées par le modèle, ainsi que la forte couche de pollution entre 500 et 1500 m (figure 4.27c et 4.27d). Nous allons tenter d'expliquer l'origine de cette mauvaise restitution, sachant que la comparaison des données météorologiques des vols avions montre globalement qu'il y a concordance entre simulation et observation.

En premier lieu, il est important de repérer la différence entre les mesures effectuées par les deux avions sur ce même segment et à la même altitude (le Twin-Otter vol à 967 hPa et le C-130 à 960 hPa) : $BC_{C130} = 3,70 \mu\text{g.m}^{-3}$ et $BC_{TWO} = 1,62 \mu\text{g.m}^{-3}$; $OC_{C130} = 18,10 \mu\text{g.m}^{-3}$ et $OC_{TWO} = 28,94 \mu\text{g.m}^{-3}$. Les techniques d'analyses sont les mêmes dans les deux cas (analyse thermo-optique Sunset), mais les protocoles d'échantillonnage sont différents : dans le cas du C-130, un dénudeur PC-BOSS est ajouté au système de prélèvement, alors qu'une autre technologie est retenue pour le Twin-Otter (dénudeur Caltech). Les observations menées par ces deux vols, supposés semblables, démontrent l'importante incertitude qui réside encore dans les techniques de mesures de l'aérosol carboné.

Une deuxième incertitude concerne la restitution par le modèle de l'origine des masses d'air et leur transport. En effet, la couche de pollution du segment [1-2] a été identifiée durant la campagne de mesure comme provenant des feux de biomasse de la Chine continentale.

Aussi, nous avons effectué des rétro-trajectoires le long du segment [1-2] pour étudier la provenance des masses d'air au sein du modèle MésoNH-C. Les résultats de ces rétro-trajectoires (non présentés ici) indiquent qu'à l'altitude 400 m, la masse d'air échantillonnée

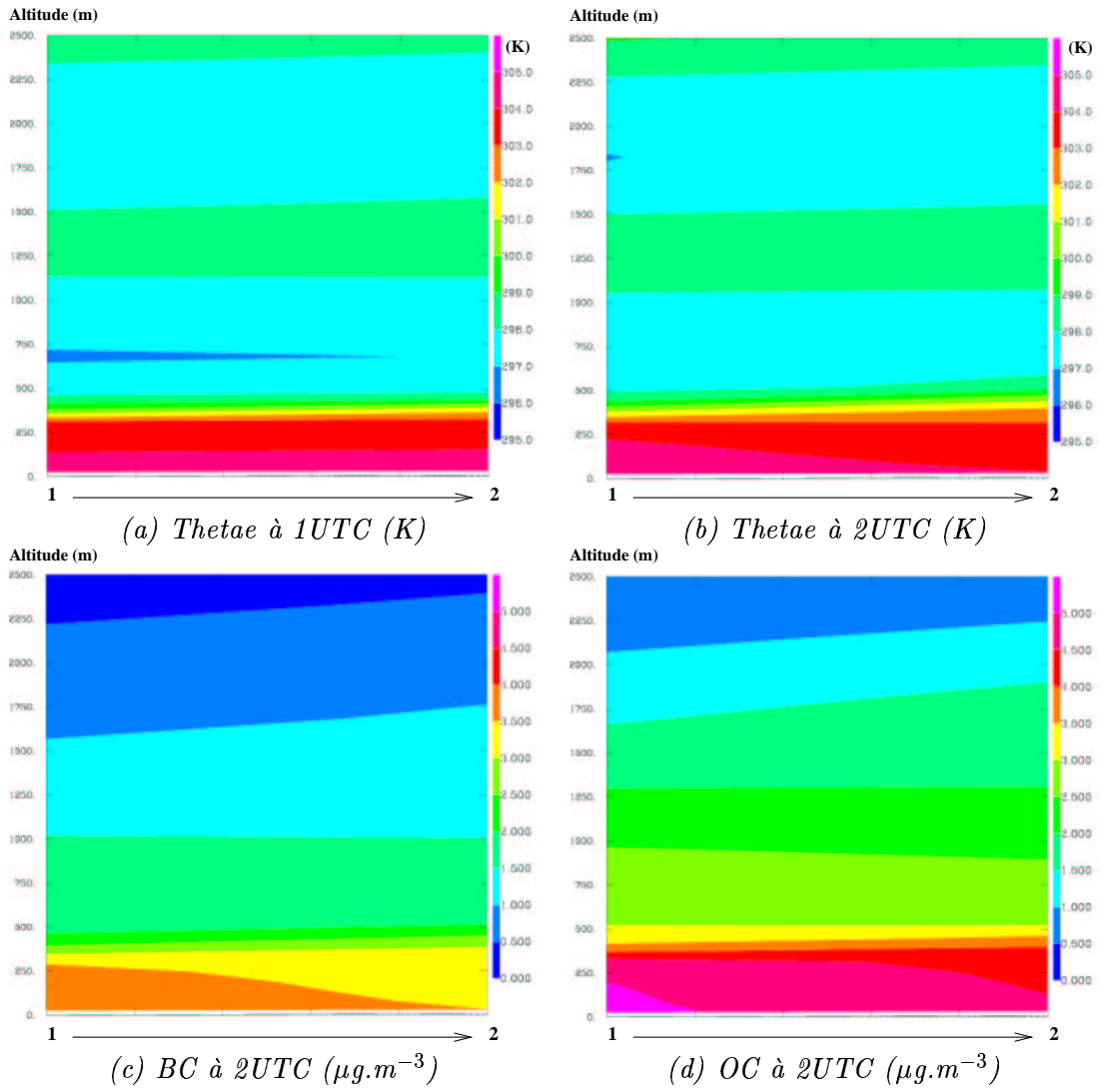


FIG. 4.27 – Coupe verticale le long du segment [1-2].

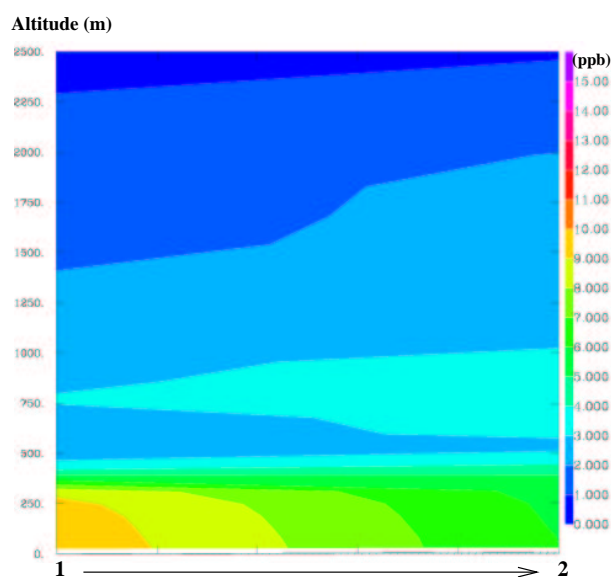


FIG. 4.28 – Concentration en CO_{feux} sur la verticale du segment [1-2], le 27 avril 2001 à 1UTC.

par l'avion au sein du modèle prend sa source au sud de la Corée du Nord, laquelle n'est pas une zone d'émission de feux de biomasse pendant notre période d'étude (26 et 27 avril). Toutefois, comme le montre la figure 4.28 qui représente les concentrations CO_{feux} le long du segment [1-2] le 27 avril, une influence des émissions de feux sur la zone d'échantillonnage des avions C-130 et Twin-Otter est observée. Ceci est confirmé par les rétro-trajectoires effectuées à 2000 m (au dessus du segment [1-2]) qui indiquent une masse d'air originaire du nord de la Chine en Mandchourie, zone de feux. Ces feux ont été transportés via un flux d'ouest qui a entraîné les émissions de feux sur l'océan Pacifique au début de la journée du 26 avril. Le 27 avril, ils sont redistribués au niveau de la mer du Japon par la circulation anticyclonique centrée sur le Japon.

La masse d'air observée par les avions Twin-Otter et C-130 le 27 avril sur le segment [1-2], fortement influencée par les feux de biomasse comme le préconisait les travaux de Mader *et al.* (2002) et Merrill and Kim (2004), ne semble donc pas être correctement restituée par le modèle. Même si une influence des feux du nord de l'Asie a été observée avec l'étude du traceur CO_{feux} au sein du modèle, cette influence ne suffit pas pour restituer des concentrations de OC comparables aux mesures. Ceci peut être attribué, entre autre, à un temps de spin-up trop court (une journée), aux vents trop faibles en altitude (cf

paragraphe 4.3.2), ou bien encore à des problèmes d'initialisation des conditions aux limites.

4.4 Comparaison des concentrations de BC et OC obtenues par mesures et simulations avec le Twin-Otter pour les vols des 26, 27 et 28 avril 2001

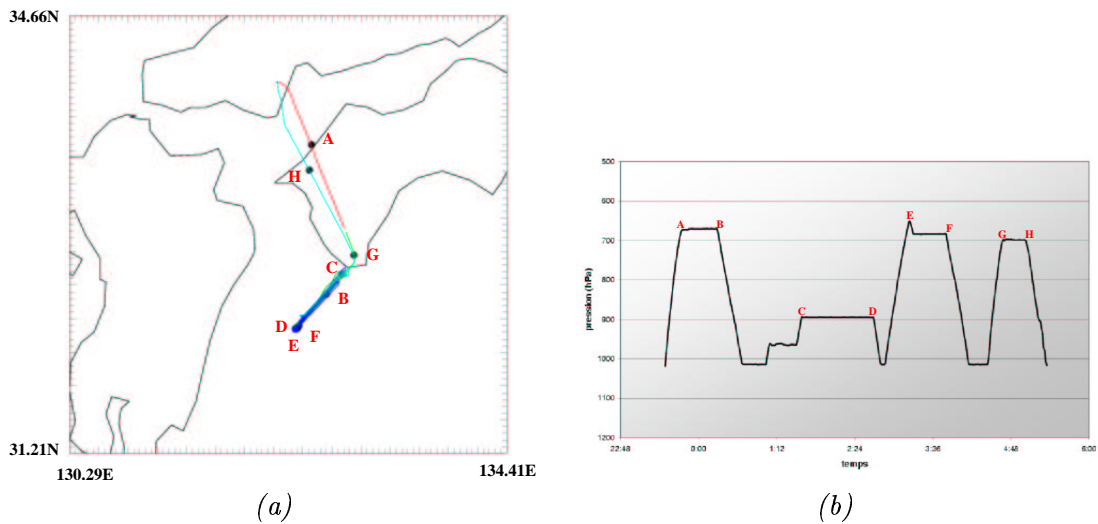


FIG. 4.29 – (a) Trajectoire du Twin-Otter durant le vol RF16 le 26 avril 2001. (b) Altitude (en hPa) du Twin-Otter durant le vol RF16 le 26 avril 2001.

L'étude présentée au paragraphe précédent a montré qu'il existait une très forte discordance entre les concentrations d'aérosols organiques mesurées et simulées, mais que néanmoins, un bon accord existait sur les concentrations de BC. Nous allons ici comparer les concentrations d'aérosols carbonés mesurées au cours des trois vols effectués par le Twin-Otter les 26, 27 et 28 avril 2001, pour voir si les conclusions obtenues pour le vol RF17 du Twin-Otter et RF15 du C-130 sont généralisables à l'ensemble de notre période d'étude.

L'avion Twin-Otter a effectué un vol (RF16) au dessus du Japon et de l'océan Pacifique au cours de la journée du 26 avril 2001. Le Twin-Otter a décollé de la base d'Iwakumi à 23:29 UTC le 25 avril et puis a survolé l'île de Shikoku à une altitude de 670 hPa jusqu'à

00:17 UTC le 26 avril (segment [A-B]). Il a ensuite réalisé deux paliers au dessus de l'océan Pacifique : le segment [C-D] à l'altitude de 895 hPa où il échantillonne la couche limite marine et le segment [E-F] à l'altitude de 684 hPa. L'avion a survolé de nouveau l'île de Shikoku à 700 hPa entre 04:42 UTC et 05:02 UTC pour un retour à Iwakuni à 05:21 UTC.

Le 27 avril 2001, le vol RF17 du Twin-Otter a survolé la mer du Japon. La description du plan de vol est présentée dans le paragraphe 4.3.1.

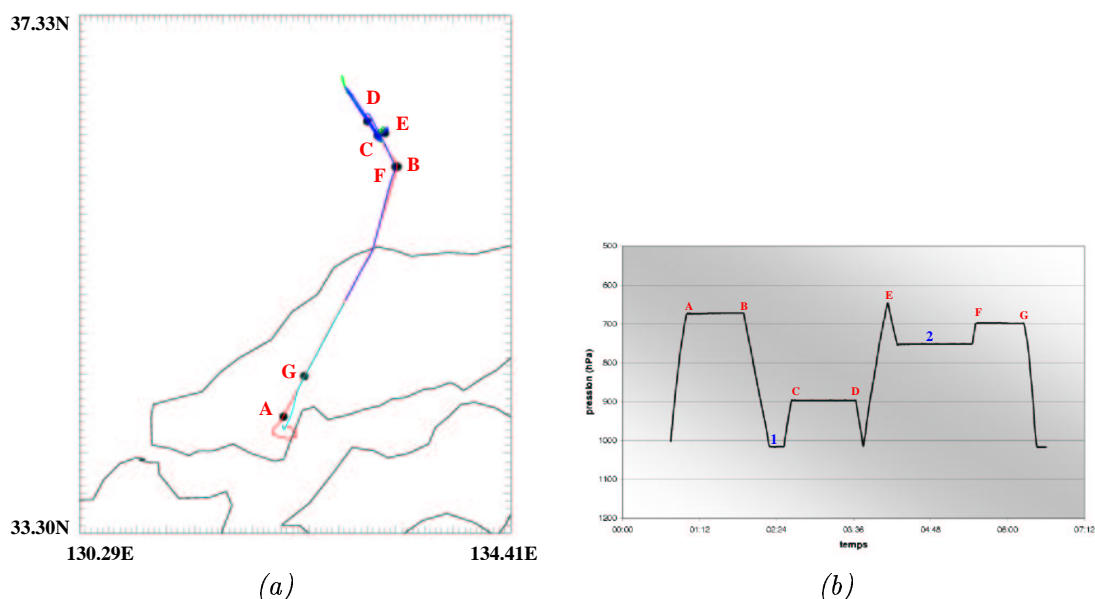


FIG. 4.30 – (a) Trajectoire du Twin-Otter durant le vol RF18 le 28 avril 2001. (b) Altitude (en hPa) du Twin-Otter durant le vol RF18 le 28 avril 2001.

Le 28 avril 2001, le Twin-Otter réalise un vol dans la partie nord du Japon au niveau de la mer du Japon (vol RF18). Il décolle de la base d'Iwakuni à 00:45 UTC et effectue un palier à 672 hPa en survolant Honshu (île principale du Japon) (segment [A-B]). Il réalise ensuite plusieurs paliers au dessus de la mer du Japon entre 02:38 UTC et 05:32 UTC : un palier à 897 hPa dans la couche limite marine (segment [B-C]), et un palier à 752 hPa (segment [E-F]). Il retourne vers la base d'Iwakuni et survole de nouveau Honshu en effectuant un palier à 700 hPa (segment [F-G]) pour atterrir à 06:36 UTC.

Les figures 4.31a et 4.31b présentent les concentrations simulées et mesurées pour les

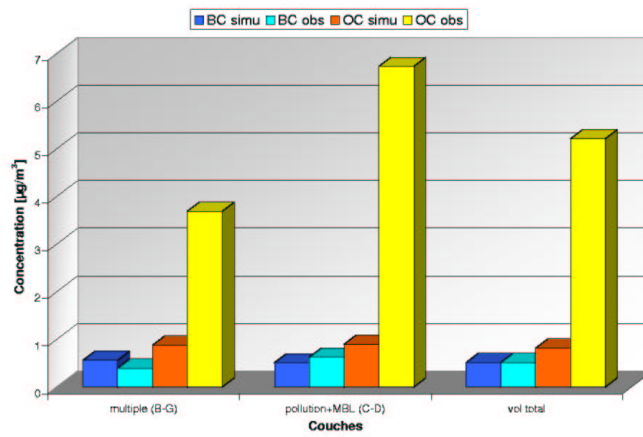
vols du Twin-Otter du 26 avril et 28 avril respectivement. La comparaison de ces jeux de données est semblable pour les deux vols :

- les concentrations de BC sont bien retranscrites par le modèle sur la totalité du vol
- pour la couche multiple (d’origines variées), BC est légèrement surestimé par le modèle, alors qu’il est sous-estimé pour la couche de pollution.
- les concentrations de OC sont toujours sous-estimées par MésoNH-C-ORISAM, avec toutefois des différences moins importantes pour le vol RF18 (le 28 avril).

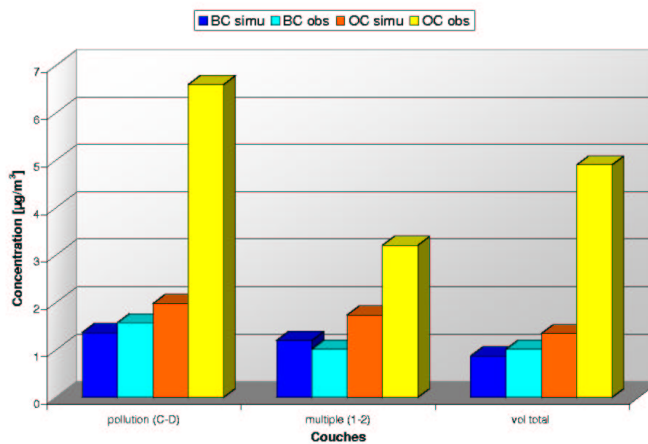
La comparaison des concentrations de BC simulées entre les 3 vols du Twin-Otter indique une bonne restitution par le modèle sur la totalité des vols : BC simulé est de l’ordre de $0,51 \mu\text{g.m}^{-3}$, $1,87 \mu\text{g.m}^{-3}$, $0,88 \mu\text{g.m}^{-3}$ pour les 26, 27 et 28 avril alors que BC observé est de $0,52 \mu\text{g.m}^{-3}$, $1,71 \mu\text{g.m}^{-3}$ et $1,02 \mu\text{g.m}^{-3}$. Par contre, pour le vol RF17, les concentrations sont toujours légèrement surestimées, notamment dans la couche limite marine. Le 26 avril, l’anticyclone est centré sur la mer de Chine entre la Chine et la Corée du Sud : le mouvement anticyclonique engendré, balaie la couche de pollution sur le continent et la Corée, et la transporte sur la mer de Chine. Au sud du Japon, zone d’échantillonnage du Twin-Otter ce jour là, la masse d’air provient du Japon et surtout de l’océan Pacifique. De ce fait, des concentrations plus faibles sont observées le 26 avril en BC, comparé aux autres jours. Le 27 avril, le Twin-Otter se situe au cœur de la circulation anticyclonique. La masse d’air polluée, issue des feux de végétation, présente au dessus de la Corée et de la mer de Chine le 26 avril s’est déplacée avec l’anticyclone le 27 avril et est donc échantillonnée par l’avion. De plus, la dépression présente au nord-est de la Mongolie a transporté les polluants sur le nord du Pacifique, qui ont ensuite été entraînés par le mouvement anticyclonique. Le 28 avril, l’influence des feux est moins importante, du fait de la fusion des deux anticyclones (celui de l’île Sakhaline et du Japon), ce qui met fin à l’évolution de la masse d’air vers le sud.

Le suivi des concentrations en CO_{feux} indique que la masse d’air échantillonnée par le Twin-Otter le 26 avril ne révèle aucune influence des émissions de feux, contrairement au 27 et 28 avril.

D’après la relative bonne restitution des concentrations de BC pour la période d’étude,



(a)



(b)

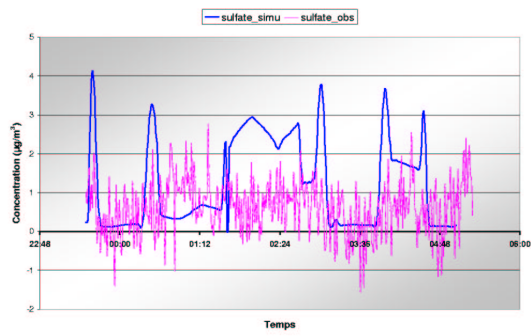
FIG. 4.31 – Comparaison des concentrations de BC et OC mesurées et simulées sur les différents paliers effectués par le Twin-Otter (a) pour le 26 avril 2001 (vol RF16) et (b) pour le 28 avril (vol RF18).

la différence entre simulation et observation pour les concentrations de OC est donc imputée à la non formation de SOA. Ceci peut être dû au module aérosol ORISAM, qui a cependant bien pris en compte la formation de l'aérosol secondaire sur d'autres études [Bessagnet *et al.*, 2004; Cousin *et al.*, 2005; Lioussé *et al.*, 2005], ou à un problème lié à la chimie gazeuse. Des tests de sensibilité pour expliquer cette non-formation seront présentés au chapitre 5.

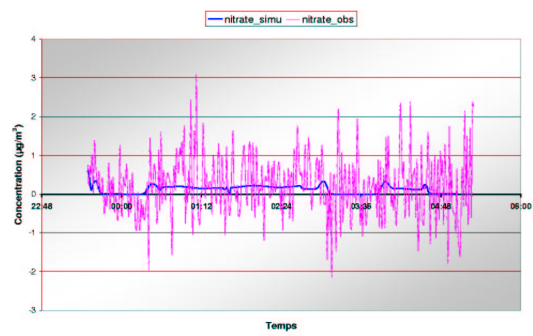
Les figures 4.32 présentent l'évolution des concentrations en sulfate et nitrate, mesurées et simulées pour les trois vols du Twin-Otter. Sur les trois journées, le modèle retranscrit correctement l'évolution temporelle. Toutefois, les sulfates sont toujours surestimés par le modèle, en particulier pour le vol du 27 avril, jour où les concentrations en BC sont également surestimées le long de tous les paliers effectués par le Twin-Otter dans MésoNH-C-ORISAM. Cependant, ce même jour, les concentrations de SO₂ simulées concordent avec celles mesurées à bord du C-130. Au cours du vol RF17, les concentrations en nitrate sont également surestimées, ce qui n'est pas le cas pour les vols RF16 et RF18.

Ce résultat obtenu pour les sulfates est surprenant. En effet, dans le cadre de la campagne de mesure ESCOMPTE [Cachier *et al.*, 2005], l'étude effectuée par Cousin *et al.* (2005) en conditions anticycloniques sèches, indique une sous-estimation permanente des concentrations de sulfate simulées, liée à la sous-estimation de l'humidité relative et aussi aux émissions primaires de SO₄ inexistantes au sein du modèle MésoNH-C.

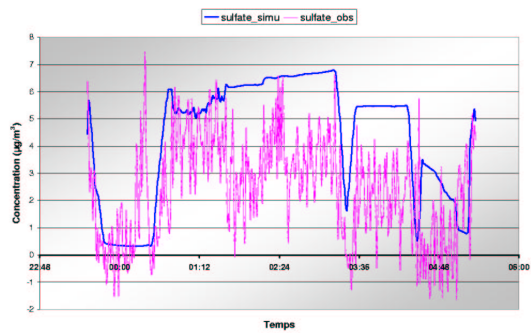
La comparaison des concentrations en nitrates entre valeurs simulées et observées est en accord avec les résultats obtenus sur ESCOMPTE (excepté pour le vol RF17). La sous-estimation des concentrations en nitrate provient également de la sous-estimation de l'humidité relative dans le modèle, qui induit une condensation réduite des espèces secondaires. De plus, l'absence de poussières désertiques et de sels marins accentue ce résultat. En effet, Cachier *et al.* (2005) a montré que les nitrates sont surtout répartis au sein du mode grossier, et qu'ils sont probablement attachés à ces poussières et sels marins.



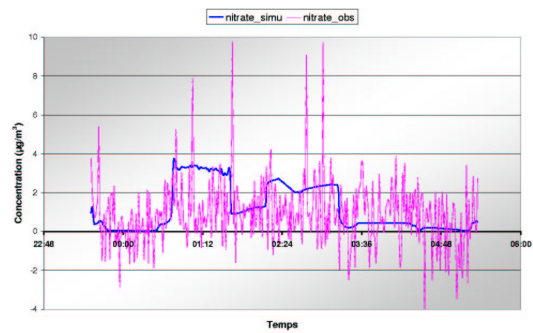
(a) sulfate le 26/04/01



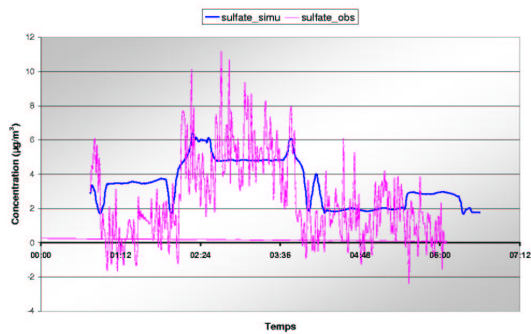
(b) nitrate le 26/04/01



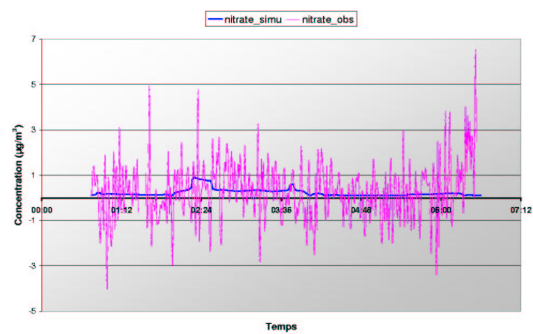
(c) sulfate le 27/04/01



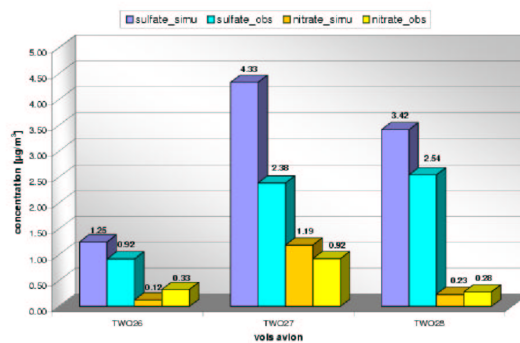
(d) nitrate le 27/04/01



(e) sulfate le 28/04/01



(f) nitrate le 28/04/01



(g) comparaison des concentration en nitrate et sulfate des 3 vols

FIG. 4.32 – Evolution des concentrations simulées et mesurées en sulfate et nitrate pour les vols du Twin-Otter du 26, 27 et 28 avril 2001.

4.5 Comparaison des concentrations d'aérosols aux stations de mesures

Les figures 4.33 présentent les concentrations de BC et OC_{tot} mesurées et simulées les 26, 27 et 28 avril 2001 sur 4 îles du Japon (Sado, Rishiri, Chichi-jima et Hachijo).

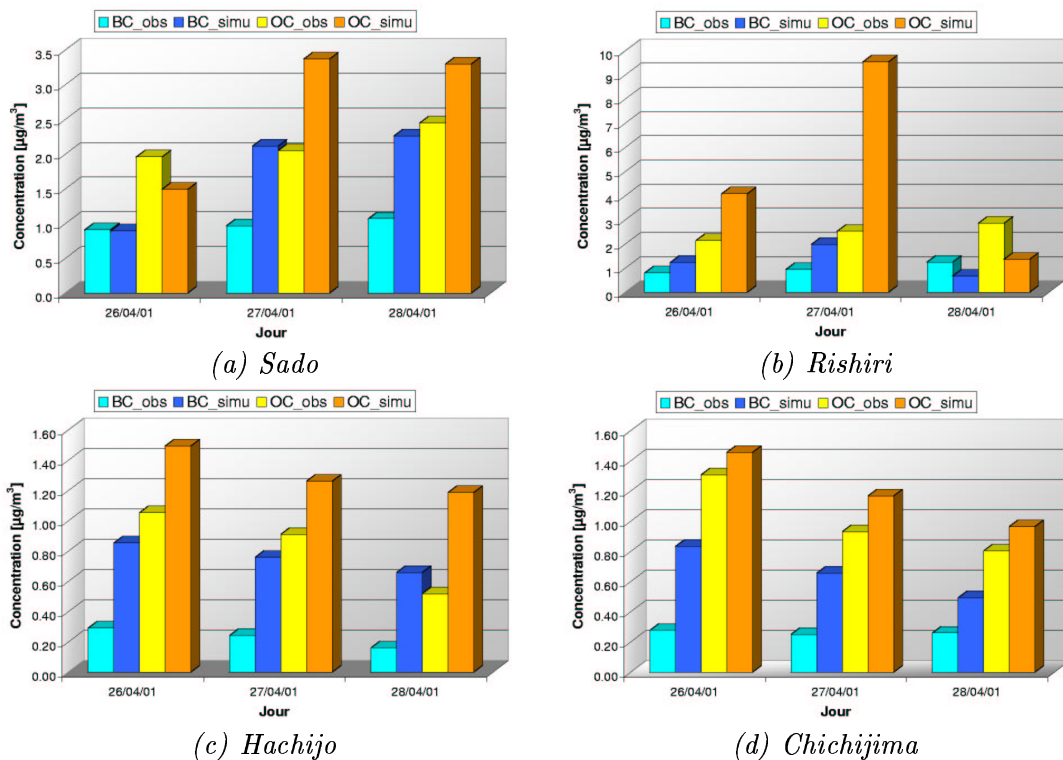


FIG. 4.33 – Concentrations simulées et mesurées de BC et OC les 26, 27 et 28 avril 2001 à (a) Sado, (b) Rishiri, (c) Hachijo, et (d) Chichijima.

Sado et Rishiri se situent au nord de Honshu (île principale du Japon) et Hachijo et Chichi-jima au sud (voir figure 4.34).

De manière générale, les concentrations en BC et OC_{tot} sont surestimées par le modèle aux 4 sites de mesures. Par contre, il y a généralement similitude entre les variations temporelles. Les concentrations simulées et mesurées diminuent au cours des trois jours aux deux stations du sud (Hachijo et Chichi-jima), alors qu'elles augmentent sur Sado et Rishiri. Notons cependant un discordance dans ces tendances à Rishiri le 28 avril : les

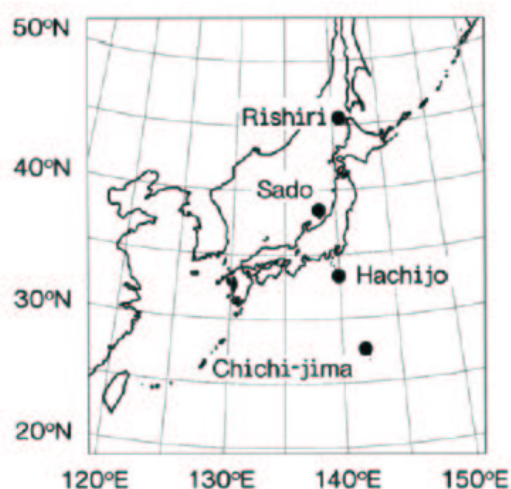


FIG. 4.34 – Localisation des sites de mesure du Japon pendant ACE-Asia (extrait de Matsumoto *et al.*, 2003).

concentrations simulées diminuent (alors que celles mesurées augmentent).

D'après Matsumoto *et al.* (2003), il existe effectivement deux comportements différents dans la variation temporelle des concentrations en $BC_{2.5}$ et $OC_{2.5}$ mesurées aux stations de Hachijo et Chichi-jima d'une part, et de Rishiri et Sado d'autre part. L'explication peut venir du transport des masses d'air qui est différent de l'est du continent asiatique vers le nord du Pacifique ouest, et de l'est du continent asiatique vers le sud du Pacifique ouest. Ces transports météorologiques sont donc bien retranscrits par le modèle. Il est important de rappeler que trois processus de transport de polluants, à l'échelle synoptique, ont été identifiés sur cette zone : les fronts froids, la mousson d'hiver et les circulations anticycloniques. Selon Matsumoto *et al.* (2003), c'est la circulation anticyclonique qui, autour du 27 avril 2001, transporte les polluants sur Rishiri et Sado, ce qui est bien simulé par MésoNH-C.

Cette circulation, dont le cœur se déplace de la mer de Chine (le 26 avril) vers l'est du Japon (le 28 avril) (voir figure 4.1 du paragraphe 4.2.2), engendre également des concentrations plus faibles sur les îles de Hachijo et Chichi-jima, comparées à celles de Sado et Rishiri. En effet, entre le 26 et le 27 avril, le cœur de l'anticyclone s'est déplacé de 800 km vers l'est, balayant ainsi la pollution présente au niveau de Shanghai et de la Corée vers l'océan Pacifique. Le 27 avril, l'anticyclone gonfle et sa branche nord qui part de Pékin

4.5. Comparaison des concentrations d'aérosols aux stations de mesures

(voir figure 4.35) renforce ce recyclage. Les deux îles du nord, Rishiri et Sado, sont donc alimentées par ce système, ce qui explique des concentrations de BC et OC_{tot} plus fortes. Au contraire, sur les deux îles au sud de Honshu, cette circulation entraîne un air marin plus propre, c'est pourquoi les concentrations en BC et OC_{tot} sont plus faibles.

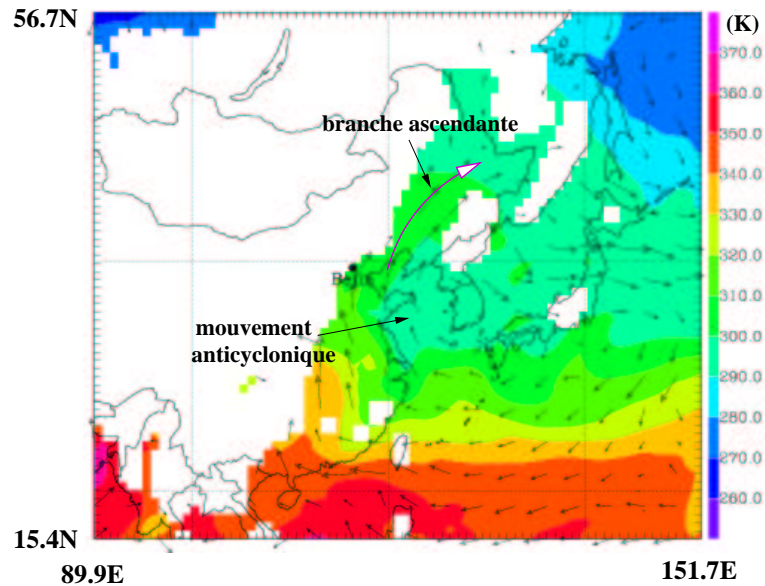


FIG. 4.35 – Θ_{e} à 950 hPa (en K) le 27 avril 2001 à 00 UTC. Les flèches représentent la direction du vent à 950 hPa

Les figures 4.36 et 4.37 présentent l'évolution des concentrations simulées de BC et OC_{tot} respectivement à 12 UTC et 24 UTC les 26, 27 et 28 avril 2001. Sur ces figures, les zones de fortes pollutions sont bien retranscrites, soulignant l'influence de plusieurs types de sources : émissions des feux de biomasse au nord du domaine et émissions anthropiques au niveau de Shangai, Pékin et la Corée du Sud. L'évolution de ces concentrations permet d'étudier le transport des particules aux quatre sites de mesures du Japon.

Chichi-jima et Hachijo sont pendant ces trois jours sous influence océanique. La comparaison entre les mesures et les simulations montrent une surestimation des concentrations par le modèle. Ceci est en accord avec les études menées sur les vols avion, le modèle surestimant toujours les concentrations en couche limite marine. Cela est probablement

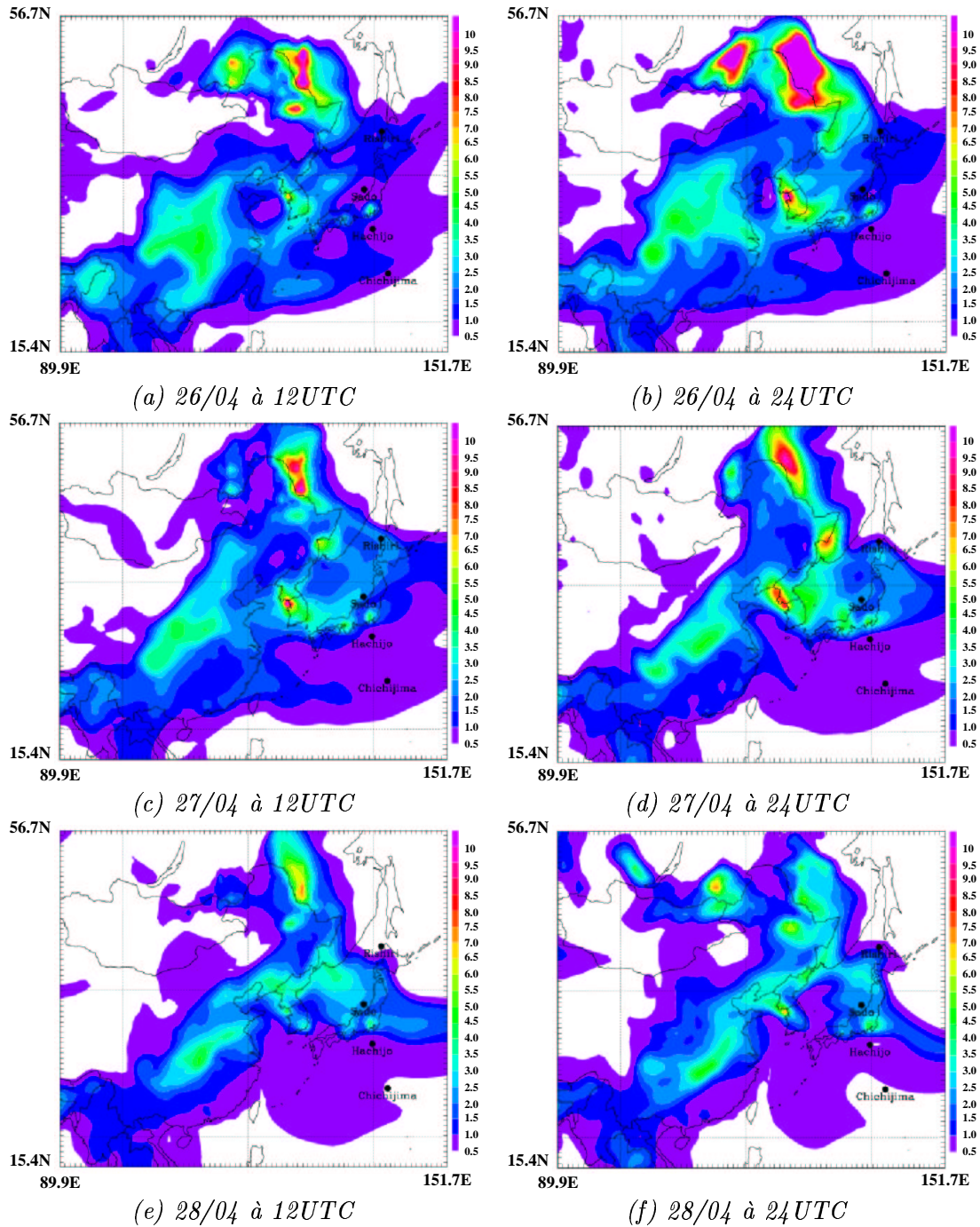


FIG. 4.36 – Concentration de BC (en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) les 26, 27 et 28 avril 2001 à 12 UTC et 24 UTC.

4.5. Comparaison des concentrations d'aérosols aux stations de mesures

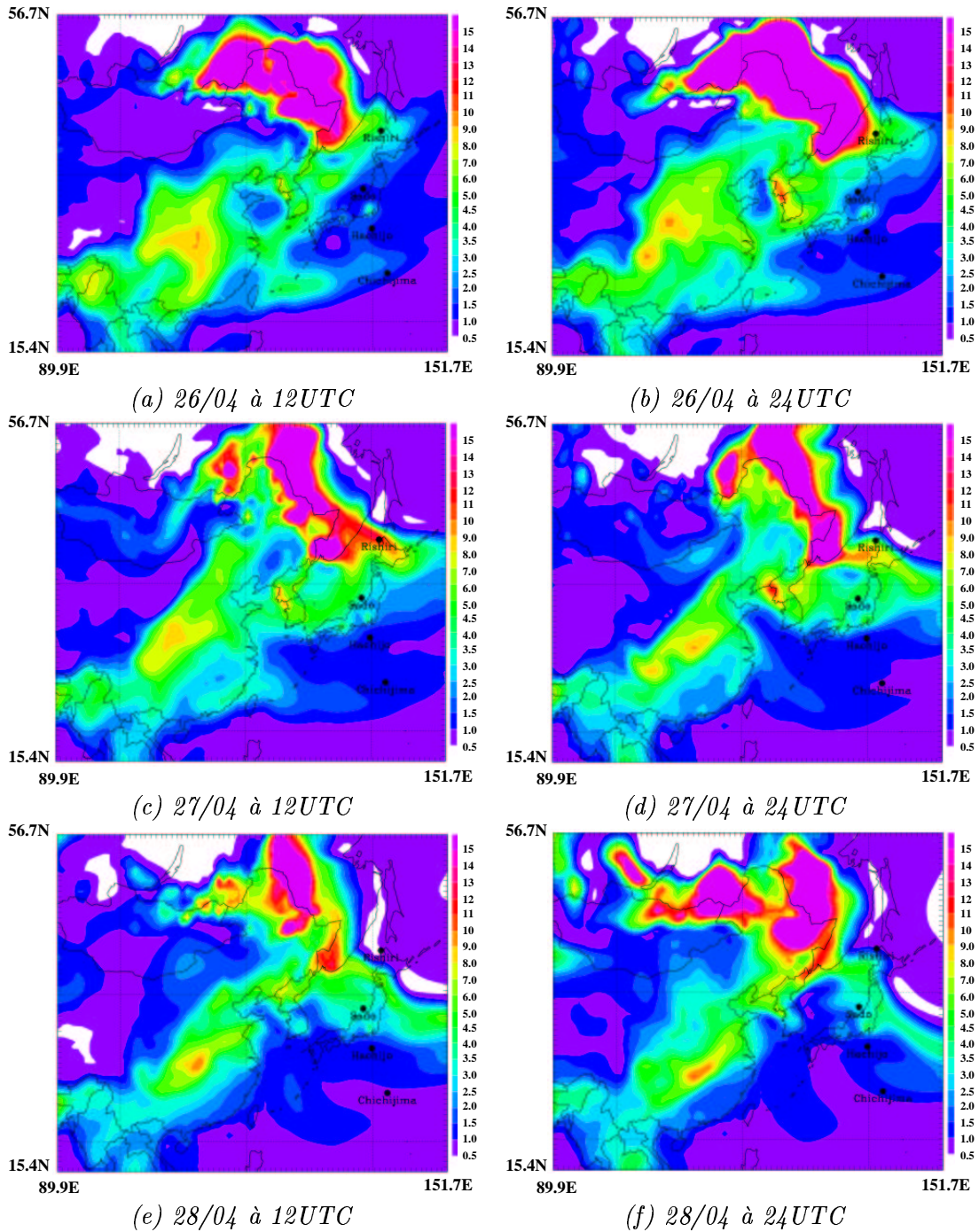
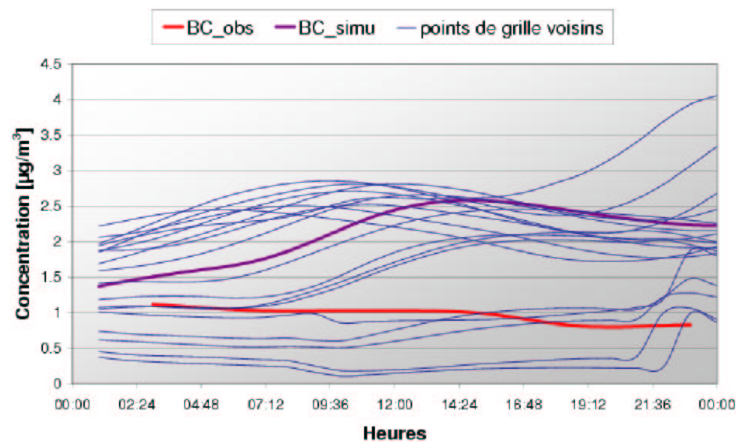


FIG. 4.37 – Concentration de OC (en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) les 26, 27 et 28 avril 2001 à 12 UTC et 24 UTC.

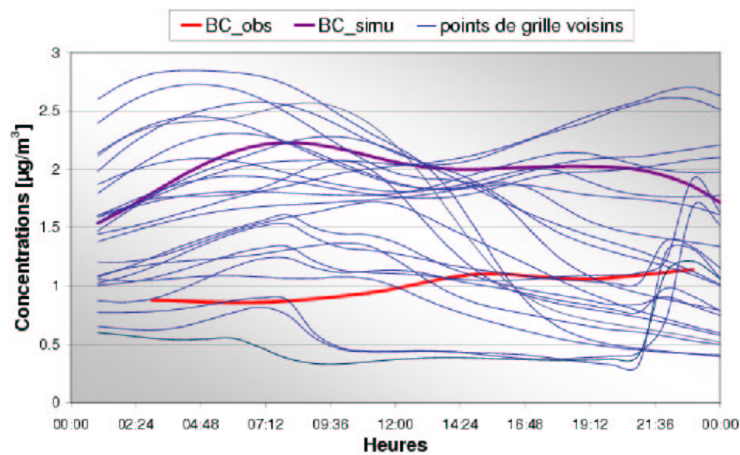
lié à l'initialisation des concentrations de fond en aérosols (BC et OC_p) et aux conditions aux limites. En effet, les concentrations utilisées pour initialiser les particules carbonées sont obtenues à partir des concentrations mesurées à toutes les stations de la campagne ACE-Asia. Or, pour la plupart, ces stations sont situées dans des zones polluées, non représentatives de conditions typiques pour des zones aussi reculées que Chichi-jima et Hachijo, ce qui peut en partie expliquer la surestimation trouvée dans nos simulations.

Aussi, nous nous focaliserons sur l'analyse des concentrations à Sado et Rishiri, situées en zone polluée. Sado est sous l'influence de la pollution de la Corée jusqu'au 27 avril, transportée par la branche nord de l'anticyclone. A partir du 27 avril 18UTC, l'anticyclone s'est déplacé et la masse d'air qui arrive sur Sado provient du sud, Sado étant placé sur la branche ascendante du mouvement anticyclonique. Le 27 avril à 24UTC, Sado se trouve sous l'influence de la pollution de Corée à laquelle s'ajoute la re-circulation du Japon, ce qui explique l'augmentation des concentrations, à la fois observées et modélisées. Les concentrations de BC mesurées et simulées sont en concordance le 26 avril ($BC_{obs} = 0.91 \mu\text{g.m}^{-3}$ et $BC_{simu} = 0.89 \mu\text{g.m}^{-3}$). Dans ce cas, les concentrations d'OC simulées sont légèrement sous-estimées ($1.49 \mu\text{g.m}^{-3}$ simulé comparé à 1.96 mesuré), en raison de l'insuffisance d'aérosols organiques secondaires. Par contre, les 27 et 28 avril, le modèle surestime les concentrations de BC et OC par rapport aux observations. Au cours de ces deux derniers jours, la masse d'air provient du sud. Le Japon est une île au relief important, et dans le cadre d'une circulation comme celle des 27 et le 28 avril, Sado peut être sous l'influence d'un effet orographique, qui tend à diminuer les concentrations sur la côte de l'île d'Honshu. La résolution du modèle étant de $75 \text{ km} \times 75 \text{ km}$, l'étude des concentrations en un point de mesure aussi précis qu'une station sol est délicate. Aussi, la figure 4.38a présente les concentrations de BC simulées sur les 24 points de grille centrés sur Sado, le 27 avril 2001. Il apparaît que la valeur de BC observée est encadrée par les concentrations simulées au niveau des points de grille centrées sur Sado. Les concentrations de BC simulées, concordant avec celles de BC mesurées, sont observées sur les points de grille situés à l'est de Sado, qui sont sous l'influence de l'effet orographique dans MésoNH-C.

4.5. Comparaison des concentrations d'aérosols aux stations de mesures



(a) BC le 27 avril à Sado



(b) BC le 27 avril à Rishiri

FIG. 4.38 – Concentrations de BC (en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) à (a) Sado et (b) Rishiri le 27 avril mesurées et simulées. Pour la simulation, les lignes bleues représentent les concentrations sur les 24 points de grille autour de Sado et Rishiri, et la ligne violette, les concentrations sur le point de grille centré sur Sado et Rishiri

Rishiri est sous influence continentale le 26 avril et le 27 jusqu'à 18UTC. Le 27 avril, la comparaison entre les observations et la simulation présente une différence importante, notamment sur les concentrations en carbone organique, qui sont étonnamment fortes comparées aux valeurs précédemment simulées sur les autres sites et le long des trajectoires des vols avion. Rishiri se situe ce jour là entre l'anticyclone centré sur l'île

de Sakhaline, qui entraîne un air pollué provenant des feux de biomasse présent sur la Mandchourie et le nord-est de la Mongolie, et la dépression du nord-est du Pacifique, qui entraîne un air océanique propre. Les fortes concentrations en OC simulées sont la signature de concentrations de feux, alors que les concentrations en BC observées sont plutôt caractéristiques d'un air propre. Comme pour l'étude des concentrations de BC obtenues à Sado, la figure 4.38b représente les concentrations de BC simulées sur les 24 points de grille centrés sur Rishiri. De nouveau, les concentrations observées sont encadrées par les concentrations simulées sur les points de grille juxtaposés à Rishiri. Mais le décalage d'un ou deux points de grille de la localisation de Rishiri au sein du modèle change totalement les concentrations, restituant des valeurs en accord avec les données mesurées, Rishiri étant situé au milieu de deux systèmes antagonistes, l'un transportant une masse d'air propre et l'autre une masse d'air polluée.

Il est intéressant de noter que de nouveau, le modèle sous-estime les concentrations le 28 avril. Rishiri est sous un flux de N-NE qui s'intensifie au cours de la journée. Ce flux entraîne un air propre marin, qui est sous-estimé par le modèle. Cette masse d'air provient de l'extérieur du domaine, et la sous-estimation du modèle, en contradiction avec les résultats précédents (surestimations dans le cas de masse d'air océanique) soulève un problème lié aux conditions aux limites des concentrations en aérosols.

4.6 Conclusion

La méthode des rétrotrajectoires, développée par Gheusi and Stein (2002), nous a permis d'étudier le transport des composés émis par les feux de végétation depuis leur zone d'émission jusqu'à Pékin, et de mettre en évidence plusieurs voies de transports privilégiées sur notre zone d'étude : une voie de transport en surface et une voie de transport en altitude par les systèmes frontaux. Les résultats obtenus sont corroborés par les travaux de Wang *et al.* (2004) sur les poussières désertiques. Toutefois, une étude plus approfondie serait nécessaire, notamment avec des mesures de CO et d'aérosols carbonés afin de valider ces premiers résultats qualitatifs.

L'étude de l'évolution des concentrations lors du transport indique que les systèmes frontaux sont des processus aussi efficaces pour transporter les particules carbonées que pour les composés gazeux. Or d'après Merrill and Kim (2004), les particules sont lessivées par les précipitations associées aux fronts, et l'efficacité de transport par les fronts est donc moindre pour les aérosols. Par la suite, il serait intéressant d'intégrer les processus de dépôt humide au sein de MésoNH-C-ORISAM, processus très importants dans la représentation de la chimie particulaire.

La comparaison entre simulations et observations pour les vols du Twin-Otter les 26, 27 et 28 avril 2001, et du C-130 le 27 avril 2001 montre une bonne retranscription de la dynamique sur la zone d'étude. Par contre, la restitution des concentrations des composés gazeux est peu satisfaisante. Ce problème de sous-estimation des concentrations a été identifié pour le CO (problème d'initialisation lié à une sous-estimation des valeurs de CO en sortie de MOCAGE), mais reste à approfondir pour l'ozone (problème d'initialisation par MOCAGE, de chimie de l'ozone dans MésoNH-C ...).

Les conclusions de l'étude concernant les concentrations en aérosols inorganiques sur les vols du Twin-Otter sont en accord avec les résultats obtenus lors des premières simulations effectuées avec MésoNH-C-ORISAM dans le cadre de la campagne ESCOMPTE [Cousin, 2004], pour les nitrates. Ceci confirme que de futurs développements prenant en compte un mode grossier pour les poussières désertiques et les sels marins sont nécessaires pour améliorer la simulation des aérosols.

La comparaison des concentrations en aérosols carbonés simulées et observées pour les vols avions et les stations sols est relativement satisfaisante pour le carbone suie, alors que de grandes différences demeurent pour le carbone organique.

Concernant l'étude des stations sols, les valeurs simulées et observées sont très différentes sur certains sites (cas de Rishiri et Sado le 27 avril 2001). Toutefois, l'étude des concentrations restituées aux points de grilles centrés sur la station au sein du modèle indique que le décalage d'un ou deux points de grille permet de restituer correctement les concentra-

tions mesurées. Compte tenu de la taille du domaine d'étude et des processus complexes étudiés, ce résultat est satisfaisant : en effet une résolution plus fine aurait permis de reproduire correctement les concentrations observées.

Cette étude nous a permis d'émettre plusieurs hypothèses pour expliquer les différences observées :

- La surestimation en couche limite et la sous-estimation en altitude peut avoir plusieurs origines :
 - Un temps de spin-up insuffisant qui ne permet pas aux émissions de se répartir correctement dans l'atmosphère.
 - Un problème d'initialisation des concentrations de fond, lié à la méthode utilisée basée sur les concentrations de monoxyde de carbone et sa répartition géographique, ainsi qu'à la valeur utilisée pour initialiser les particules carbonées.

En effet, les concentrations de CO sont sous-estimées par MOCAGE, et donc l'utilisation du rapport BC/CO (ou OC/CO) entraîne une surestimation des concentrations de fond de BC (respectivement OC). De plus, les valeurs de BC et OC utilisées pour initialiser le modèle sont une moyenne des mesures effectuées sur toutes les stations de la campagne ACE-Asia, qui sont pour la plupart dans des zones relativement polluées, et ne sont pas adaptées pour les zones reculées.

- La sous-estimation des concentrations dans le cas d'entrée de masse d'air extérieure au domaine, montre des problèmes en lien avec le forçage aux limites, lui aussi basé sur le rapport BC/CO.
- Dans le cas de la bonne restitution des concentrations en carbone suie, la sous-estimation permanente du carbone organique tend à incriminer l'insuffisante formation en aérosols organiques secondaires.

Au regard de ces premières conclusions, plusieurs tests ont été effectués afin d'expliquer

la différence obtenue entre les concentrations d'aérosols carbonés simulées et mesurées. En particulier, nous nous sommes focalisés sur les incertitudes pouvant provenir des inventaires d'émissions (test sur les émissions de feux de biomasse), et sur la non-formation d'aérosols organiques secondaires (tests effectués avec le module ORISAM). Ces résultats sont présentés dans le chapitre suivant.

Chapitre 5

Sensibilité du modèle aux facteurs ayant un impact sur les concentrations de carbone organique

Sommaire

| | | |
|------------|---|------------|
| 5.1 | Introduction | 154 |
| 5.2 | Test de sensibilité aux émissions | 154 |
| 5.2.1 | Cadastre d'émissions de feux de biomasse | 154 |
| 5.2.2 | Comparaison des simulations effectuées avec les cadastres ABBI et ACCESS | 155 |
| 5.2.3 | Conclusion | 164 |
| 5.3 | Etude de sensibilité avec le module ORISAM | 164 |
| 5.3.1 | Comparaison des simulations Méso-NH-C-ORISAM et ORISAM- OD | 166 |
| 5.3.2 | Tests de sensibilité | 168 |
| 5.4 | Conclusion | 179 |

5.1 Introduction

La comparaison entre les concentrations simulées et mesurées, présentée dans le chapitre précédent, montre des différences plus ou moins importantes suivant les espèces étudiées. Plusieurs réponses ont été apportées pour expliquer cet écart pour certaines espèces chimiques (cas du monoxyde de carbone). Des hypothèses ont été proposées pour expliquer les différences observées sur les concentrations en aérosols carbonés, notamment pour le carbone organique.

Au cours de ce chapitre, nous nous focaliserons sur deux paramètres importants pour la modélisation, dont la connaissance est aujourd’hui encore empreinte d’une grande incertitude :

- les inventaires d’émissions
- les conditions d’initialisation du modèle MésoNH-C-ORISAM

Notre étude se portera sur la sensibilité du modèle MésoNH-C-ORISAM aux émissions de feux de biomasse.

5.2 Test de sensibilité aux émissions

5.2.1 Cadastre d’émissions de feux de biomasse

Les simulations présentées dans le chapitre 3 ont été effectuées avec l’inventaire d’émissions de feux de biomasse ABBI (Asian Biomass Burning Inventory) [Michel *et al.*, 2005]. Cet inventaire a été développé spécialement pour la zone et la période des campagnes ACE-Asia et TRACE-P, à partir des données de surfaces brûlées dérivées des données SPOT-Vegetation.

Un autre inventaire est utilisé par la communauté scientifique pour la modélisation des campagnes ACE-Asia et TRACE-P : l’inventaire ACCESS (ACE-Asia and TRACE-P Modelling Emission Support System) [Streets *et al.*, 2003; Woo *et al.*, 2003]. Ce cadastre est un inventaire dit « climatologique », basé sur des données statistiques de quantité de

matières brûlées qui sont ensuite redistribuées temporellement et spatialement d'après les données satellites de pixels de feux actifs (NOAA-AVHRR).

Comme nous l'avons évoqué dans le chapitre 2, la comparaison de ces deux cadastres montre d'importantes différences en particulier sur la localisation des feux de végétation. Aussi, nous allons étudier l'impact de ces différences sur le transport des polluants au sein du modèle MésosNH-C-ORISAM.

5.2.2 Comparaison des simulations effectuées avec les cadastres ABBI et ACCESS

Une deuxième simulation avec le modèle MésosNH-C-ORISAM a été effectuée. Les conditions d'initialisation sont les mêmes que celles fixées dans la simulation de référence décrite dans le paragraphe 3.4.2 du chapitre 3. Seul le cadastre d'émissions de feux de végétation a été changé : ABBI a été remplacé par ACCESS pour les gaz et les particules.

Les figures 5.1 et 5.2 représentent l'évolution des concentrations de carbone suie et de carbone organique primaire pour la simulation « ABBI » et la simulation « ACCESS » respectivement pour les trois journées d'étude (toutes les 12h).

La principale différence se situe sur le nord de notre domaine d'étude. En effet, dans la simulation « ABBI », les émissions de feux induisent des concentrations importantes de carbone suie et de carbone organique. La simulation « ACCESS », quant à elle, présente des concentrations de BC et OC_p sur l'extrême nord-ouest du domaine (au Kazakhstan), d'un facteur 10, inférieures à celles observées dans la simulation « ABBI ». Au niveau de l'océan Pacifique, la différence entre les deux simulations est moins importante que sur les terres, mais les émissions de particules carbonées issues des feux du nord dans l'inventaire ABBI sont tout de même transportées, en particulier au dessus de la mer du Japon alors qu'il n'y a pas d'impact avec ACCESS.

Il est également intéressant de noter que sur l'Inde, la différence des émissions de feux de biomasse entre les deux cadastres ne se retrouve pas dans les sorties des simulations. En effet, les émissions anthropiques de fuels fossiles sont prédominantes sur cette zone et

masquent ainsi cette différence.

Il convient également de noter que la différence entre les deux inventaires est plus importante au regard des concentrations en aérosols carbonés organiques qu'en carbone suie. Les concentrations de carbone organique, représentées sur la figure 5.2, ne prennent en compte que les concentrations de OC_p . Cet écart entre les deux simulations provient donc bien de la différence entre les deux inventaires.

Dans un premier temps, cet écart peut avoir pour origine la différence de facteurs d'émissions employés dans les deux inventaires (facteurs de Michel *et al.* (2005) pour ABBI et facteurs de Andreae and Merlet (2001) pour ACESS).

Ces facteurs sont résumés dans la table 5.1.

| Classe de végétation | EF(BC_{ABBI}) | EF(BC_{ACESS}) | EF(OC_{ABBI}) | EF(OC_{ACESS}) |
|-----------------------|-------------------|--------------------|-------------------|--------------------|
| extra-tropical forest | 0.60 | 0.56 | 6.0 | 9.15 |
| tropical forest | 0.70 | 0.66 | 6.4 | 5.20 |
| grassland | 0.62 | 0.48 | 4.0 | 3.40 |
| cropland | 0.7250 | 0.69 | 2.1 | 3.30 |

TAB. 5.1 – Facteurs d'émission en BC et OC_p des inventaires ABBI et ACESS à partir desquels sont calculés les facteurs d'émission pour les classes de la carte de végétation UMD [Hansen *et al.*, 2000].

En général, les valeurs des facteurs d'émissions sont différentes entre ces deux inventaires. Les facteurs d'émissions de carbone suie, peu différents entre les deux inventaires peuvent expliquer pourquoi on observe un faible écart entre les concentrations de BC dans MésoNH-C-ORISAM au niveau les deux simulations. On peut noter que, pour les végétations majoritairement présentes sur notre domaine, à l'exception des espèces herbacées, les facteurs d'émissions de OC_p dans ACESS sont plus forts que ceux de ABBI alors qu'un résultat inverse est obtenu dans les simulations avec davantage de OC_p dans la simulation « ABBI » comparée à la simulation « ACESS ».

D'autres facteurs également peuvent expliquer ces différences de concentration en OC_p :

- Les feux affectent des végétations différentes dans les deux inventaires. En effet,

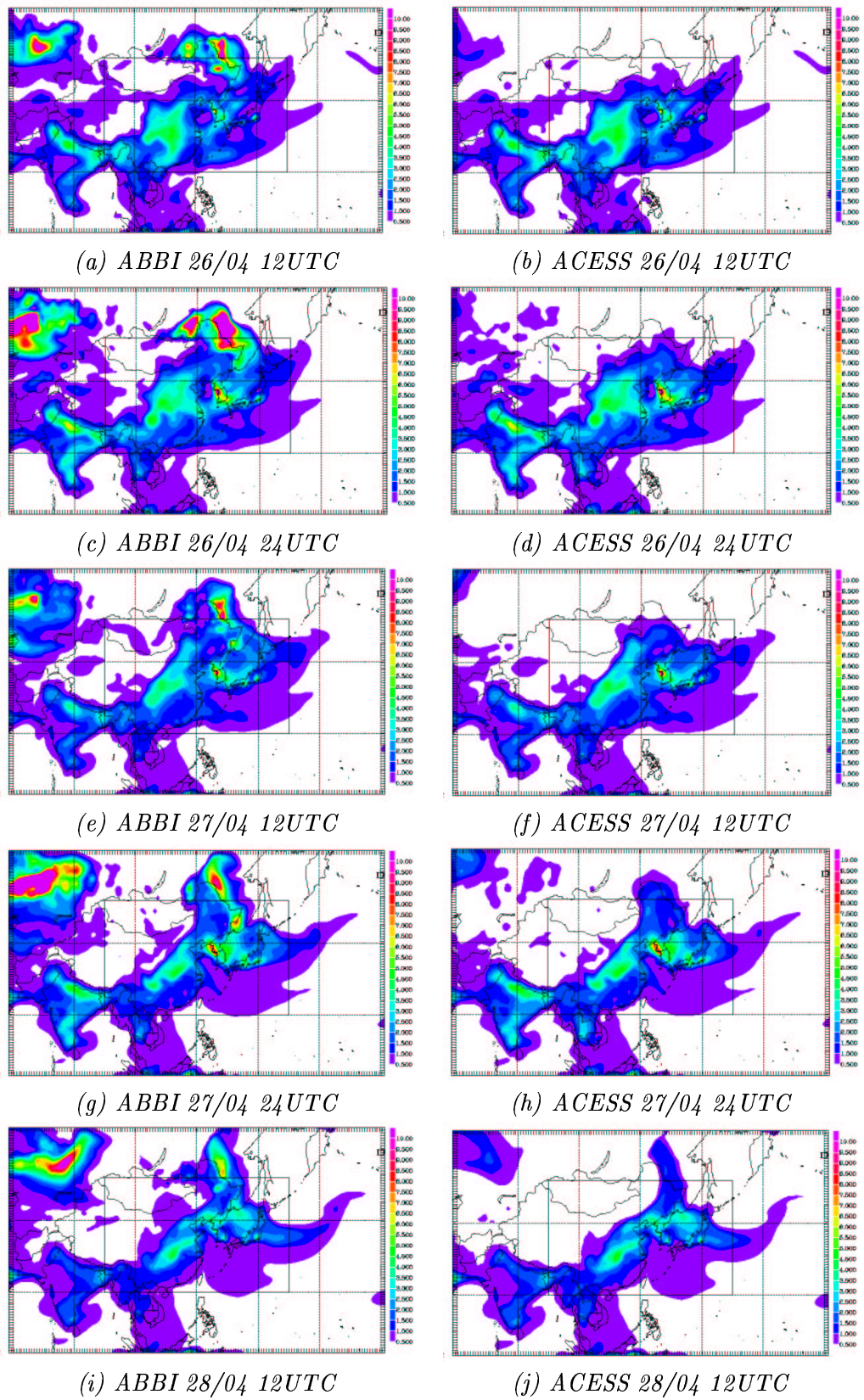


FIG. 5.1 – Concentrations de BC (en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) simulées avec l'inventaire ABBI et ACCESS pour les 26, 27 et 28 avril 2001 toutes les 12h.

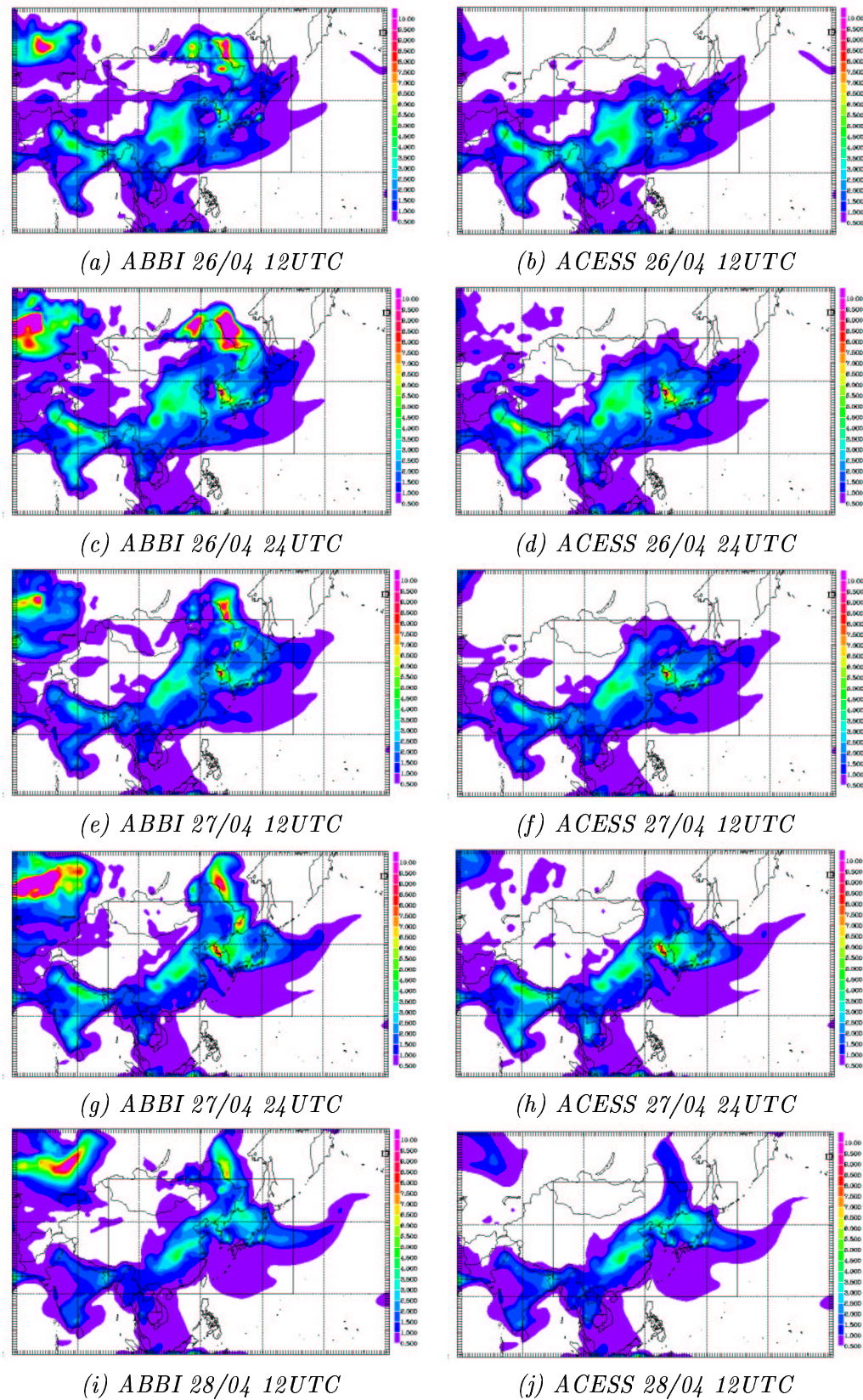


FIG. 5.2 – Concentrations de OC_p (en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) simulées avec l'inventaire ABBI et ACESS pour les 26, 27 et 28 avril 2001 toutes les 12h.

l'étude de la localisation des émissions dans le chapitre 2 montre une abondance des feux dans le nord de l'Asie pour ABBI qui n'est pas prise en compte dans l'inventaire ACESS. Cette zone comporte beaucoup de forêts et des cultures. Les quantités brûlées de ces types de végétation sont minoritaires comparées aux espèces herbacées, mais leur impact est important de part leur facteur d'émissions supérieur à ceux des espèces herbacées mais également par leur efficacité de brûlage et de densité de biomasse.

- Le deuxième élément qui permet d'expliquer ce résultat est la valeur employée pour les deux autres facteurs intervenant dans le calcul des émissions de feux : la densité de biomasse et l'efficacité de brûlage. Comme je l'ai montré dans le chapitre 2, les valeurs des densités de biomasse sont élevées pour les espèces forestières, et cela accroît donc leur importance au niveau du calcul des émissions de feux.

• Influence du choix de l'inventaire sur les concentrations au Japon

Les figures 5.3 montrent les concentrations de particules carbonées BC et OC_{tot} sur les quatre îles du Japon précédemment étudiées (Rishiri (figure 5.3a), Sado (figure 5.3b), Chichi-jima (figure 5.3c) et Hachijo (figure 5.3d)), simulées avec les deux cadastres et mesurées les 26, 27 et 28 avril 2001.

A l'exception de Rishiri, les concentrations de BC sont identiques pour les simulations effectuées avec les deux inventaires ABBI et ACESS pour les trois jours. Pour Rishiri, qui est la station de mesure la plus au nord du domaine, et la plus influencée par les feux de Mongolie et de Mandchourie, les concentrations en BC sont plus fortes pour la simulation « ABBI » que la simulation « ACESS » les deux premiers jours de l'étude, mais quasi-identiques le troisième jour, où la masse d'air échantillonnée provient du nord-est du domaine, et non plus des terres.

La comparaison des concentrations en OC_{tot} entre les deux études ne présente pas de différence pour les deux îles du sud (Hachijo et Chichi-jima) les deux premiers jours, mais des concentrations plus faibles, de l'ordre de 10-13%, sont observées pour la simulation « ACESS » le 28 avril. Pour Sado, les concentrations sont également plus faibles (d'environ 3-5%) les 27 et 28 avril avec ACESS. Notons néanmoins que les concentrations de OC_{tot}

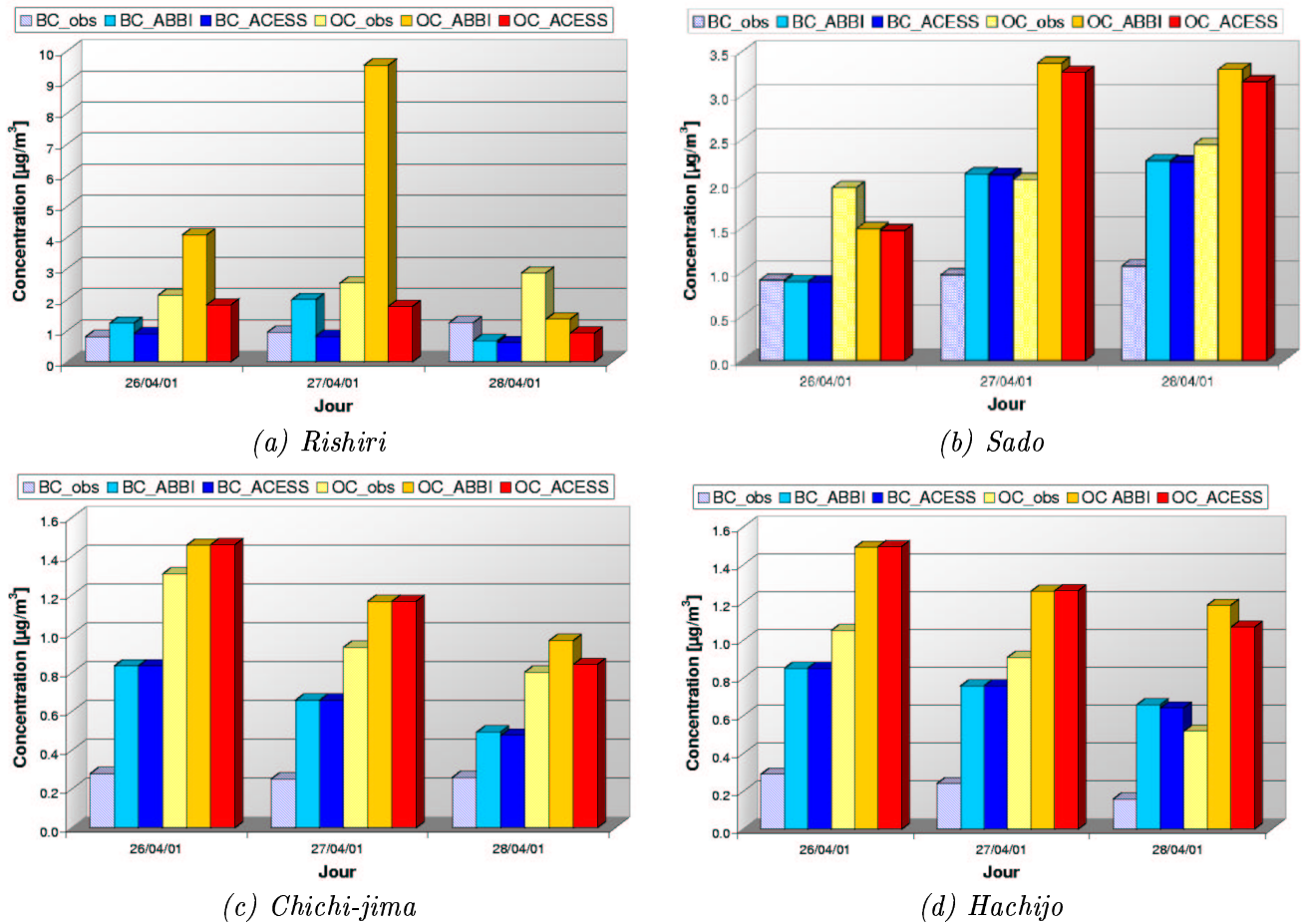


FIG. 5.3 – Concentrations de BC et OC_{tot} (en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) mesurées et simulées avec l'inventaire ABBI et ACCESS pour les 26, 27 et 28 avril 2001 sur les 4 îles du Japon : (a) Rishiri, (b) Sado, (c) Chichi-jima et (d) Hachijo.

simulées restent surestimées par rapport aux observations avec l'inventaire ACESS dans les cas où elles l'étaient avec l'inventaire ABBI, sur ces trois sites de mesures.

Pour Rishiri, les conclusions sont différentes : en effet, la différence de concentration en OC_{tot} est très significative entre les deux simulations : les concentrations restituées avec ACESS sont de 33 à 80% plus faibles sur les trois jours que celles simulées avec ABBI. Une telle différence montre la nécessité de disposer d'un inventaire adapté à la période d'étude. Cependant, les résultats obtenus avec ACESS sont plus proches des valeurs mesurées. Comme je l'ai expliqué dans le chapitre précédent, de telles concentrations peuvent être également simulées avec ABBI en se décalant d'un point de grille au sein du modèle (voir paragraphe 4.5 du chapitre 4). Ce résultat ne signifie donc pas qu'il n'existe pas de feux sur le nord de l'Asie.

• Etude des stations de mesures coréennes

Les résultats obtenus aux stations Gwandu et Gosan, situées au sud de la Corée du Sud, sont présentées ici. Les figures 5.4 et 5.5 indiquent les concentrations de BC (figure 5.4a et 5.5a) et OC_{tot} (figure 5.4b et 5.5b) simulées avec les deux inventaires et mesurées par plusieurs types d'analyseurs pour la station de Gwandu (Corée du Sud) et Gosan les 26, 27 et 28 avril 2001.

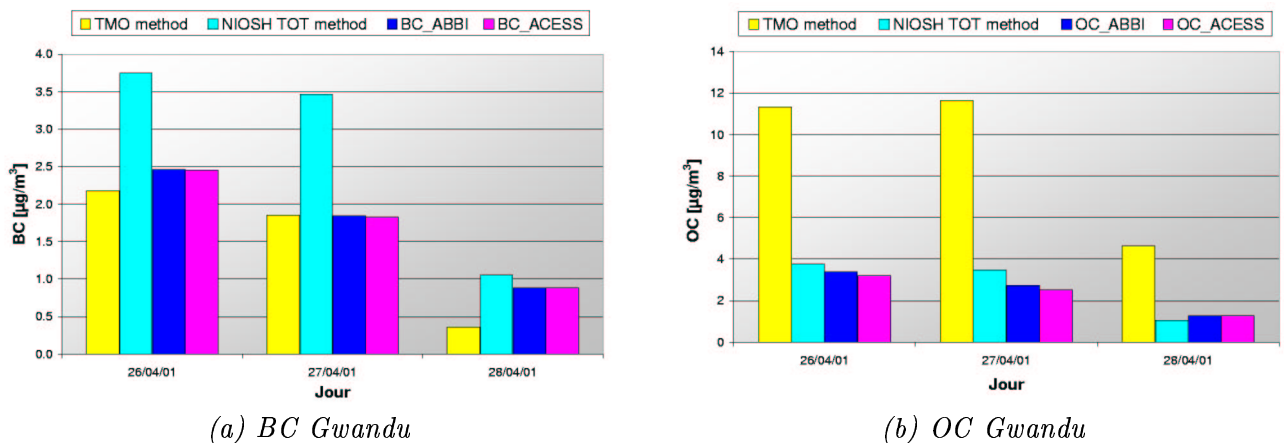


FIG. 5.4 – Concentrations de BC et OC (en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) à Gwandu mesurées et simulées avec l'inventaire ABBI et ACESS pour les 26, 27 et 28 avril 2001.

De manière générale, la comparaison entre concentrations simulées et observées est

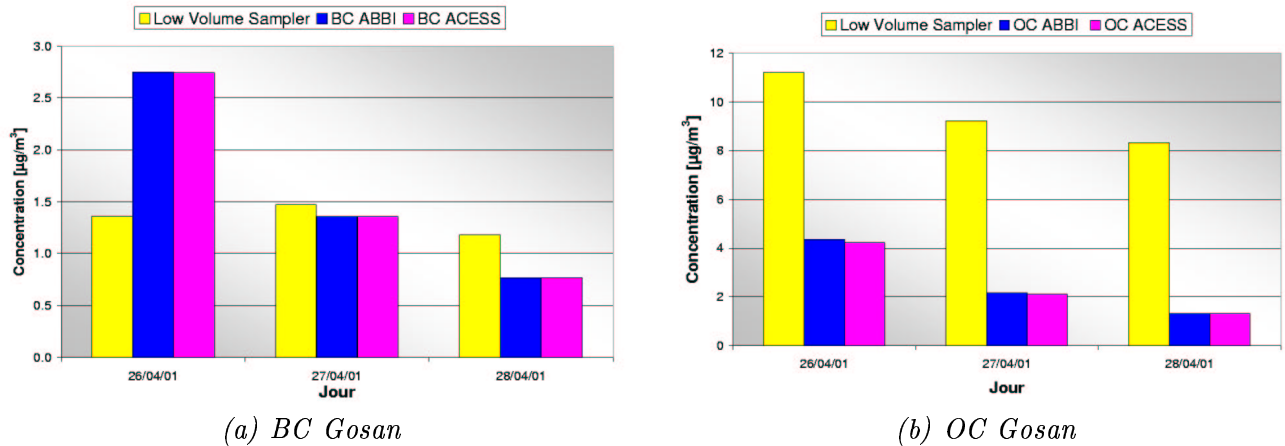


FIG. 5.5 – Concentrations de BC et OC (en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) à Gosan mesurées et simulées avec l'inventaire ABBI et ACCESS pour les 26, 27 et 28 avril 2001.

en concordance. Les concentrations en BC simulées sur les 2 stations avec ACCESS et ABBI sont identiques. Pour les concentrations en OC_{tot} , les 26 et 27 avril la simulation « ACCESS » présente des concentrations un peu plus faibles que la simulation « ABBI » (de l'ordre de 6,5% pour Gwandu et 2,5% pour Gosan) mais le 28 avril, les concentrations sont identiques. Pour Gwandu, les concentrations en carbone suie restituées par le modèle sont très proches de celles mesurées par la méthode TMO, mais éloignées de celles mesurées par la méthode NIOSH TOT. Inversement, les concentrations en aérosol carboné organique concordent avec la méthode NIOSH TOT, mais sont très éloignées des valeurs mesurées par la méthode TMO. Une différence importante est également à noter pour Gosan : le BC simulé dans les deux cas est proche du BC mesuré (à l'exception du 26 avril, où les deux simulations surestiment les concentrations) mais les concentrations de OC_{tot} simulées sont très éloignées de celles mesurées.

Les concentrations en $\text{BC}_{2.5}$ et $\text{OC}_{2.5}$ pour la station de Gosan sont représentées sur la figure 5.6. L'étude de ces concentrations, qui ne comprennent que les particules de BC (et OC) dont le diamètre est inférieur à $2,5 \mu\text{m}$, présente une tendance identique à celle observée pour les concentrations totales. De plus, la différence entre les concentrations BC (respectivement OC) et $\text{BC}_{2.5}$ (respectivement $\text{OC}_{2.5}$) est très faible, ce qui signifie que la quasi-totalité de l'aérosol modélisé possède un diamètre inférieur à $2,5 \mu\text{m}$. Ce résultat n'est pas surprenant puisque le module ORISAM ne possède pas de mode grossier. Aussi,

les concentrations restituées par les deux simulations sont identiques, ce qui est également logique puisque l'initialisation en taille est identique dans les deux cas d'étude.

Les concentrations en $BC_{2.5}$ sont relativement en accord avec les concentrations mesurées, mais $OC_{2.5}$ est toujours sous-estimé par le modèle dans les deux cas d'étude (simulation « ABBI » et « ACCESS »).

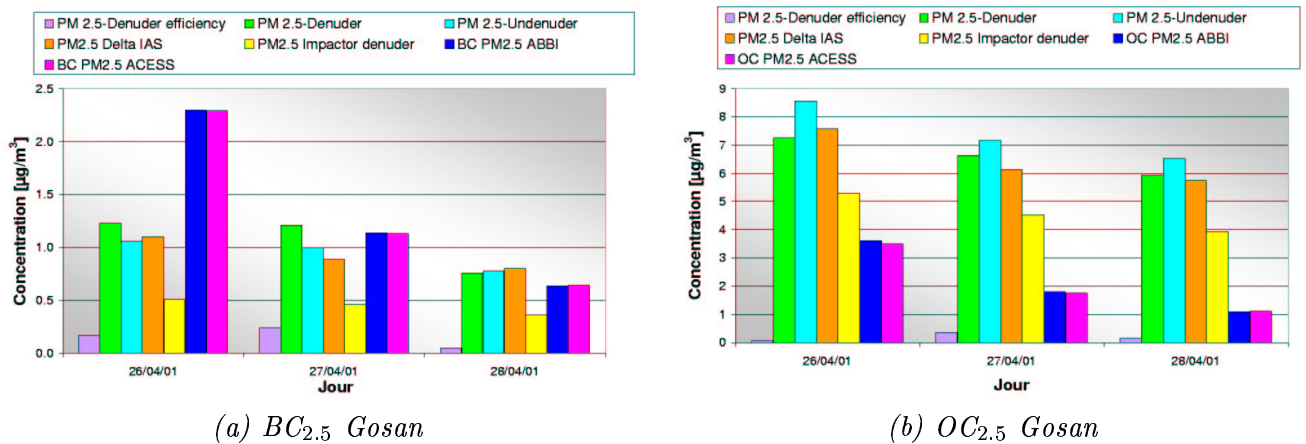


FIG. 5.6 – Concentrations de $BC_{2.5}$ et $OC_{2.5}$ (en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) à Gosan mesurées et simulées avec l'inventaire ABBI et ACCESS pour les 26, 27 et 28 avril 2001.

· Remarque :

Il est tout de même intéressant de noter que les valeurs mesurées sont très différentes d'une méthode d'analyse à l'autre. Les techniques de mesure et d'analyse comportent encore de grandes incertitudes, comme nous l'avons dit plus haut, et une approche qualitative serait plus appropriée qu'une analyse quantitative pour les comparaisons entre observation et simulation tant que des améliorations ne seront pas réalisées dans ce domaine.

● Formation de l'aérosol organique secondaire

L'étude des concentrations totales d'aérosol organique carboné (aérosol organique primaire et secondaire) ne révèle pas de différence notable entre les deux simulations effectuées avec le cadastre ABBI et ACCESS.

D'après les résultats précédents, il apparaît que les concentrations en aérosol organique sont très largement sous-estimées par le modèle et que ce phénomène provient d'une sous-

estimation de l'aérosol organique secondaire, et non pas des émissions de OC_p .

Les cartes 5.7 présentent la différence entre la production en aérosols organiques secondaires entre les deux cadastres : simulation « ABBI » moins simulation « ACCESS ».

La différence majeure entre les SOA (Secondary Organic Aerosol) formés dans la simulation « ABBI » et ceux de la simulation « ACCESS » se situe au niveau de la zone des émissions de feux du nord de l'Asie, sur le sud de la Sibérie et la Mandchourie. L'évolution de cette différence s'atténue pendant les trois jours de la campagne : une différence supérieure à $0,40 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ est présente le 26 avril à 24UTC, alors qu'elle n'excède pas $0,15 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ le 28 avril à 24UTC.

De manière générale, les concentrations de SOA restituées par la simulation « ABBI » sont plus fortes que celles simulées par « ACCESS », et sont en accord avec les concentrations en aérosols primaires, c'est à dire : augmentation de la formation de SOA dans les zones de fortes émissions, mais pas de changement au niveau des stations de mesures.

5.2.3 Conclusion

Le changement d'inventaire d'émissions de feux ne semble pas avoir d'impact au niveau des concentrations en BC et OC_{tot} sur les stations de mesures de la campagne ACE-Asia, où les sites sont plutôt influencés par une pollution de type urbaine ou fuel fossile que feux de biomasse. Néanmoins, sur le continent, comme le montrent les figures 5.1 et 5.2, des différences importantes ont été soulignées.

De même, la différence de concentrations en SOA restituées par les deux simulations n'affecte pas les stations de mesures.

Aussi, une étude plus détaillée de la formation en SOA avec le module ORISAM dans sa version 0D est présentée dans le paragraphe suivant, afin de comprendre pourquoi la formation de l'aérosol secondaire est sous-estimée par le modèle Méso-NH-C-ORISAM.

5.3 Etude de sensibilité avec le module ORISAM

Les résultats des simulations effectuées avec Méso-NH-C-ORISAM montrent une sous-estimation importante de la formation des aérosols organiques secondaires.

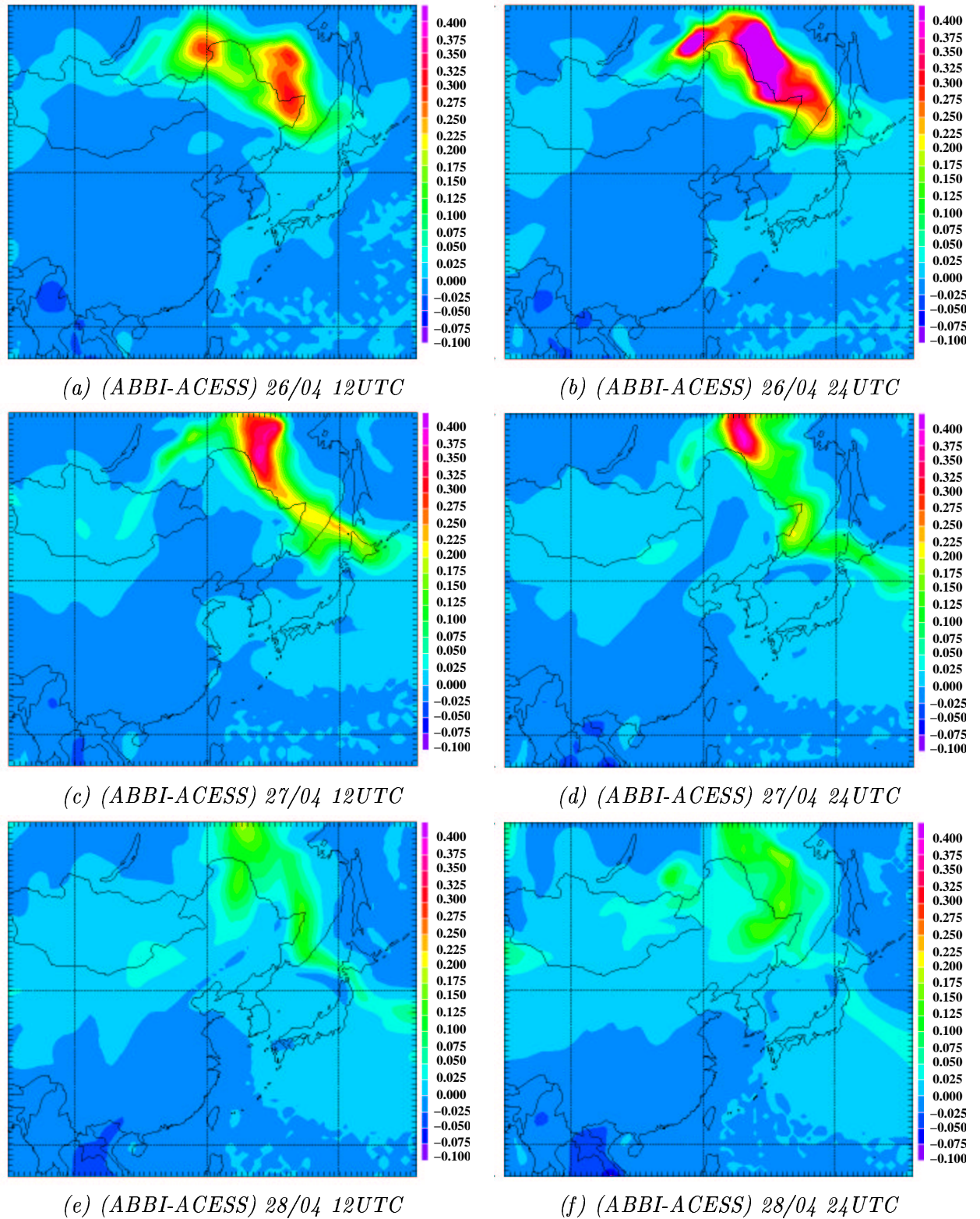


FIG. 5.7 – Différence des concentrations de SOA (en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) simulées entre les inventaire ABBI et ACCESS pour les 26, 27 et 28 avril 2001 toutes les 12h.

Or, les premiers travaux effectués avec le module ORISAM dans sa version 0D, que j'ai réalisés dans le cadre de mon DEA sur la région parisienne dans un cas d'une pollution de type urbaine pendant la campagne ESQUIF (Etude et Simulation de la Qualité de l'air en Ile de France (voir <http://www.aero.jussieu.fr/themes/CA/Projet%20ESQUIF.html>)), montraient une bonne comparaison entre mesures et simulations. Les résultats de ce travail [Liousse *et al.*, 2005] sont présentés dans l'annexe C. De même Cousin *et al.* (2005) ont obtenu des comparaisons plus satisfaisantes avec une simulation effectuée avec MésoNH-C-ORISAM sur la zone d'ESCOMPTE.

Afin de comprendre pourquoi le module ORISAM dans sa version 3D (c'est à dire couplé à Méso-NH-C) ne forme pas d'aérosol secondaire en Asie, une comparaison entre simulation 0D et simulation 3D est tout d'abord présentée. Nous pouvons cependant préciser que cette comparaison est effectuée uniquement pour nous permettre de comparer les processus de la formation de l'aérosol secondaire, car il n'est pas pertinent d'un point de vue physique, de confronter les résultats d'un modèle 3D avec celui d'un modèle 0D très simplifié et surtout qui ne comporte pas de transport.

5.3.1 Comparaison des simulations Méso-NH-C-ORISAM et ORISAM-OD

Nous avons sélectionné trois points pour effectuer cette étude :

- deux sites localisés en zone urbaine :
 - Gosan : très influencée par le transport de la pollution du continent chinois et de la Corée du Sud.
 - Pékin : zone source de pollution urbaine.
- un site localisé en Mandchourie, en zone d'émissions de feux de biomasse : 46.5°N - 127.5°E (que nous appellerons « ABBI-feux »)

5.3.1.1 Conditions d'initialisation du module ORISAM-0D

- **Les émissions :**
 - *Gaz* : Pour Gosan et Pékin, les données sont extraites de l'inventaire de Streets

et al. (2003) au point considéré, et pour « ABBI-feux », à partir des données de l'inventaire ABBI [Michel *et al.*, 2005] et de l'inventaire de Streets *et al.* (2003).

- *Particules*: Les données de l'inventaire de Cooke *et al.* (1999) réactualisées pour l'année 1997 (cf annexe B) sont prises en compte pour Gosan et Pékin, et celles de l'inventaire ABBI sont utilisées pour « ABBI-feux ».

– **Les concentrations de fond des particules :**

- *Espèces minérales*: Les données sont extraites de la simulation MésoNH-C-ORISAM « ABBI » à 24UTC le 26 avril 2001. L'initialisation des concentrations est effectuée pour les espèces: H_2SO_4 , HNO_3 et NH_3 .
- *Aérosol carboné primaire*: Pour les espèces BC et OC_p , les concentrations de fond sont calculées à partir d'une simulation effectuée avec le module ORISAM-0D le 26 avril 2001. La concentration totale moyenne de l'aérosol carboné obtenue sur cette journée de spin-up est redistribuée dans les deux modes de taille retenus. Les SOA formés au cours de la journée du 26 avril (valeur moyenne pour la journée de spin-up) sont ajoutés à la masse de OC_p pour la deuxième journée de simulation. Il est à noter que pour cette journée de spin-up, les concentrations initiales de particules carbonées proviennent de la simulation Méso-NH-C le 25 avril à 24UTC et les concentrations gazeuses sont initialisées à zéro.
- *gaz*: Les concentrations de fond gazeuses proviennent de la simulation de spin-up effectuées avec ORISAM sur la journée du 26 avril.

- **La distribution en taille**: Pour les émissions, les données en taille dans ORISAM sont identiques à celles utilisées dans Méso-NH-C (voir chapitre 4).

- **Les données météorologiques**: Bien qu'ORISAM soit un modèle 0D, il tient compte de la température, de l'humidité relative et de la hauteur de la couche limite.

Ces trois paramètres sont récupérés de la simulation « ABBI » pour la journée du 27 avril, avec un pas de temps d'une heure.

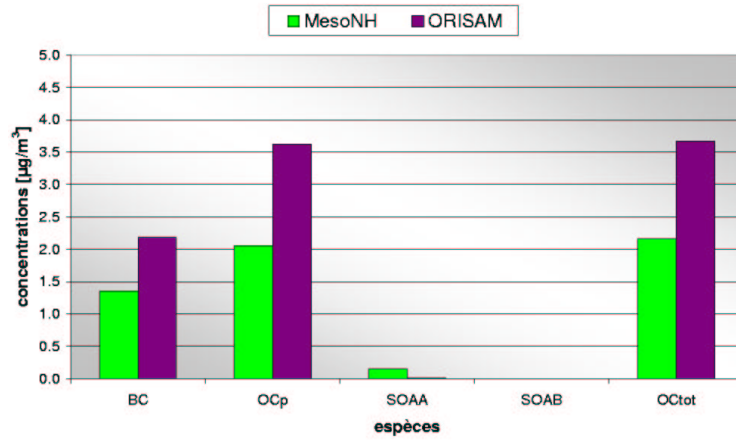
5.3.1.2 Résultats

Les figures 5.8a, 5.8b et 5.8c illustrent les concentrations particulières obtenues avec Méso-NH-C et ORISAM-0D à Gosan, Pékin et « ABBI-feux » respectivement.

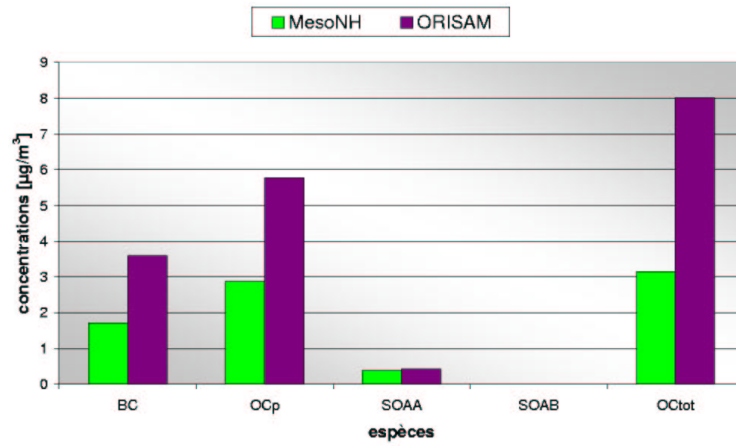
Il apparaît que pour les trois sites, les concentrations en OC_{tot} simulées sont plus importantes avec ORISAM-0D qu'avec Méso-NH-C. Toutefois, ces plus fortes concentrations en OC_{tot} ne proviennent pas d'une formation importante en aérosols secondaires (SOAA + SOAB), mais de concentrations en OC_p supérieures dans la simulation ORISAM, liées à la procédure d'initialisation, et à l'absence de transport. Au vu des résultats obtenus sur Paris lors de l'étude effectuée pendant ESQUIF (voir annexe C), ce résultat est d'autant plus surprenant que les concentrations en SOA sont très faibles avec ORISAM-0D.

La figure 5.9 présente la contribution de chaque espèce (en masse) par rapport à la masse totale de l'aérosol total simulée à Gosan, Pékin et « ABBI-feux ». Comme les figures précédentes le montraient, les concentrations en SOA sont très faibles dans le cas des simulations ORISAM-0D, et cela sur les trois sites étudiés. Néanmoins, en terme de contribution, le pourcentage de SOA est comparable avec les deux modèles à Gosan : 0,7% comparé à 0,4% pour Méso-NH-C et ORISAM. Pour Pékin et « ABBI-feux », on remarque que la contribution est plus importante avec ORISAM-0D (0,7% pour Pékin et 1,2% pour « ABBI-feux ») comparée à Méso-NH-C (0,3% pour Pékin et 0,5% « ABBI-feux »). Pour les sites de Gosan et « ABBI-feux », il y a une forte contribution des particules primaires (BC et OC_p) dans ORISAM et donc une plus faible contribution des espèces minérales, qui sont simulées en plus grande quantité avec Méso-NH-C-ORISAM qu'avec ORISAM-0D.

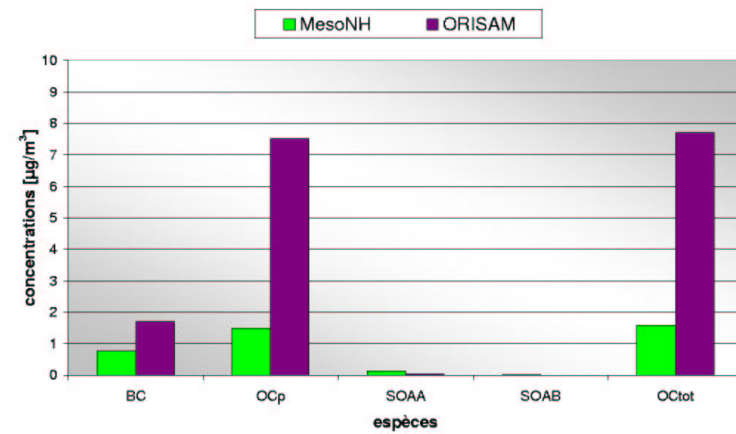
Ces résultats, comparables avec les deux modèles (ORISAM et MésoNH-C-ORISAM) aux schémas chimiques différents, nous indiquent que les problèmes liés à la formation des espèces secondaires ne semblent pas provenir de la réduction du schéma RACM en schéma ReLACS.



(a) Gosan

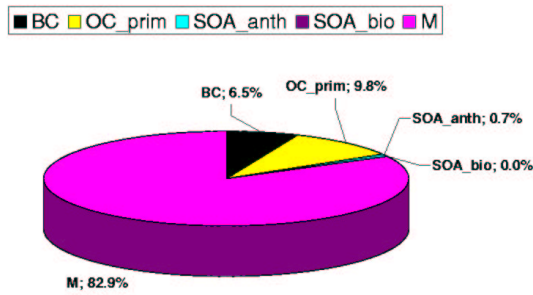


(b) Pékin

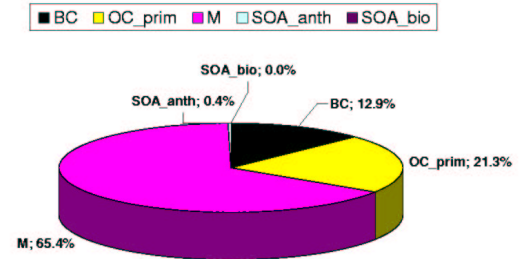


(c) « ABBI-feux »

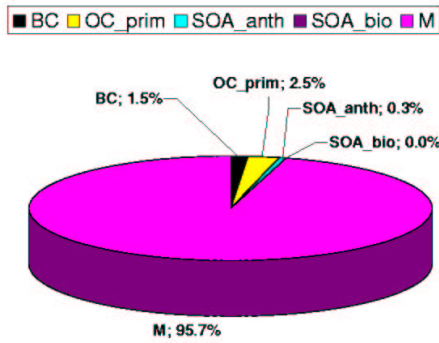
FIG. 5.8 – Comparaison des concentrations obtenues à Gosan (a), Pékin (b) et au point « ABBI-feux » (c) avec MésO-NH-C et ORISAM.



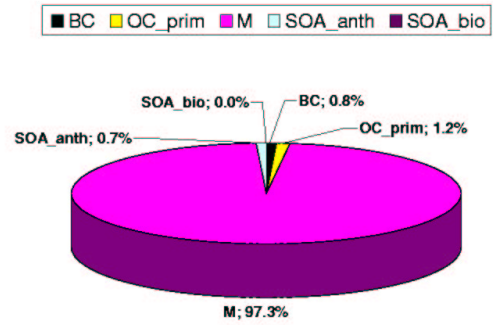
(a) Gosan : Méso-NH-C-ORISAM



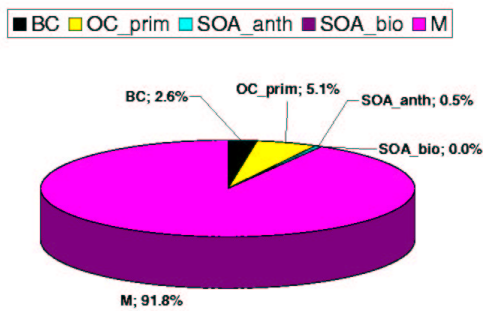
(b) Gosan : ORISAM-0D



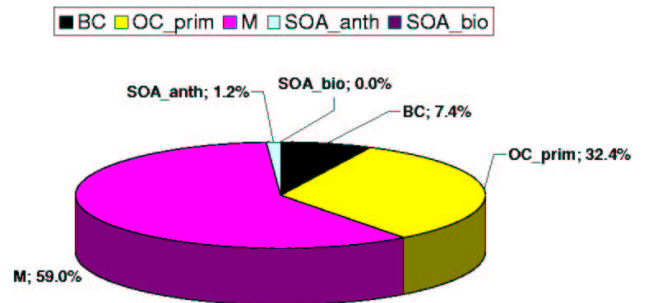
(c) Pékin : Méso-NH-C-ORISAM



(d) Pékin : ORISAM-0D



(e) « ABBI-feux » : Méso-NH-C-ORISAM



(f) « ABBI-feux » : ORISAM-0D

FIG. 5.9 – Contribution des espèces (en %) pour les simulations 3D et 0D pour Gosan [(a) et (b)], Pékin [(c) et (d)] et le point « ABBI-feux » [(e) et (f)].

5.3.2 Tests de sensibilité

Différents tests de sensibilité sur les conditions d'initialisation ont été effectués avec ORISAM-0D pour les trois sites étudiés, en vue de déterminer les paramètres clefs gouvernant la formation des SOA.

5.3.2.1 Test sur les conditions d'initialisation

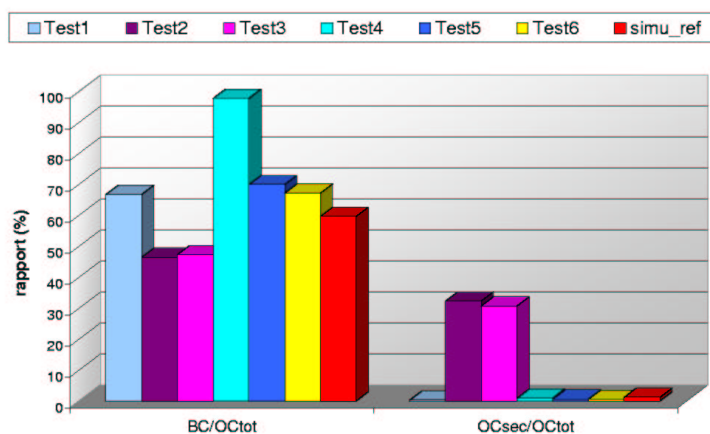
Les tests effectués sont basés sur la simulation simu-ref dont les conditions d'initialisation ont été décrites précédemment (paragraphe 5.3.1.1) pour les trois sites considérés.

Description des tests :

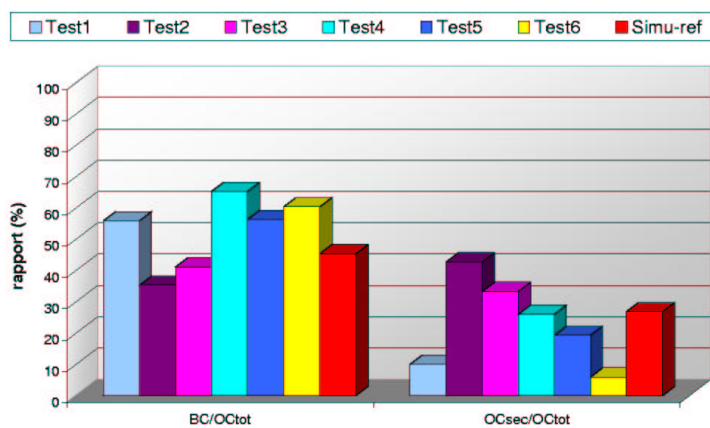
- *Test1* : simu-ref avec l'initialisation des gaz à zéro.
- *Test2* : simu-ref avec les émissions gazeuses de Paris (ESQUIF : journée du 07/08/98).
- *Test3* : simu-ref avec les émissions gazeuses de Paris et l'initialisation des gaz à zéro.
- *Test4* : simu-ref avec les émissions aérosols de Paris (valeurs et répartitions en taille).
- *Test5* : simu-ref avec les émissions aérosols, les concentrations initiales d'aérosols carbonés primaires et de minéraux de Paris (journée du 07/08/98).
- *Test6* : simu-ref avec les données météorologiques de Paris (humidité relative et température pour le 07/08/98).

Les figures 5.10a, 5.10b et 5.10c présentent les rapports BC/OC_{tot} et OC_{sec}/OC_{tot} respectivement pour Gosan, Pékin et « ABBI-feux ».

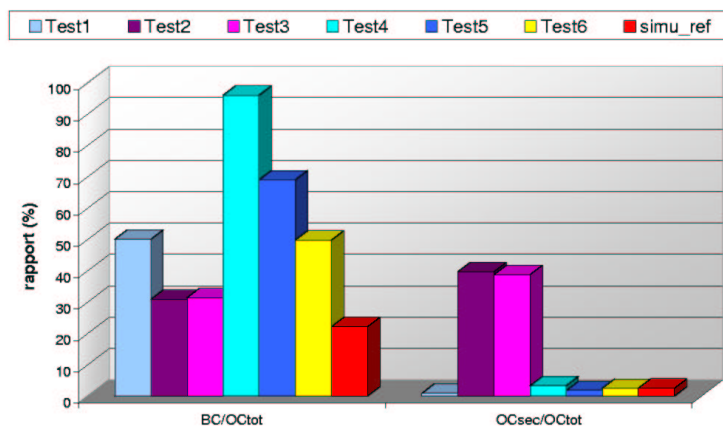
Si l'on regarde la variation des différents rapports obtenus pour les trois sites, la tendance est similaire : les tests ont une influence similaire sur les trois sites (augmentation/diminution des rapports). Un autre point à souligner est la valeur OC_{sec}/OC_{tot} obtenue pour la simu-ref : elle est très différente selon le site considéré. Elle est très faible pour Gosan et « ABBI-feux » (1,20% et 2,52%), alors que pour Pékin, cette valeur atteint un taux beaucoup plus important : 26,81%, même s'il reste relativement faible pour une telle zone de pollution urbaine. Le test1 (initialisation des gaz à zéro) a pour effet de faire décroître ce rapport OC_{sec}/OC_{tot} , (rapport qui devient quasi-nul pour Gosan et « ABBI-feux » et est 2,5 fois plus petit pour Pékin). Ce test montre l'importance d'une



(a) Test Gosan



(b) Test Pékin



(c) Test « ABBI-feux »

FIG. 5.10 – Comparaison des rapports moyens BC/OC_{tot} et OC_{sec}/OC_{tot} obtenus avec les 6 tests et la simulation de référence, effectués avec ORISAM le 27/04/01 pour (a) Gosan, (b) Pékin et (c) « ABBI-feux ».

bonne initialisation des concentrations de fond gazeuses.

Le test donnant lieu à la formation de particules secondaires la plus importante est le test2, pour lequel les émissions gazeuses ont été remplacées par celles de Paris, et cela pour les trois sites considérés : les valeurs oscillent entre 32% et 42%. Notons qu'elles ne varient pas beaucoup lorsque les concentrations initiales gazeuses sont fixées à zéro (test3).

Pour les simulations Gosan et « ABBI-feux », tous les autres tests donnent un très faible taux de formation en aérosols secondaires, confirmé par les très fortes valeurs de BC/OC_{tot} qui indiquent également une forte contribution de la partie primaire de l'aérosol organique. Notons tout de même qu'en raison des concentrations de fond appliquées à « ABBI-feux » (conditions urbaines) lors des différents tests, les valeurs obtenues sont totalement irréalistes pour un site de feu. Pour Pékin, le test4 (émissions et distribution en taille pour les aérosols identiques, à ESQUIF) donne des valeurs proches de la simu-ref, mais au regard de la valeur du rapport BC/OC_{tot} correspondant, cela provient davantage de la contribution importante de OC_p . On remarque également que le fait de remplacer la totalité de l'initialisation aérosol par les valeurs d'ESQUIF (cas du test5) n'augmente pas la formation en aérosols secondaires.

Enfin, pour le test6 (conditions de température et d'humidité relative d'ESQUIF du 07/08/98), l'influence de la température sur la formation en SOA n'est visible qu'à Pékin, les autres sites ayant des valeurs de OC_{sec}/OC_{tot} trop faibles en valeur moyenne pour observer un impact. Toutefois, lorsque l'on trace l'évolution du rapport OC_{sec}/OC_{tot} au cours de la journée, pour les trois sites (figure non présentée ici), le rapport pour le test6 augmente jusqu'à 6UTC où il atteint sa valeur maximale, puis diminue fortement et une augmentation recommence à partir de 18UTC. Ce profil est identique à celui de la journée du 07/08/98 obtenu sur la région parisienne, où la formation des SOA était bloquée par une température importante en cours de journée comme le montre la figure C.2a de la publication présentée en annexe C).

Les résultats de ces tests montrent que les paramètres qui semblent gouverner la formation de l'aérosols secondaires au sein du module ORISAM-0D sont les émissions et les concentrations des composés gazeux. L'importance des émissions gazeuses avait déjà été

soulignée dans l'étude sur ESQUIF (voir figure C.5b de l'article (annexe C)).

Afin de détailler cet impact, nous avons tracé sur la figure 5.11 la comparaison des émissions de gaz possédant un fort rendement en formation en aérosol secondaire pour les trois sites de notre étude : Gosan, Pékin et « ABBI-feux ». Les valeurs de Paris sont ajoutées pour comparaison.

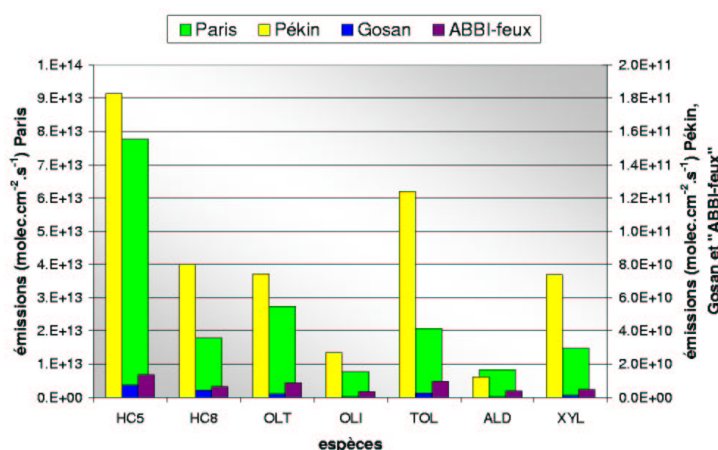


FIG. 5.11 – Comparaison des émissions gazeuses (en $\text{molec.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$) pour les COV (espèces RACM) entre les quatre sites présentés : Pékin, Gosan, ABBI-feux et Paris.

De manière générale, il existe une forte différence entre les émissions gazeuses sur les quatre sites étudiés. En effet, les émissions à Paris sont 150 à 700 fois supérieures à celles à Pékin. Ces valeurs sont surprenantes, en particulier pour Pékin, qui est une zone source de pollution anthropique. Par ailleurs, les émissions insérées dans le test « ABBI-feux » sont environ 2000 fois inférieures aux valeurs d'émissions de Paris, et pour Gosan, le facteur varie entre 4000 et 35.000.

Ces valeurs d'émissions, très différentes entre les sites asiatiques et Paris, expliqueraient en partie pourquoi ORISAM-0D et MésoNH-C ne forment que de très faibles quantités d'aérosols secondaires. D'autres paramètres rentrent sûrement en jeu, mais d'après les tests effectués, la non formation de SOA semble être essentiellement liée aux valeurs des émissions gazeuses.

5.3.2.2 Test sur le choix des concentrations de fond des oxydants

Dans le paragraphe précédent, nous avons mis en évidence l'importance des concentrations de fond. Aussi, nous allons tester ici tout particulièrement l'impact des concentrations des gaz oxydants. En effet, la formation en aérosols secondaires dépend du pouvoir oxydant de l'atmosphère, et notamment des concentrations en OH. Au sein du module ORISAM, la capacité des gaz à former des espèces condensées est calculée en fonction des concentrations en OH. OH étant une variable pronostique au sein de MésoNH-C, nous ne pouvons pas comparer ses concentrations à celles obtenues avec ORISAM-0D. Toutefois, il est possible d'accéder à d'autres espèces telles HO₂, O₃ ..., qui donnent une information sur la capacité oxydante de l'atmosphère. Les figures 5.12 et 5.13 présentent l'évolution des concentrations en ozone et en peroxyde d'hydrogène, pour la journée du 27 avril 2001, simulée avec ORISAM-0D et MésoNH-C-ORISAM. Notons qu'il n'existe pas de données expérimentales associées à ces tests.

De manière générale, les profils d'ozone et du radical peroxyde d'hydrogène simulés sont identiques avec MésoNH-C et ORISAM-0D. Les pics sont bien restitués avec un léger décalage d'une heure ou deux. Pour Pékin, site où à la fois avec MésoNH-C et ORISAM-0D, il y avait formation de SOA, les concentrations d'O₃ et de HO₂ concordent. Toutefois, pour ces deux composants, les concentrations qui succèdent au pic sont plus faibles dans MésoNH-C que dans ORISAM-0D, mais les ordres de grandeur sont cohérents.

Pour les sites de Gosan et « ABBI-feux », les profils sont relativement semblables, mais les concentrations simulées avec MésoNH-C sont beaucoup plus fortes qu'avec ORISAM-0D (environ un facteur 10). Or, si l'on se réfère aux figures 5.8a et 5.8b pour Gosan et « ABBI-feux », il apparaît que pour ces deux sites, MésoNH-C simulait de plus grandes concentrations de SOA qu'avec ORISAM-0D, même si ces valeurs restent extrêmement faibles. Aussi, nous avons modifié les concentrations de fond de ces deux oxydants : O₃ et HO₂ dans ORISAM-0D. Dans la simulation de référence, nous avons remplacé les concentrations de ces deux composants par celles obtenues dans MésoNH-C à 24UTC le 26 avril 2001.

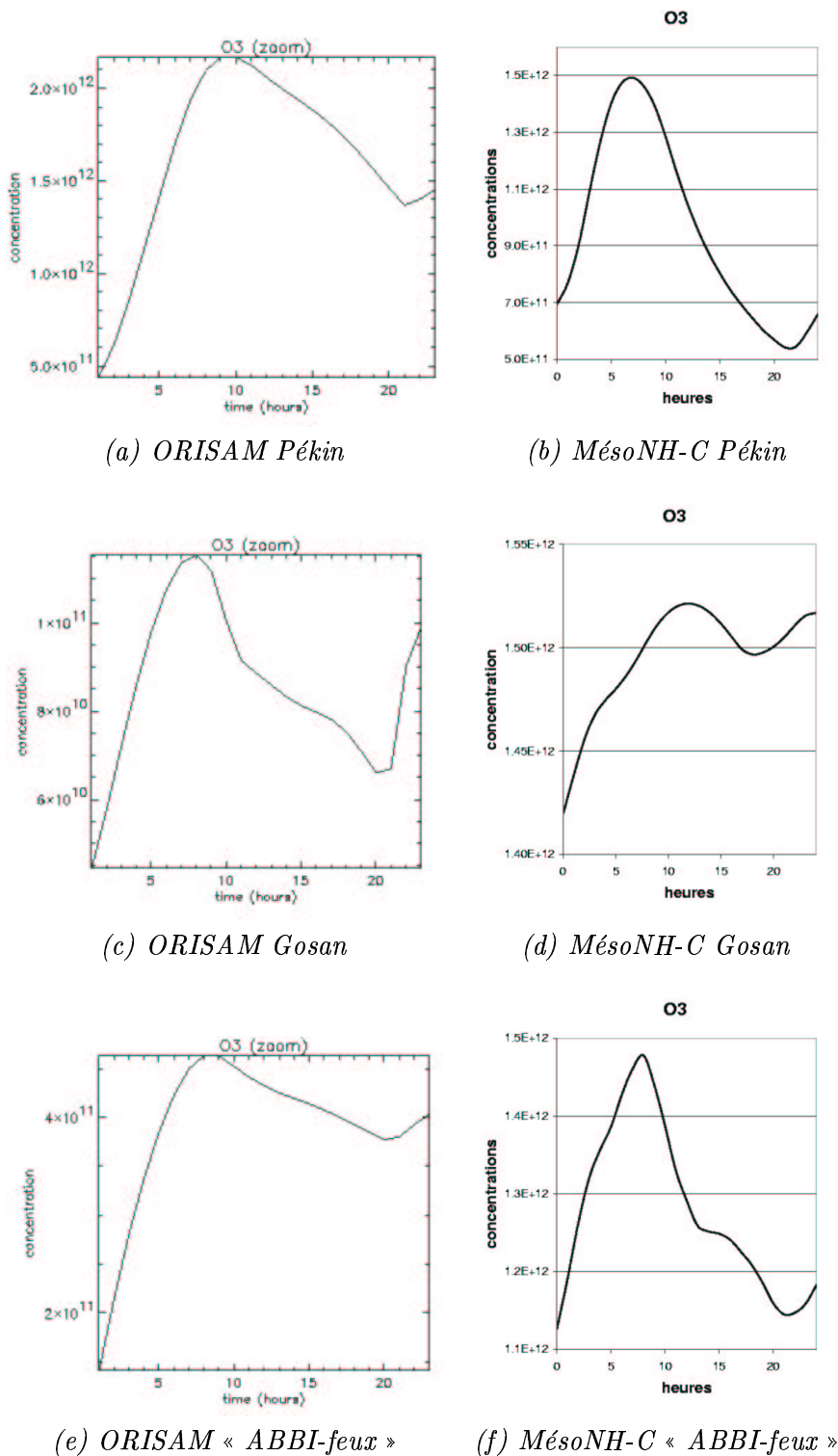


FIG. 5.12 – Comparaisons concentrations d’ozone (en molec.cm^{-3}) pour MésoNH-C et ORISAM-0D pour les Pékin, Gosan et « ABBI-feux » le 27 avril 2001.

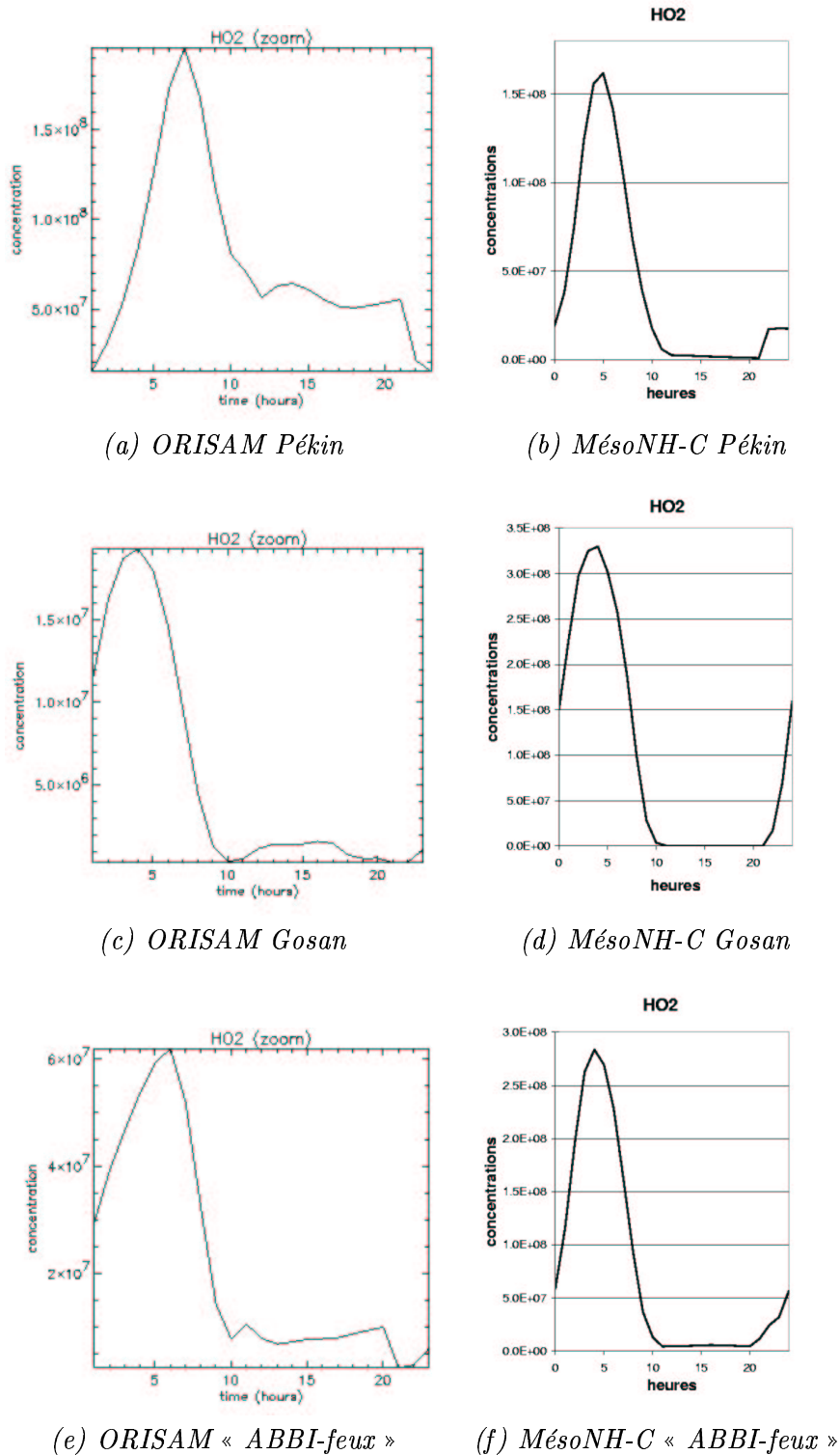


FIG. 5.13 – Comparaisons concentrations d'HO₂ (en molec.cm⁻³) pour MésoNH-C et ORISAM-0D pour les Pékin, Gosan et « ABBI-feux » le 27 avril 2001.

Pour le site de Gosan, les résultats montrent une légère augmentation de la formation en SOA : le rapport OC_{sec}/OC_{tot} évolue de 1,20% à 1,42% pour la simu-ref et avec les nouvelles concentrations de O_3 et HO_2 de MésoNH-C. Par contre, pour le site « ABBI-feux », on observe l'inverse : le rapport OC_{sec}/OC_{tot} diminue lorsque l'on augmente les concentrations en O_3 et HO_2 : il passe de 2,52% pour la simu-ref à 1,70% avec ces nouvelles concentrations. Même si les valeurs des rapports sont très faibles, on observe tout de même un changement important lorsque l'on change les concentrations de fond d'unique-ment deux composés gazeux. De plus, même si l'on a augmenté les concentrations de ces deux composés, l'impact n'est pas identique dans les deux cas : le rapport augmente dans un cas (Gosan), alors qu'il diminue dans l'autre (« ABBI-feux »). Le pouvoir oxydant de l'atmosphère au sein du modèle semble donc avoir un impact important, et des tests approfondis sur le rôle des concentrations de fond des composés gazeux sont à développer.

5.3.2.3 Test sur le choix des concentrations de fond gazeuses

Nous venons de montrer que les concentrations de fond des oxydants n'ont pas un impact « systématique » sur la formation de l'aérosol carboné. Aussi, un dernier test a été effectué en vue de vérifier l'impact des concentrations de fond gazeuses sur la formation de l'aérosol secondaire. Les concentrations de fond de Pékin de la simulation de référence obtenue avec ORISAM-0D ont été utilisées pour les sites de Gosan et « ABBI-feux ». Comme dans les tests précédents, tous les autres paramètres sont identiques à la simulation de référence. Les concentrations de fond de ces trois simulations (simu-ref) sont présentées dans l'annexe D.

L'impact de ce changement de concentrations de fond est une augmentation du rapport OC_{sec}/OC_{tot} pour les deux sites, Gosan et « ABBI-feux ». A Gosan, le rapport était de 1,20% pour la simu-ref, et il augmente à 23,41% avec les concentrations de fond de Pékin. Pour « ABBI-feux », l'augmentation est moins importante, mais le rapport évolue de 2,52% pour la simu-ref à 13,02% avec les concentrations de fond de Pékin.

Ces derniers tests montrent l'importance des concentrations de fond, qui malgré des

émissions plus faibles que celles de l'étude effectuée sur ESQUIF, nous permettent d'obtenir une formation « convenable » en aérosols organiques secondaires.

Ce problème de concentrations de fond, aux valeurs insuffisantes, peut avoir des origines diverses :

- Tout d'abord, un temps de spin-up insuffisant pour notre domaine et grille. En effet, la résolution de 75 km x 75 km nécessite peut être plus d'une journée de spin-up pour atteindre des concentrations de fond réalistes, qui sont atteintes au bout de quelques heures seulement au sein du module ORISAM-0D. C'est pourquoi, dans le cas où les conditions sont favorables à la formation (par exemple pour Pékin), nous obtenons à la fois formation d'aérosols secondaires avec les simulations MésNH-C et ORISAM-0D.
- La deuxième hypothèse concerne les émissions qui sont peut être trop faibles pour atteindre des concentrations de fond suffisamment importantes (en plus de leurs actions directes sur la formation de SOA). En effet, sur Pékin, les émissions sont plus importantes, et nous permettent d'atteindre des concentrations de fond raisonnables pour former des SOA.
- Le dernier point concerne l'initialisation avec MOCAGE. En effet, les concentrations de fond sont issues de ce modèle global, pour lequel nous avons déjà observé (voir chapitre 4) une forte sous-estimation des concentrations de fond pour le CO sur notre zone d'étude. Une étude plus approfondie serait nécessaire pour comparer les concentrations des autres espèces, en particulier les espèces COV.

5.4 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons présenté plusieurs tests pour expliquer les problèmes rencontrés dans nos simulations sur la très faible formation en aérosols organiques secondaires sur les sites étudiés.

En premier lieu, nous avons comparé deux inventaires d'émissions de feux de biomasse, et malgré d'importantes différences, notamment sur la localisation des feux, seul un très faible impact se répercute sur les valeurs simulées à nos stations de mesures. Les sta-

tions étudiées sont davantage sous une influence émissions anthropiques type fuel fossile qu'émissions de feux de végétation.

La comparaison entre les concentrations en SOA simulées avec MésoNH-C-ORISAM et ORISAM dans sa version 0D montre que, finalement, les quantités simulées avec ORISAM-0D ne sont pas supérieures à celles obtenues avec sa version 3D au sein de MésoNH-C. Ce résultat nous indique que le problème de formation des SOA n'est pas lié à la réduction du schéma chimique RACM en ReLACS, utilisé au sein de MésoNH-C-ORISAM.

Les tests effectués avec le module ORISAM-0D, nous ont permis de mettre en évidence que deux paramètres gouvernaient la formation des aérosols organiques secondaires au sein du module ORISAM : les émissions gazeuses et les concentrations de fond gazeuses. Aussi, la non formation des SOA dans nos simulations ne provient pas d'un problème avec le module aérosol comme nous avons pu le supposer précédemment, mais d'un problème avec la chimie gazeuse et les émissions gazeuses.

Il est cependant intéressant d'ajouter une remarque concernant la formation des SOA dans les feux de biomasse (cas de « ABBI-feux »). En effet, nous avons pu voir que la formation augmentait lorsque nous modifions les concentrations de fond ou les émissions gazeuses. Cependant, ces concentrations ou émissions utilisées pour les tests, sont typiques d'une zone urbaine. Or les quantités des différents précurseurs gazeux émis au sein d'un feu et les rapports entre ces gaz sont différents entre une pollution de type urbaine et de type feu.

Ce point est très important pour la formation des SOA. En effet, les rendements (cf paragraphe 3.2.6.2 chapitre 3) calculés par Moucheron and Milford (1996) dépendent de la contribution des émissions dans chaque classe de RACM (ce qui est également valable pour ReLACS). Or dans le cas d'émissions de feux de biomasse, ces contributions sont très différentes par rapport aux émissions de fuels fossiles, et les rendements changent de manière importante. Le tableau 5.2 résume la comparaison des rendements de Middleton *et al.* (1990) obtenus à partir d'émissions de type pollution urbaine, et ceux calculés dans les travaux de DEA de Déandréis [Déandréis, 2004] à partir de l'inventaire d'émissions

d'Andreae and Merlet (2001).

| Classes RACM | Rendements Middleton | Rendements Andreae |
|--------------|----------------------|--------------------|
| HC5 | 4 | 0 |
| HC8 | 278 | 4 |
| OLT | 29 | 12 |
| OLI | 57 | 23 |
| TOL | 295 | 159 |
| XYL | 346 | 333 |
| CSL | 220 | 220 |
| ALD | 1 | 1 |

TAB. 5.2 – Comparaison des rendements (en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{ppm}^{-1}$) des classes RACM pour les inventaires « d'Andreae » et « de Middleton »

On peut noter que ces nouveaux rendements pour l'inventaire feu de biomasse sont plus faibles que ceux obtenus pour un inventaire de fuels fossiles. En effet, les COV émis lors des feux, obtenus avec l'inventaire d'Andreae and Merlet (2001), sont de masses molaires plus faibles que ceux émis par la pollution urbaine. Or seuls les COV de masse molaire élevée sont capables de former de l'aérosol. Ces nouveaux rendements, très différents, devraient donc avoir un impact important sur la formation des aérosols secondaires.

Néanmoins, Andreae and Merlet (2001) ont dérivé un inventaire de gaz à partir de données avions. Il est fortement possible qu'il y ait une sous-estimation des COV à longues chaînes carbonées qui auraient réagi dans la colonne atmosphérique. Malheureusement, il n'existe pas actuellement d'inventaire d'émissions élaboré à partir de mesures sol. Des travaux sont actuellement en cours sur ce point.

Une perspective serait de calculer des nouveaux rendements appliqués aux émissions de feux de végétation, à partir d'émissions de gaz calculées selon des facteurs d'émissions mesurés au sol. Cependant, une différenciation entre l'origine fuel fossile et feux de biomasse des émissions serait nécessaire, ce qui n'est actuellement pas réalisable au sein d'un modèle comme MésoNH-C-ORISAM.

Enfin, au sein des schémas chimiques, les classes de COV « urbain » ne sont peut être pas adaptées aux émissions par les feux. De plus, il existe peut être des espèces émises

par les feux de végétation, qui ne sont pas encore connues, ou pour lesquelles les facteurs d'émissions sont pas ou mal déterminés.

Conclusion Générale

Du fait du développement « explosif » des sources de combustion dans les pays émergents, l'Asie est une zone importante d'émissions d'espèces atmosphériques chimiquement réactives à un fort impact climatique. Parmi les composés émis, certains demeurent encore peu ou mal étudiés. C'est le cas de l'aérosol de combustion. En particulier, ses sources sont encore mal connues : les inventaires sont incomplets, développés trop schématiquement pour les besoins de modélisation, ou bien sans réelle conscience de l'importance de leur variabilité sur le transport et les impacts. Un autre point d'incertitude réside dans la paramétrisation des aérosols, qui sont en général réduits à l'état de traceurs passifs dans les modèles.

C'est au cœur de cette problématique que mon travail, novateur, s'est inscrit :

– Jusqu'alors, les inventaires globaux et les inventaires dits « climatiques » de feux de biomasse n'étaient pas adaptés à l'étude de l'impact des émissions des feux de biomasse sur une période spécifique. C'est pourquoi, j'ai développé un inventaire de gaz et de particules selon une méthodologie considérée comme la mieux adaptée à mon étude. Ce travail apporte une contribution inédite à l'échelle internationale.

– J'ai pu étudier l'impact des émissions des composés chimiques et leur transport en Asie, en utilisant le modèle méso-échelle MésoNH-C couplé au module ORISAM. Ces simulations, pionnières sur une région aussi complexe par sa géographie et ses multiples sources, permettaient de tester le comportement du modèle dans un tel environnement.

De manière plus détaillée, l'ensemble de mes résultats fait ressortir les conclusions suivantes :

– Tout d'abord un important travail a été effectué sur le développement d'un inven-

taire d'émissions à partir des surfaces brûlées détectées par imagerie satellitale (système SPOT-VEGETATION). La confrontation de cet inventaire (ABBI) à l'inventaire climatique établi à partir des pixels de feux et de données statistiques (ACCESS) montre qu'il n'existe pas de corrélation systématique entre ces deux méthodes d'acquisition car elles dépendent fortement du type de végétation, de la période et des conditions dans lesquelles le feu se produit. Le meilleur compromis pour avoir le maximum d'informations serait d'adopter une approche multi-systèmes. Par exemple, l'utilisation des feux actifs en forêt tropicale dense viendrait compléter l'utilisation de la méthode « surfaces brûlées » qui serait retenue pour les autres types de végétation. Par ailleurs, une meilleure cartographie de la végétation permettrait de tenir compte des variations saisonnières des densités de biomasse et des efficacités de brûlage. Des efforts sont menés aujourd'hui pour améliorer les données actuelles, en particulier dans le cadre des projets Global Land Cover-2000 [Bartholomé and Belward, 2005] et GLOBCOVER-2005.

– J'ai rencontré des difficultés durant mes travaux de modélisation avec MésNH-CORISAM du fait de la première utilisation de ce modèle sur un domaine aussi grand et complexe. Ces conditions particulières ont nécessité une configuration (résolution spatiale et temporelle et taille du domaine) très grande pour un modèle méso-échelle. Toutefois pour tenir compte du transport des émissions de feux, il était important d'intégrer la totalité de l'Asie. Par ailleurs une telle paramétrisation (couplage on-line-modèle-module) entraîne des temps de calculs « gigantesques » qui ont rendu impossible la réalisation de plusieurs tests de sensibilité. J'ai dû affronter une autre difficulté quant à l'initialisation du modèle : les données particulières de concentrations de fond et de conditions aux limites se sont avérées quasi inexistantes car MésNH-C n'est actuellement pas couplé avec un modèle global dédié aux particules. Des hypothèses ont donc été appliquées pour pallier ce manque de données.

– Plusieurs points clés ont été mis en évidence par cette étude de modélisation en région asiatique. Le transport des composés émis par les feux de végétation depuis leur zone d'émission jusqu'à Pékin s'effectue suivant plusieurs voies de transport pri-

vilégiées : une voie de transport en surface et une voie de transport en altitude par les systèmes frontaux. Ces résultats soulignent la complexité de la composition de l'aérosol pékinois (mélange fuel fossiles, feux et poussières). Malgré toutes les limites évoquées précédemment, une bonne retranscription de la dynamique et des concentrations de carbone suie au niveau des stations sol et vols avion est observée entre données simulées et mesurées. Cependant, ces résultats montrent que les simulations sous-estiment systématiquement les concentrations de carbone organique. Les concentrations en aérosol secondaire organique (SOA) sont très faibles voire quasi-nulles la plupart du temps. Au regard de ces résultats et afin d'expliquer cette non-formation en SOA, j'ai effectué différents tests de sensibilité, en particulier sur les conditions d'initialisation. Ces tests ont révélé que les paramètres clés qui gouvernent ces processus de formation de l'aérosol organique dans le module ORISAM sont les concentrations de fond et les émissions en phase gazeuse. Or ces deux paramètres (gazeux) possèdent de fortes incertitudes dans le cadre de notre étude en Asie. En effet, nous avons pu révéler que les concentrations de CO proposées par le modèle global MOCAGE étaient fortement sous-estimées. Par ailleurs, nos tests ont mis l'accent sur l'importante différence qui existe entre les émissions gazeuses de fuels fossiles de Pékin et de Paris : les émissions de Pékin étant étonnamment inférieures à celles de Paris. Toutefois, les données d'EDGAR 3.2 et GEIA proposent les mêmes ordres de grandeur. Ce problème reste donc entier. Une avancée sera possible lorsqu'une meilleure quantification des émissions gazeuses sera disponible car comme je l'ai montré, la modélisation de l'aérosol carboné nécessite une très bonne caractérisation des gaz en complément des données particulières.

Il me semble important à présent de souligner quelques-unes des implications de cette étude :

– Au cours des cinq dernières années de nombreuses avancées ont été accomplies sur la détermination des sources de feux de végétation. Toutefois, une attention particulière reste à porter sur le choix des facteurs nécessaires à l'élaboration des émissions : les facteurs d'émissions et principalement ceux des composés organiques volatiles, les densités de biomasse et les efficacités de brûlage. Par ailleurs, les comparaisons que j'ai effectuées

entre les différents inventaires existants sur l'Asie (ABBI, ACCESS) et leur impact sur le transport des polluants dans cette région mettent l'accent sur l'importance du choix des inventaires pour des études de modélisation. Ce travail apporte des éléments essentiels aux groupes de travail IGBP/GEIA/ACCENT dont l'objectif est de mieux documenter les différentes méthodes d'élaboration des inventaires d'émissions.

– Concernant les sources de biofuel et de fuel fossile, j'ai pu montrer qu'elles avaient une influence prédominante sur le transport et sur les concentrations d'aérosol sur le continent (ex. Inde) et l'océan Pacifique. Nous pouvons noter ici que toutes mes simulations ont été effectuées à partir des émissions particulières de fuel fossiles et de biofuel issues de l'inventaire développé au sein du laboratoire. L'une des préoccupations majeures de la communauté scientifique internationale est de trouver un accord entre les inventaires existants aux estimations différentes. Les résultats de ma thèse, montrant une concordance entre les valeurs simulées et mesurées de BC en Asie, sont une première validation pour l'inventaire que j'ai utilisé.

– Cet exercice de modélisation montre les limitations de MésoNH-ORISAM, trop « lourd » pour mener des études de sensibilité à divers paramètres (sources, processus aérosol etc...). Or cette deuxième simulation effectuée avec la version actuelle du modèle soulève de nombreuses questions qui restent en suspens. C'est pour cette raison que de nouvelles perspectives sont envisagées pour la modélisation de tels phénomènes à cette échelle (ex : développement du modèle régional climatique RegCM couplé à ORISAM).

– La campagne de mesure ACE-Asia étant dédiée à l'étude des propriétés radiatives de l'aérosol, de nombreuses données sont disponibles. Il est donc intéressant d'utiliser mes résultats de modélisation pour calculer les propriétés radiatives de l'aérosol et son impact. Ce travail sera effectué avec le module ORISAM dans sa version radiative (ORISAM-RAD) qui vient d'être développé au Laboratoire d'Aérodynamique [Mallet *et al.*, 2005].

– Cette étude s'est focalisée sur l'aérosol de combustion de taille submicronique. Or

les résultats expérimentaux de la campagne ACE-Asia ont montré d'importants épisodes de poussières désertiques et un aérosol complexe constitué d'un mélange aérosols de combustion-poussières. Compte tenu de la paramétrisation du module ORISAM qui ne prend pas en compte le mode grossier, nos résultats souffrent de l'absence d'un tel mode (sous-estimation de la masse de l'aérosol, des aérosols inorganiques...). La prise en compte du 3^{ème} mode dans le module ORISAM est l'un des développements à venir. Il aura une importance capitale dans les calculs radiatifs effectués avec le module ORISAM-RAD. De même, le modèle souffre de l'absence du dépôt humide, imperfection qui devrait être améliorée prochainement.

– Dans un monde de rêve, le modèle idéal pour l'étude de l'aérosol de combustion devrait pouvoir intégrer un module de feu dynamique qui aurait pour seul paramètre d'entrée la distribution des zones brûlées; il déterminerait ainsi le type de végétation affecté: les émissions qui en découlent seraient calculées avec les facteurs adaptés au type de combustible (facteurs d'émissions, rendement permettant la formation de SOA « feu ») et soulevées par la dynamique du feu à la bonne hauteur d'injections. Les phénomènes dynamiques liés au feu (chaleur latente...) auraient une rétroaction directe sur le transport des composés chimiques. Des premières études existent à l'échelle du panache [Trentmann and Andreae, 2003; Com. Pers, Lavoué 2002]. D'autres modules interactifs seraient bien sûr pris en compte: un module de soulèvement de poussières, un module d'émissions biogéniques s'appuyant sur une végétation évolutive. Les autres sources anthropiques seraient associées à ces émissions. L'ensemble de ces composés évoluerait au sein d'un module permettant la formation et le vieillissement des particules. A ce stade, une question peut être soulevée: comment calculer la formation d'aérosols secondaires avec des rendements différents selon l'origine des précurseurs gazeux, le tout en interaction?

Références

- Akerelodu, F. and A. Isichei (1981). Emissions of carbon, nitrogen, and sulfur from biomass burning in Nigeria. *Global Biomass Burning: atmospheric, climatic, and biospheric implication. MIT Press, Cambridge, Mass., Edited by J. Levine.*
- Andreae, M. (1983). Soot carbon and excess fine potassium: long range transport of combustion-derived aerosols. *Science 220*, 1148–1151.
- Andreae, M. (1991). Biomass Burning: its history, use and distribution and its impacts on environmental quality and globale climate. *Global Biomass Burning, MIT Press, Cambridge, Mass., Edited by J. Levine*, 3–21.
- Andreae, M., T. Andreae, H. Annegarn, a. C. H. Beer, J., P. Le Canut, W. Elbert, W. Maenhaut, I. Salma, F. Wienhold, and E. Zenker (1998). Airborne studies of aerosol emissions from savanna fires in southern Africa : 2. Aerosol chemical composition. *Journal of Geophysical Research 103*(D24), 32119–32128,10.1029/98JD02280.
- Andreae, M. and P. Merlet (2001). Emissions of trace gases and aerosols from biomass burning. *Global Biogeochemical Cycles 15*(4), 955–966.
- Atkinson, R., H. Anderson, J. Sunyer, J. Ayres, M. Baccini, J. Vonk, A. Boumghar, F. Forastiere, B. Forsberg, G. Touloumi, S. J., and K. Katsouyanni (2001). Acute effects of particulate air pollution on respiratory admissions : results from the APHEA 2 project. air pollution and health : a european approach. *American Journal of Respiratory Critical Care Medicine 164*, 1860–1866.
- Baldasano, J., E. Valera, and P. Jimenez (2003). Air quality data from large cities. *The Science of the Total Environment 307*, 141–165.
- Barbosa, P. M., D. Stroppiana, J.-M. Gregoire, and J. Pereira (1999). An assessment

- of vegetation fire in Africa (1981-1991): Burned areas, burned biomass, and atmospheric emissions. *Global Biogeochemical Cycles* 13, 993–950.
- Bartholomé, E. and A. Belward (2005). GLC2000: a new approach to global land cover mapping from earth observation data. *International Journal of Remote Sensing* 26(9), 1959–1977.
- Bechtold, P., E. Bazile, F. Guichard, P. Mascart, and E. Richard (2001). A mass flux convection scheme for regional and global models. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 127, 869–886.
- Bessagnet, B. (2000). Modélisation de l'aérosol carboné - cas particulier des particules fractales de combustion. *Thèse de l'Université Paul Sabatier Toulouse III*, 179pp.
- Bessagnet, B., A. Hodzic, R. Vautard, M. Beekmann, S. Cheinet, C. Honoré, C. Liousse, and L. Rouil (2004). Aerosol modeling with CHIMERE-Preliminary evaluation at the continental scale. *Atmospheric Environment in press*.
- Bessagnet, B. and R. Rosset (2001). Fractal modelling of carbonaceous aerosols-application to car exhaust plumes. *Atmospheric Environment* 35, 4751–4762.
- Bey, I., D. Jacob, J. Logan, and R. Yantosca (2001). Asian chemical outflow to the Pacific: origins, pathways, and budgets. *Journal of Geophysical Research* 106, 32627–32644.
- Bilbao, E. and E. Medina (1996). Types of grassland fires and nitrogen volatilization in Tropical Savannas of Calabozo, Venezuela. *Biomass Burning and Global Change, MIT Press, Cambridge, Mass., Edited by J. Levine*.
- Blake, N., D. Blake, S. I.J., J. Lopez, N. Johnston, A. Swanson, A. Katzenstein, S. Meinardi, B. Sive, J. Colman, E. Atlas, F. Flocke, S. Vay, M. Avery, and F. Rowland (2001). Large-scale latitudinal and vertical distribution of NMHCs and selected halocarbons in the troposphere over the Pacific Ocean during the March-April 1999 Pacific Exploratory Mission (PEM-Tropics B). *Journal of Geophysical Research* 106(D23), 32,627–32,644.
- Blake, N., D. Blake, B. Sive, T.-Y. Chen, F. Rowland, C. J. J.E., G. Sachse, and B. Anderson (1996). Biomass burning emissions and vertical distribution of atmos-

- pheric methyl halides and other reduced carbon gases in the South Atlantic region. *Journal of Geophysical Research* 101(24), 151–164.
- Bond, T., D. Streets, K. Yarber, S. Nelson, J.-H. Woo, and Z. Klimont (2004). A technology-based global inventory of black carbon and organic carbon emissions from combustion. *Journal of Geophysical Research* 109(D14203), doi:10.1029/2003JD003697.
- Boschetti, L., H. Eva, P. Brivio, and J. Gallego (2004). The validation protocol of gba2000 global burned area maps. *IGARSS IEEE International Geoscience and Remote Sensing, session Land Degradation and Fires, 20-24 Septembre 2004, Anchorage..*
- Boschetti, L., H. Eva, P. Brivio, J. Gallego, and J.-M. Grégoire (2004). Validation protocols for gba2000. *CEOS Cal-Val Land Cover Validation workshop, February 2-4 2004, Boston University..*
- Boschetti, L., H. Eva, P. Brivio, and J.-M. Grégoire. Lessons to be learned from the comparison of three satellite-derived biomass burning products. *Geophysical Research Letter* 31(21).
- Bougeault, P. and P. Lacarrère (1989). Parametrization of orography-induced turbulence in a meso-beta model. *Monthly Weather Review* 117, 1872–1890.
- Brauer, M., H. G., P. Van Vliet, K. Meliefste, P. Fischer, U. Gehring, J. Heinrich, J. Cyrus, T. Bellander, M. Lewne, and B. Brunekreef (2003). Estimating long-term average particulate air pollution concentrations: application of traffic indicators and geographic information systems. *Epidemiology* 14(2), 228–239.
- Brocard, D. (1996). Emissions atmosphériques des combustions domestiques : étude des processus et détermination des sources à l'échelle régionale et globale en afrique. *Thèse de l'Université Paul Sabatier Toulouse III.*
- Cachier, H. (1998). Carbonaceous Combustion Aerosols. *Atmospheric Particles, Edited by R.M. Harrison and R. Van Grieken, John Wiley & Sons Ltd.*
- Cachier, H., F. Aulagnier, R. Sarda, F. Gautier, P. Masclet, J.-L. Besombes, N. Marchand, S. Despiau, D. Croci, M. Mallet, P. Laj, A. Marinoni, P.-A. Deveau, J.-C.

- Roger, J.-P. Putaud, R. Van Dingenen, A. Dell'Acqua, J. Viidanoja, S. Martins-Dos Santos, C. Liousse, F. Cousin, and R. Rosset (2005). Aerosol studies during the ESCOMPTE experiment: an overview. *Atmospheric Environment*, accepted.
- Cachier, H., P. Buat-Ménard, M. Fontugne, and J. Rancher (1985). Sources terms and source strengths of the carbonaceous aerosols in the tropics. *Journal of Atmospheric Chemistry* 3, 469–489.
- Cachier, H., L. Liousse, and A. Gaudichet (1995). Particulate Content of Savanna Fire Emissions. *Journal of Atmospheric Chemistry* 22, 123–148.
- Cahoon, D., J. Levine, W. Cofer III, J. Miller, P. Minnis, G. Tennille, T. Yip, B. Stocks, and P. Heck (1991). The great Chinese fire if 1987: A view from space. *Global Biomass Burning, MIT Press, Cambridge, Mass., Edited by J. Levine*, 61–66.
- Carlson, T. (1980). Airflow through midlatitude cyclones and the comma cloud pattern. *Monthly Weather Review* 108(10), 1498–1509.
- Castro, L., C. Pio, H. R.M., and S. Smith (1999). Carbonaceous aerosol in urban and rural european atmospheres. Estimation of the secondary organic carbon concentrations. *Atmospheric Environment* 31, 2771–2781.
- Chang, J., R. Brost, I. Isaksen, S. Madronich, P. Middleton, W. Stockwell, and C. Walcek (1987). A three-dimensional eulerian acid deposition model: physical concepts and formulation. *Journal of Geophysical Research* 92, 14681–14700.
- Charlson, R., S. Schwartz, J. Hales, R. Cess, J. Coakley, J. Hansen, and D. Hofmann (1992). Climate forcing by anthropogenic aerosols. *Science* 255.
- Charnock, H. (1955). Wind stress on a water surface. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 81.
- Chazette, P. and C. Liousse (2001). A case study of optical and chemical ground appor-tionment for urban aerosols in Thessaloniki. *Atmospheric Environment* 35, 2497–2506.
- Chen, X., G. Sheng, X. Bi, Y. Feng, B. Mai, and J. Fu (2005). Emission factors for carbonaceous particles and polycyclic aromatic hydrocarbons from residential coal combustion in China. *Environ. Sci. Technol.* 39, 1861–1867.

- Chung, S. and J. Seinfeld (2002). Global distribution and climate forcing of carbonaceous aerosols. *Journal of Geophysical Research* 107(D19), 4407, doi:10.1029/2001JD001397.
- Cooke, W., B. Koffi, and J. Grégoire (1996). Seasonality of vegetation fires in Africa from remote sensing data application to a global chemistry model. *Journal of Geophysical Research* 101, 21.051–21.065.
- Cooke, W., C. Lioussé, and H. Cachier (1999). Construction of a 1°x1° fossil fuel emission data set for carbonaceous aerosol implementation and radiative impact in the ECHAM4 model. *Journal of Geophysical Research* 104 (22), 137–162.
- Cooke, W. and J. Wilson (1996). A global black carbon aerosol model. *Journal of Geophysical Research* 101, 19.395–19.409.
- Cooper, O., J. Moody, D. Parrish, M. Trainer, T. Reyerson, J. Holloway, G. Hühler, F. Fehsenfeld, and M. Evans (2002). Trace gas composition of midlatitude cyclones over the western North Atlantic Ocean : a conceptual model. *Journal of Geophysical Research* 107(D7), doi:10.1029/2001JD000901.
- Cousin, F. (2004). Modélisation de l'interaction dynamique - chimie - aérosol : campagne ESCOMPTE 2001. *Thèse de l'Université Paul Sabatier Toulouse III*, 165pp.
- Cousin, F., C. Lioussé, H. Cachier, B. Bessagnet, B. Guillaume, and R. Rosset (2005). Aerosol modelling and validation during ESCOMPTE 2001. *Atmospheric Environment*, in press.
- Crassier, V. (1999). Développement et quantification dy système de modélisation physico-chimique meso-nh-c : analyses de sensibilité de la pollution urbaine. *Thèse de l'Université Paul Sabatier Toulouse III*, 157pp.
- Crassier, V., K. Suhre, P. Tulet, and R. Rosset (2000). Development of a reduced chemical scheme for use in mesoscale meteorological models. *Atmospheric Environment* 34, 2633–2644.
- Crutzen, P. and M. Andreae (1990). Biomass burning in the tropics : impact on atmospheric chemistry and biogeochemical cycles. *Science* 250, 1669–1678.
- Cuxart, J., P. Bougeault, and J. Redelsperger (2000). Planetary boundary layer si-

- mulation from LES to general circulation models. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 102, 405–418.
- Déandreis, C. (2004). Application du module ORISAM à plusieurs environnements : zoom sur la formation chimique des particules organiques. *DEA, Université Paul Sabatier Toulouse III*, 33pp.
- Dickerson, R., M. Andreae, T. Campos, O. Mayol-Bracero, C. Neusuess, and D. G. Streets (2002). Analysis of black carbon and carbon monoxide observed over the Indian Ocean : Implications for emissions and photochemistry. *Journal of Geophysical Research* 107(D19), 8017, doi:10.1029/2001JD000501.
- Dignon, J. and J. Penner (1996). Biomass burning : a source of nitrogen oxides in the atmosphere. *Biomass Burning and Global Change, MIT Press, Cambridge, Mass., Edited by J. Levine*.
- Donnadille, J. (2000). Dynamique d'altitude dans un cas de cyclogénèse au nord du courant-jet polaire pendant FASTEX : étude diagnostique et numérique. *Thèse de l'Université Paul Sabatier Toulouse III*, 197pp.
- Durrán, D. (1989). Improving the anelastic approximation. *Journal of Atmospheric Sciences* 46, 1453–1461.
- Eastwood, J., S. Plummer, B. Wyatt, and B. Stocks (1998). The potential of SPOT-Vegetation data for fire scare detection in boreal forests. *International Journal of Remote Sensing* 19, 3681–3687.
- Ershov, D. and V. Novik (2001). Features of burnt area mapping in forest of Siberia using SPOT S1-VGT data. *GOFI Fire Satellite Product Validation Workshop, Lisbon (Gulbenkian Foundation)*.
- Eva, D. and E. Lambin (1998). Burnt area mapping in central Africa using ATSR data. *International Journal of Remote Sensing* 19(18), 3473–3497.
- Fassi Fihri, A., S. K., and R. Rosset (1997). Internal and external mixing in atmospheric aerosols by coagulation : impact on the optical and hygroscopic properties of the sulphate-soot system. *Atmospheric Environment* 31, 1393–1402.
- Ferek, R., J. Reid, and P. Hobbs (1998). Emission factors of hydrocarbons, halocarbons,

- trace gases and particles from biomass burning in Brazil. *Journal of Geophysical Research* 103(D24), 32,107–32,118.
- Foell, W., C. Green, M. Amann, S. Bhattacharya, G. Carmichael, M. Chadwick, S. ClIn-derby, T. Haugland, J.-P. Hettlingh, L. Hordijk, J. Kuylenstierna, J. Shah, R. Shers-
tha, S. Streets, and D. Zhao (1995). Energy use, emissions, and air pollution reduc-
tion strategies in Asia. *Water Air Soil Pollution* 85, 2277–2282.
- Fraser, R. and Z. Li (2002). Estimating fire-related parameters in boreal forest using
SPOT-Vegetation. *Remote Sensing Environment* 82, 95–110.
- Friedlander, S. (1977). Smoke, dust, and haze, fundamentals of aerosols dynamics. *Ox-
ford University Press 2nd edition*.
- Fuelberg, H., C. Kiley, J. Hannan, D. Westerg, M. Avery, and R. Newell (2003). Me-
teorological conditions and transport pathways during the Transport and Chemi-
cal Evolution over the Pacific (TRACE-P) experiment. *Journal of Geophysical Re-
search* 108(D20), 8782, doi :10.1029/2002JD003092.
- Gal-Chen, T. and R. Sommerville (1975). On the use of coordinate transformation for
the solution of the Navier-Stokes equation. *Journal of Computational Physics* 17,
209–228.
- Gaudichet, A., F. Echalar, B. Chatenet, J. Quisefit, G. Malingre, H. Cachier, P. Buat-
Ménard, P. Artaxo, and W. Maenhaut (1995). Trace Elements in Tropical African
Savanna Biomass Burning Aerosols. *Journal of Atmospheric Chemistry* 22, 19–39.
- Gheusi, F. and J. Stein (2002). Lagrangian descriptio, of air-flows using eulerian passive
tracers. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society* 128, 337–360.
- Grégoire, J.-M., K. Tansey, and J. Silva (2003). The GBA2000 initiative: Developing
a global burned area database from SPOT-VEGETATION imagery. *International
Journal of Remote Sensing* 24(6), 1369–1376.
- Grosjean, D. and J. Seinfeld (1989). Parameterization of the formation potential of
secondary organic aerosols. *Atmospheric Environment* 23, 1733–1747.
- Hansen, J. and M. Sado (2001). Trends of measured climate forcing agents. *Proceeding
of the National Academy of Science* 98(26), 14778–14783.

- Hansen, M., R. DeFries, J. Townshend, and R. Sohlberg (2000). Global land cover classification at 1 km resolution using a decision tree classifier. *International Journal of Remote Sensing* 21, 1331–1365.
- Hao, W., M. Liu, and P. Crutzen (1990). Estimates of annual and regional releases of CO₂ and other trace gases to the atmosphere from fires in the tropics, based on the FAO Statistics for the period 1975-1980. *Fire in the Tropical Biota*, J.C. Goldammer.
- Harrington, D. and S. Kreidenweis (1998). Simulation of sulfate aerosol dynamics, part II. Model intercomparison. *Atmospheric Environment* 32(10), 1701–1709.
- Haywood, J. and K. Shine (1995). The effect of anthropogenic sulfate and soot aerosol on the clear sky planetary radiation budget. *Geophysical Research Letter* 22, 603–606.
- Hegg, D., J. Livingston, P. Hobbs, T. Novakov, and P. Russel (1997). Chemical apportionment of aerosol column optical depth off the Mid-Atlantic Coast of the United States. *Journal of Geophysical Research* 102(25), 293–303.
- Hesstvedt, E., O. Hov, and I. Isaken (1978). A quasi-steady state approximation in air pollution modelling : comparaison of two numerical schemes for oxidant prediction. *International Journal of Chemical Kinetics* 10, 4148–4156.
- Hildemann, L., G. Cass, and G. Markowski (1989). A dilution stack sampler to collection of organic aerosol emissions : design, characterization and field tests. *Aerosol Science Technology* 10, 193–204.
- Hoffa, E., D. Ward, W. Hao, R. Susott, and R. Wakimoto (1996). Seasonality of carbon emissions from biomass burning in a Zambian savanna. *Journal of Geophysical Research* 104(D11), 13841–13853.
- Huebert, B., T. Bates, P. Russell, G. Shi, Y. Kim, K. Kawamura, G. Carmichael, and T. Nakajima (2003). An overview of ACE-Asia: Strategies for quantifying the relationships between Asian aerosols and their climatic impacts. *Journal of Geophysical Research* 108(D23), 8633, doi :10.1029/2003JD003550.
- Hurst, D., D. Griffith, and G. Cook (1994). Trace gas emissions from biomass burning

- in tropical Australian savannas. *Journal of Geophysical Research* 99(D8), 16441–16456.
- Jacob, D. J. (2000). Heterogeneous chemistry and tropospheric ozone. *Atmospheric Environment* 34, 2131–2159.
- Jacob, D. J., J. H. Crawford, M. M. Kleb, V. E. Connors, R. J. Bendura, J. L. Raper, G. W. Sachse, J. C. Gille, L. Emmons, and C. L. Heald (TRACE-P special section, 2003). The transport and chemical evolution over the Pacific (TRACE-P) aircraft mission: Design, execution and first results. *Journal of Geophysical Research*.
- Jacobson, M. (2002). Control of fossil-fuel particulate black carbon and organic matter, possibly the most effective method of slowing global warming. *Journal of Geophysical Research* 107, 4410, doi:10.1029/2001JD001376.
- Jacobson, M. Z. (1997). Development and application of a new air pollution modelling system-ii. Aerosol module structure and design. *Atmospheric Environment* 31, 131–144.
- Joshi, V. (1991). Biomass Burning in India. *Global Biomass Burning, MIT Press, Cambridge, Mass., Edited by J. Levine*, 185–193.
- Josse, B., P. Simon, and V.-H. Peuch (2004). Radon global simulations with multiscale chemistry and transport model. *TELLUS* 56B, 339–356.
- Kain, J. and J. Fritsch (1993). A one-dimensional entraining/detraining plume model and its application in convective parameterizations. *Journal of Atmospheric Sciences* 47, 2784–2802.
- Kanakidou, M. and K. Tsigaridis (2000). Human activity enhances the formation of organic aerosols by biogenic hydrocarbon oxidation. *Journal of Geophysical Research* 12, 9243–9254.
- Kasischke, E., B. Stocks, K. O'Neill, N. French, and L. Bourgeau-Chavez (2000). Direct effect of fire on the boreal forest carbon budget. *Biomass burning and its interrelationships with the climate system. Dordrecht, Boston, London, Kluwer Academic Publishers, Edited by J.L. Innes, M.M. Verstraete.*, 61–71.

- Keller, M., D. Jacob, S. Wofsy, and R. Harris. (1991). Effects of Tropical Deforestation on Global and Regional Atmospheric Chemistry. *Climatic Change*.
- Kim, Y. and J. Seinfeld (1995). Atmospheric gas-aerosol equilibrium: Iii, thermodynamics of crustal elements Ca^{2+} , K^+ and Mg^{2+} . *Aerosol Sciences and Technology* 23, 131–154.
- Kulmala, M., A. Laaksonen, and L. Pirjola (1998). Parametrizations for sulfuric acid/water nucleation rates. *Journal of Geophysical Research* 107(D7), 8301–8307.
- Lacaux, J., H. Cachier, and R. Delmas (1993). Biomass burning in Africa: An overview of its impact on atmospheric chemistry. *Fire in the Environment: The Ecological, Atmospheric and Climatic Importance of Vegetation Fires*. Edited by P.J. Crutzen and J.G. Goldammer, Chichester, England, John Wiley & Sons Ltd 22, 159–216.
- Lacaux, J., R. Delmas, B. Cros, B. Lefeuvre, and M. Andreae (1991). Influence of biomass burning on precipitation chemistry in the equatorial forests of Africa. *Global Biomass Burning*, MIT Press, Cambridge, Mass., Edited by J. Levine, 167–173.
- Lafore, J., J. Stein, P. Bougeault, V. Ducrocq, J. Duron, C. Fischer, P. Hérelil, P. Marcant, V. Masson, J.-P. Pinty, J. Redelsperger, E. Richard, and J. V. de Arellano (1998). The Meso-NH atmospheric simulation system. Part I: adiabatic formulation and control simulations. *Annales Geophysicae* 16, 90–109.
- Lavoué, D., C. Lioussé, H. Cachier, B. Stocks, and J. Goldammer (2000). Modeling of carbonaceous particles emitted by boreal and temperate wildfires at northern latitudes. *Journal of Geophysical Research* 105(D22), 26,871–26,890.
- Lerner, J., E. Matthews, and F. I. (1988). Methane emission from animals: A global High-Resolution Database. *Global Biogeochemical Cycles* 2, 139–156.
- Levine, J. (1991). Introduction in Global Biomass Burning: Atmospheric, Climatic, and Biospheric Implications, MIT Press, Cambridge. *Global Biomass Burning*, MIT Press, Cambridge, Mass, Edited by J. Levine, xxv–xxx.
- Levine, J. (2000). Global biomass burning: A case study of the gaseous and particulate emissions released to the atmosphere during the 1997 fires in Kalimantan and Sumatra, Indonesia. *Biomass burning and its inter-relationships with the climate*

- system. Dordrecht, Boston, London, Kluwer Academic Publishers, Edited by J.L. Innes, M.M. Verstraete.*, 15–31.
- Lioussé, C., M. Andreae, P. Artaxo, P. Barbosa, H. Cachier, J. Grégoire, P. Hobbs, D. Lavoué, F. Mouillot, J. Penner, M. Scholes, and M. Schultz (2004). Deriving global quantitative estimates for spatial and temporal distributions of biomass burning emissions. *Emissions of Atmospheric Trace Compounds, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, Boston, London, Edited by C. Granier, P. Artaxo and C.E. Reeves.*
- Lioussé, C., C. Devaux, F. Dulac, and H. Cachier (1995). Aging of savanna biomass burning aerosols: consequences of their optical properties. *Journal of Atmospheric Chemistry* 22, 1–17.
- Lioussé, C., B. Guillaume, C. Michel, C. Junker, J.-G. Grégoire, and H. Cachier (2004). Recent developments for Carbonaceous Aerosol inventories in 1950-2100 time period. *8th international conference on carbonaceous aerosol, Vienna, september 2004.*
- Lioussé, C., C. Michel, B. Bessagnet, H. Cachier, and R. Rosset (2005). 0D-Modelling of Carbonaceous Aerosols over Greater Paris focusing on the organic particle formation. *Journal of Atmospheric Chemistry*, in press.
- Lioussé, C., J. Penner, C. Chuang, J. Walton, H. Eddleman, and H. Cachier (1996). A global three-dimensional model study of carbonaceous aerosols. *Journal of Geophysical Research* 101(19), 411–432.
- Liu, H., J. Jacob, I. Bey, R. Yantosca, B. Duncan, and G. Sachse (2003). Transport pathways for asian pollution outflow over the pacific: Interannual and seasonal variation. *Journal of Geophysical Research* 108(D20), 8786, doi:10.1029/2002JD003102.
- Lobert, J., D. Scharffe, T. Kuhlbusch, R. Seuwen, P. Warneck, and P. Crutzen (1991). Experimental evaluation of biomass burning emissions: nitrogen and carbon-containing compounds. *Global Biomass Burning, MIT Press, Cambridge, Edited by J. Levine*, 289–304.
- Lobert, J. and J. Warnatz (1993). Emissions from the Combustion Process in Vegetation. *Fire in the Environment: The Ecological, Atmospheric, and Climatique*

- Importance of Vegetation Fires, Edited by P.J. Crutzen and J.G. Goldammer, John Wiley & Sons Ltd.*
- Léon, J., P. Chazette, J. Pelon, F. Dulac, and H. Randriamarisoa (2003). Aerosol direct radiative forcing impact over INDOEX area based on active and passive remote sensing. *Journal of Geophysical Research*, submitted.
- Louis, J. (1979). A parametric model for vertical eddy fluxes in the atmosphere. *Boundary-Layer Meteorology* 17, 187–202.
- Mader, B. T., R. C. Flagan, and J. H. Seinfeld (2002). Airborne measurements of atmospheric carbonaceous aerosol during ACE-Asia. *Journal of Geophysical Research* 107(D23), 4704, doi:10.1029/2002JD002221.
- Madronich, S. (1987). Photodissociation in the Atmosphere: 1. Actinic flux and the effects of ground reflections and clouds. *Journal of Geophysical Research* 92, 9710–9752.
- Mallet, M. (2003). Etude des propriétés microphysiques et optiques de l'aérosol en zone péri-urbaine durant Escompte. Estimation de l'impact radiatif direct. *PhD thesis, University of Toulon and Var*, 135pp.
- Mallet, M., V. Pont, and C. Lioussé (2005). Modelling of strong heterogeneities in aerosol single scattering albedos over a polluted region. *accepted to Geophysical Research Letter*.
- Maloney, J., H. Fuelberg, M. Avery, J. Crawford, D. Blake, B. Heikes, G. Sachse, S. Sandholm, H. Singh, and R. Talbot (2001). Chemical characteristics of air from different source regions during the second Pacific Exploratory Mission in the Tropics (PEM-Tropics B). *Journal of Geophysical Research* 106, 33,609–32,625.
- Mari, C., K. Shure, R. Rosset, T. Bates, B. Huebert, A. Bandy, D. Thornton, and S. Buisignier (1999). 1D-modelling of sulfur species during the First Aerosol Characterisation Experiment (ACE1) Lagrangian B. *Journal of Geophysical Research* 104(D13), 21733–21749.
- Martin, B., H. Fuelberg, N. Blake, J. Crawford, J. Logan, D. Blake, and G. Sachse (2002). Long range transport of Asian outflow to the equatorial Pacific. *Journal of*

- Geophysical Research* 108(D2), 8233, doi:10.1029/2001JD001418.
- Mascart, P., J. Noilhan, and H. Giordani (1995). A modified parameterization of flux-profile relationships in the surface layer using different roughness length values for heat and momentum. *Boundary-Layer Meteorology* 72, 331–344.
- Masclat, P., H. Cachier, C. Lioussé, and H. Wortham (1995). Emissions of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons by savannas fires. *Journal of Atmospheric Chemistry* 22, 41–54.
- Matsumoto, K., M. Uematsu, T. Hayano, K. Yoshioka, H. Tanimoto, and T. Iida (2003). Simultaneous measurements of particulate elemental carbon on the ground observation network over the western North Pacific during the ACE-Asia campaign. *Journal of Geophysical Research* 108(D23), 8635, doi:10.1029/2002JD002744.
- Menon, S., J. Hansen, L. Nazarenko, and Y. Luo (2002). Climate effects of black carbon aerosols in China and India. *Science* 297, 2250–2253.
- Merrill, J., R. Bleck, and L. Avila (1985). Modeling atmospheric transport to the Marshall Islands. *Journal of Geophysical Research* 90(D7), 12,927–12,936.
- Merrill, J. and J. Kim (2004). Meteorological Events and Transport Patterns in ACE-Asia. *Journal of Geophysical Research* 109(D19S18), doi:10.1029/2003JD004124.
- Merrill, J., N. R.E., and A. Bachmeier (1997). A meteorological overview of the Pacific Exploratory Mission-West Phase B. *Journal of Geophysical Research* 102, 28,241–28,253.
- Michel, C. (2001). Etude de l'aérosol carboné en zone urbaine. *DEA, Université Paul Sabatier Toulouse III*, 40pp.
- Michel, C., C. Lioussé, J.-M. Grégoire, K. Tansey, G. Carmichael, and J.-H. Woo (2005). Biomass Burning emission inventory from burnt area given by SPOT-Vegetation system in the frame of TRACE-P and ACE-Asia campaigns. *Journal of Geophysical Research* 110, D09304,doi:10.1029/2004JD005461.
- Middleton, P., W. Stockwell, and W. Carter (1990). Aggregation and analysis of volatile organic compound emissions for regional modeling. *Atmospheric Environment* 24A, 1107–1133.

- Morcrette, J. (1989). Physical parameterizations of the ECMWF model. *Technical report, ECMWF, Reading, UK.*
- Moucheron, M. and J. Milford (1996). Development and testing of a process model for secondary organic aerosols. *Air and Waste Management Association, Nashville.*
- Nenes, A., C. Pilinis, and S. Pandi (1998). ISORROPIA: A new thermodynamic model for inorganic multicomponent atmospheric aerosols. *Aquatic Geochemistry 4*, 123–152.
- Noilhan, J. and S. Planton (1989). A simple parameterization of land surface processes for meteorological models. *Monthly Weather Review 117*, 536–549.
- Novakov, T., M. O. Andreae, R. Gabriel, T. W. Kirchstetter, M. O. Mayol-Bracero, and V. Ramanathan (2000a). Origin of carbonaceous aerosol over the tropical Indian Ocean: Biomass burning or fuel fossil? *Geophysical Research Letter 27*(24), 4061–4064.
- Novakov, T., T. Bates, and P. Quinn (2000b). Shipboard measurements of concentrations and properties of carbonaceous aerosols during ACE-2. *52B*, 228–238.
- Odum, J., T. Hoffmann, F. Bowman, D. Collins, R. Flagan, and J. Seinfeld (1996). Gas/particle partitioning and secondary aerosol yield. *Environ. Sci. Technol. 31*, 1890–1897.
- Olivier, J. and J. Berdowski (2001). Global emission sources and sinks. *The Climate System. Edited by J. Berdowski, Guicherit, R., Heij, B.J. Lisse, The Netherlands, A.A Balkema Publishers/Swets & Zeitlinger Publishers*, 33–78.
- Olivier, J., A. Brouwman, J. Berdowski, J. Bloos, A. Visschedijk, C. van der Mass, and P. Zandveld (1999). Sectorial emission inventory of greenhouse gases for 1990 on a per country basis as well as on 1x1 degrees. *Environ. Sci. Policy 2*, 241–263.
- Olivier, J., A. Brouwman, C. Van der Maas, J. Berdowski, C. Veldt, J. Bloos, A. Visschedijk, P. Zandveld, and J. Haverlag (1996). Description of EDGAR Version 2.0: A set of global inventories of greenhouse gases and ozone depleting substances for all anthropogenic and most biogenic sources on a per country basis and on 1°x1° grid. *RIV. Bilthoven, December 1996, RIVM Report nr. 7710+0 002 / TNO-MEP*

report nr. R96/119.

- Olson, J., J. Watts, and L. Allisson (1985). Major world ecosystem complexes ranked by carbon in live vegetation : a database NPD017. *Carbon Dioxide Information Center, Oak Ridge Laboratory, Oak Ridge, Tennessee.*
- Palacios, A., E. Chuvieco, and C. Carmona-Moreno (2002). FUEGO II Project - Development of Global Fire Analysis GIS Modules - Trace Gas Emission Estimation in Biomass Burning. *Publications of the European Commission. Luxembourg, Office for Official Publications of the European Communities EUR 20376, EN : 41.*
- Pandis, S., R. Harley, G. Cass, and J. Seinfeld (1992). Secondary organic aerosol formation and transport. *Atmospheric Environment 26A(13)*, 2269–2282.
- Pankow, J. (1987). Review and comparative analysis of the theories on partitioning between the gas and aerosol particulate phases in the atmosphere. *Atmospheric Environment 21(11)*, 2275–2283.
- Pankow, J. and F. Bidleman (1992). Interdependence of the slopes and intercepts from log-log correlations of measured gas-particle partitioning and vapor pressure - I. Theory and analysis of available data. *Atmospheric Environment 26A(6)*, 1071–1080.
- Penner, J. (1998). Carbonaceous aerosols influencing atmospheric radiation : black and organic carbon. *Aerosol Forcing of Climate, Edited by R.J. Charlson and J. Heintzenberg, John Wiley and Sons, Chichester*, 91–108.
- Penner, J., C. Chuang, and C. Liou (1996). The contribution of carbonaceous aerosols to climate change. *Nucleation and Atmospheric Aerosol, M. Kulmala and P.E. Wagner. Ltd, Elsevier Science*, 759–769.
- Peuch, V., M. Amodei, T. Barthet, M. Cathala, B. Josse, M. Michou, and P. Simon (1999). MOCAGE : Modèle de Chimie A Grande Echelle. *AMA CNRM, Toulouse, France.*
- Pinty, J.-P. and P. Jabouille (1998). A mixed-phase cloud parametrization for use in mesoscale non-hydrostatic model : simulations of a squall line and of orographic precipitation. *American Meteorology Society 107*, 217–220.
- Pun, B., R. Griffin, C. Seigneur, and J. Seinfeld (2002). Secondary organic aerosol :

2. thermodynamic model for gas/particle partitioning of molecular constituents. *Journal of Geophysical Research* 107, doi.101029/2001JD00542.
- Putaud, J.-P., U. Baltensperger, E. Brüggemann, M. Facchini, S. Fuzzi, R. Gehrig, H. Hansson, R. Harrison, A. Jones, P. Laj, W. Maenhaut, N. Mihalopoulos, K. Müller, F. Palmgren, X. Querol, S. Rodriguez, G. Spindler, H. ten Brink, P. Tunved, R. Van Dingenen, B. Wehner, E. Weingartner, A. Wiedensohler, P. Wahlin, and F. Raes (2003). A European aerosol phenomenology. Physical and chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in europe. *Joint Research Centre, European Commission, EUR 20411 EN*.
- Ramanathan, V., a. C. P., J. Coakley, A. Clarke, W. Collins, R. Dickerson, D. Fahey, B. Gandrud, A. Heymsfield, J. Kiehl, J. Kuettner, T. Krishnamurti, D. Lubin, H. Maring, J. Ogren, J. Prospero, P. Rasch, D. Savoie, G. Shaw, A. Tuck, F. Valero, E. Woodbridge, and G. Zhang (1996). Indian Ocean Experiment (INDOEX), a multi-agency proposal for a field experiment in the Indian Ocean. *C4 (Central Equatorial Pacific Experiment (CEPEX) and INDOEX) publication*.
- Ramanathan, V. and P. Crutzen (2003). New direction: Atmospheric Brown Clouds. *Atmospheric Environment* 37, 4033–4035.
- Rasbash, D. and D. Drysdale (1982). Fundamentals of smoke production. *Fire Safety Journal* 5, 77–86.
- Reddy, S. and C. Venkataraman (2001). Inventory of aerosol and sulphur dioxide emissions from India. Part II - biomass combustion. *Atmospheric Environment* 36, 699–712.
- Reid, J., P. Hobbs, R. Ferek, D. Blake, J. Martins, M. Dunlap, and C. Liou (1998). Physical, chemical and optical properties of regional hazes dominated by smoke in brazil. *Journal of Geophysical Research* 103, 32,059–32,080.
- Rotstajn, L. and U. Lohmann (2002). Tropical rainfall trends and the indirect aerosol effect. *Journal of Climate* 15(15), 2106–2116.
- Ruellan, S. and H. Cachier (2001). Characterisation of fresh particulate vehicular exhausts near a paris high flow road. *Atmospheric Environment* 35, 453–468.

- Sauvage, B. (2004). Analyses des distributions d’ozone et de monoxyde de carbone en Afrique Equatoriale à partir des données du programme aéroporté MOZAIC. *Thèse de l’Université Paul Sabatier Toulouse III*, 202pp.
- Schmidt, H., L. Laskus, H. Abraham, U. Baltensperger, V. Lavanchy, M. Bizjak, P. Burba, H. Cachier, D. Crow, J. Chow, T. Gnauk, A. Even, H. Brink, K. Giesen, R. Hitzenberger, C. Hueglin, W. Maenhaut, C. Pio, A. Carvalho, J.-P. Putaud, D. Toom-Sauntry, and H. Puxbaum (2001). Results of the carbon conference international aerosol carbon round robin test stage 1. *Atmospheric Environment* 25, 2111–2121.
- Seigneur, C., A. Hudischewskyj, S. J.H., K. Whitby, E. Whitby, J. Brock, and H. Barnes (1986). Simulation of aerosol dynamics: a comparative review of mathematical models. *Aerosol Sciences and Technology* 5, 205–222.
- Seiler, W. and P. Crutzen (1980). Estimates of gross and net fluxes of carbon between the biosphere and the atmosphere from biomass burning. *Climatic Change* 2, 207–248.
- Seinfeld, J. and S. Pandis (1998). Atmospheric Chemistry and Physics. *Wiley, New-York*.
- Shaw, G. (1989). Production of condensation nuclei in clean air by nucleation of H_2SO_4 . *Atmospheric Environment* 23, 2841–2846.
- Sheehan, P. and F. Bowman (2001). Estimated effects of the temperature on secondary organic aerosol concentrations. *Environ. Sci. Technol.* 35(11), 2129–2135.
- Smolarkiewicz, P. and W. Grabowski (1990). The multidimensional positive definite advection transport algorithm: nonoscillatory option. *Journal of Computational Physics* 86, 355–375.
- Solmon, F. (2001). Modélisation méso-échelle des émissions biogéniques d’hydrocarbures volatiles en France. *Thesis. Institut Nationale d’Agronomie. Paris-Grignon*.
- Stockwell, W., P. Middleton, J. Chang, and X. Tang (1990). The second generation Regional Acid Deposition Model chemical mechanism for regional air quality modeling. *Journal of Geophysical Research* 95(16), 343–16 – 367.

- Stockwell, W. R., F. Kirchner, M. Kuhn, and S. Seefeld (1997). A new mechanism for Regional Atmospheric Chemistry Modeling. *Journal of Geophysical Research* 102, 25847–25879.
- Streets, D., T. Bond, G. Carmichael, S. Fernandes, Q. Fu, D. He, Z. Klimont, S. Nelson, N. Tsai, M. Wang, J.-H. Woo, and K. Yarber (2003). An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000. *Journal of Geophysical Research* 108(D21, 8809), doi:10.1029/2002JD003093.
- Streets, D., G. Carmichael, M. Amann, and R. Arnd (1999). Energy consumption and acid deposition in Asia. *Ambio* 28, 135–143.
- Streets, D. and S. Waldhoff (1998). Emissions of black carbon in china in 1995 and 2020. *Report for the China-MAP Projet, October 16.*
- Streets, D. and S. Waldhoff (2000). Present and future emissions of air pollutants in China: SO₂, NO_x, and CO. *Atmospheric Environment* 34, 363–374.
- Streets, D., K. Yarber, J.-H. Woo, and G. Carmichael (2003). Biomass burning in Asia : annual and seasonal estimates and atmospheric emissions. *Global Biogeochemical Cycles* 17(4), 1099, doi:10.1029/2003GB002040.
- Suhre, K., V. Crassier, C. Mari, R. Rosset, D. Johnson, S. Osborne, R. Wood, M. Andreae, B. Bandy, T. Bates, S. Businger, C. Gerbig, F. Raes, and J. Rudolph (2000). Chemistry and aerosols in the marine boundary layer : 1-D modelling of the three ACE-2 Lagrangian experiments. *Atmospheric Environment* 34, 5079–5094.
- Tansey, K. (2002). Implementation of regional burnt area algorithms for the GBA2000 initiative. *Publication of the European Commission EUR20532*, pp. 159.
- Tansey, K., J.-M. Grégoire, E. Binaghi, L. Boschetti, P. Brivio, D. Ershov, S. Flasse, R. Fraser, D. Graetz, M. Maggi, P. Peduzzi, J. Pereira, J. Silva, A. Sousa, and D. Stroppiana (2005). A global inventory of burned areas at 1 km resolution for the year 2000 derived from SPOT VEGETATION data. *Climatic Change* 67(2), 345–377, doi:10.1007/s10584-004-2800-3.
- Tansey, K., J.-M. Grégoire, D. Stroppiana, A. Sousa, J. Silva, J. Pereira, L. Boschetti, M. Maggi, P. Brivio, R. Fraser, S. Flasse, D. Ershov, E. Binaghi, D. Graetz,

- and P. Peduzzi (2004). Vegetation burning in the year 2000: Global burned area estimates from SPOT VEGETATION data. *Journal of Geophysical Research* 109(D14S03), doi:10.1029/2003JD003598.
- Trentmann, J. and M. Andreae (2003). Vegetation burning in the year 2000: Global burned area estimates from SPOT VEGETATION data. *Journal of Geophysical Research* 108(D22), 4705,doi:10.1029/2003JD003732.
- Trigg, S. and S. Flasse (2000). Characterizing the spectral-temporal response of burned savannah using in situ spectroradiometric and infrared thermometry. *International Journal of Remote Sensing* 21, 3161–3168.
- Tsang, T. and A. Rao (1988). Comparison of different numerical schemes for condensational growth of aerosols. *Aerosol Sciences and Technology* 9, 271–277.
- Tulet, P. (2000). Modélisation physico-chimique de la pollution régionale : impacts des divers processus de transport des polluants gazeux en situations complexes et tests de validations. *Thèse de l'Université Paul Sabatier Toulouse III*, 258pp.
- Tulet, P., V. Crassier, F. Solmon, D. Guedalia, and R. Rosset (2003). Regional pollution modelling - Description of the Meso-NH-C model and application to a transboundary pollution episode between northern France and southern England. *Journal of Geophysical Research* 108(D1 4021), doi:10.1029/2000JD000301.
- Wang, S., S. Paulson, R. Flagan, and J. Seinfeld (1992). Aerosol formation and growth in atmospheric organic/NO_x system - I. Outdoor smog chamber studies of C₇- and C₈- hydrocarbons. *Atmospheric Environment* 26(A), 403–420.
- Wang, Y., X. Zhang, R. Arimoto, J. Cao, and Z. Shen (2004). The transport pathways and sources of pm₁₀ pollution in beijing during spring 2001, 2002 and 2003. *Geophysical Research Letter* 31, doi:10.1029/2004GL019732.
- Warren, D. (1986). Nucleation and growth of aerosols. *Thesis*, California Institute of Pasadena. Pasadena.
- Wesely, M. and B. Hicks (1977). Some factors that affect the deposition rates of sulfur dioxide and similar gases on vegetation. *J. Air Pollut. Control ASS.* 27, 1110–1116.
- Wexler, A., F. Lurmann, and J. Seinfeld (1984). Modelling urban and regional aerosols

- I. model development. *Atmospheric Environment* 28(3).
- Whitby, K. (1991). Modal aerosol dynamics modeling. *Atm. Res. and Exposure Asses. Lab., U.S. Environ. Prot. Agency, Research Triangle Park, N.C.*
- Woo, J.-H., D. Streets, G. Carmichael, Y. Tang, B. Yoo, W. Lee, N. Thongboonchoo, S. Pinnock, G. Kurata, I. Uno, Q. Fu, S. Vay, G. Sachse, D. Blake, A. Fried, and D. Thornton (2003). Contribution of biomass and biofuel emissions to trace gas distributions in Asia during TRACE-P experiment. *Journal of Geophysical Research* 108(D21), 8812, doi:10.1029/2002JD003200.
- Yamasaki, H., K. Kuwata, and H. Miyamoto (1982). Effects of ambient temperature on aspects of airborne Polycyclic Aromatic Hydrocarbons. *Environ. Sci. Technol.* 16(4), 189–194.
- Zhang, R., M. Wang, X. Zhang, and G. Zhu (2003). Analysis on the chemical and physical properties of particles in a dust storm in spring in Beijing. *Powder Technology* 137, 77–82.
- Zhang, X., R. Arimoto, and Z. An (1997). Dust emission from Chinese desert sources linked to variations in atmospheric circulation. *Journal of Geophysical Research* 102(23), 28,041–28,047.

Annexe A

Procédure de traitement

GBA-2000/Russie

L'algorithme IFI (International Forest Institute) développé pour la Russie [Ershov and Novik, 2001] possède trois parties principales :

- le masquage des pixels contaminés
- la détection des pixels potentiellement brûlés et création d'une image composite intermédiaire
- la correction par masque des surfaces potentiellement brûlées

Cet algorithme utilise les produits journaliers S1 de SPOT-VEGETATION. Pour prendre en compte l'importante variabilité temporelle et spatiale de la couverture végétale, l'algorithme utilise des informations statistiques sur des régions de 200 km par 200 km. Cela permet de minimiser l'influence de facteurs comme la modification de la forêt au printemps et à l'automne et de tenir compte des histogrammes des classes de couverture non forestières. De plus, l'algorithme IFI fait une distinction entre les surfaces herbacées et les surfaces non herbacées (i.e. forêts, régions boisées et cultures) en assignant certaines valeurs seuil au sein de l'algorithme de détection des surfaces brûlées. Les informations concernant l'occupation des sols sont dérivées de la carte de végétation de l'Université du Maryland (UMD Global Landcover Product) [Hansen *et al.*, 2000]. Le produit de sortie immédiat du traitement par l'algorithme IFI est une carte indiquant le nombre de fois que

chaque pixel a été détecté comme brûlé pendant la saison des feux. Un post-traitement est ensuite appliqué à cette carte pour produire la carte finale binaire (0/1) des surfaces brûlées/non brûlées.

La fenêtre Asie est trop vaste pour être traitée d'un seul bloc. D'autant plus que certaines phases du traitement doivent être appliquées sur de petits blocs de données (200 km par 200 km). La fenêtre est donc divisée en 9 régions présentant un chevauchement de 20 pixels.

La saison des feux est traitée en deux fois, ceci afin d'éliminer les erreurs éventuelles liées au changement phénologique de la forêt causant des changements significatifs du signal spectral. Une période d'été a été définie qui inclue les mois d'avril à août et une période d'automne pour les mois de septembre à octobre. Pour la période de la campagne ACE-Asia (mars-mai), l'algorithme d'été a été appliqué.

A.1 Module d'extraction

Ce module permet d'extraire les données de la zone à traiter du jeu de données global (données SPOT-VEGETATION et carte du mode d'occupation du sol (UMD)). La zone traitée ici correspond à 1 Gb/jour extraite de 6,6 Gb/jour (archive globale).

A.2 Module de prétraitement

Le but de cette phase de prétraitement est de produire des images journalières qui soient :

- Sans pixels contaminés par les nuages, l'ombre des nuages, la neige, les nuages minces et la fumée des feux
- Sans les données qui ont été acquises aux angles zénithaux extrêmes
- Sans les pixels affectés par la saturation dans la bande MIR (Moyen Infra-Rouge)

- La première étape est de **masquer les nuages et la neige**.

Les recherches ont montré qu'il est nécessaire d'appliquer des valeurs seuil différentes selon que l'on traite une surface à couvert herbacé ou non-herbacé. Pour déterminer si la surface est herbacée ou non, la carte du mode d'occupation des sols est utilisée comme une variable d'entrée.

Un pixel est classifié comme **nuageux** si :

BO (bleu) > 500, MIR (moyen infra-rouge) > 500 et classe(UMD) = classe 10 (grassland)

ou

BO (bleu) > 200, MIR (moyen infra-rouge) > 500 et classe(UMD) \neq 10

Un pixel est classifié comme **enneigé** si :

B0 (bleu) > 500, MIR (moyen IR) < 500 et classe(UMD) = 10 (grassland)

ou

B0 (bleu) > 200, MIR (moyen IR) < 500 et classe(UMD) \neq 10 (grassland)

Le programme de masquage des nuages est appliqué 4 fois, pour pouvoir prendre en compte les quatre différents scénarii, en rassemblant les masques de nuages et les masques de neige pour les deux types de couvert végétal et puis multipliant les masques neige et nuage entre eux : un masque composite **nuage et neige** est ainsi créé.

- La deuxième étape consiste à **éliminer les données acquises aux angles zénithaux extrêmes**. L'algorithme IFI élimine tous les pixels avec une valeur d'angle zénithal supérieure à 50,5 degrés.

Le masque binaire des angles zénithaux est ensuite appliqué aux masques de neige et de nuage précédemment obtenus pour obtenir une version actualisée d'un nouveau masque (sans nuage, sans neige et sans pixel acquis à des angles de vue extrême).

- La phase suivante est de **masquer les pixels qui peuvent être affectés par des nuages minces et les fumées des feux**. Pour cela, une valeur index ($I_{B2/B0}$) de DN (Digital Number) de la bande B2 (rouge) divisée par le DN de la bande B0 (bleu) est

calculée pour chaque pixel restant. La valeur moyenne de l'index $I_{B2/B0}$ des pixels restants pour chaque pixel des blocs de 200 km par 200 km est donc calculée. Les pixels qui ont un index supérieur à la valeur moyenne sont exclus de cette analyse. Les pixels qui sont exclus sont des données « propres » et la valeur 1 leur est assignée pour le masque nuage mince/fumée de feux. L'écart type des pixels qui ont des valeurs d'index inférieures à la valeur moyenne est calculée ($SD(I_{B2/B0})$). Un pixel est déterminé comme étant « propre » si les conditions suivantes sont satisfaites :

Si $I_{B2/B0} > 1 + 0,75 \times SD(I_{B2/B0})$ et $B0$ (bleu) ≤ 190 et classe(UMD)=10 (grassland)

ou

Si $I_{B2/B0} > 1 + 0,75 \times SD(I_{B2/B0})$ et $B0$ (bleu) ≤ 120 et classe(UMD) $\neq 10$ (grassland)

Si la situation est différente, alors le pixel est considéré comme étant contaminé soit par les nuages minces soit par les fumées de feux.

- L'étape suivante consiste à **dilater les masques des nuages, de la neige et des fumées de feux** pour que les pixels juxtaposés aux pixels contaminés soient supprimés des données. Seule la première ligne de pixels juxtaposés aux pixels contaminés est supprimée. Le programme est appliqué séparément au masque de nuages, au masque de la neige, au masque des nuages minces et des fumées de feux avec le masque des angles zénithaux servant de référence à ces pixels considérés comme pouvant être érodables.

- Le stade suivant consiste à calculer **les pixels qui peuvent être affectés par les ombres de nuages** déterminés à partir de la présence des nuages et des fumées de feux. La méthode utilisée par l'algorithme IFI est de séparer le cercle entourant le pixel en 8 parties, correspondantes à 45 degrés pour chaque partie, et de définir une matrice dans une fenêtre de neuf sur neuf pixels. En fonction de la position du soleil, les masques des ombres de nuages (indiqués par les valeurs dans la matrice) sont appliqués dans la direction opposée à l'angle azimutale du soleil, où les ombres de nuages sont situées. La limitation de cette méthode est que les ombres de nuages peuvent parfois s'étendre au delà de la limite de la matrice des neuf sur neuf pixels, la totalité des ombres de nuages

n'étant donc pas détectées. Il a donc été décidé d'utiliser une méthode déjà développée et validée. Pour pouvoir appliquer cette méthode, il est tout d'abord nécessaire de multiplier entre eux le masque des nuages dilatés et le masque des nuages minces et des fumées de feux, car ces deux produits sont considérés comme capables de donner la distribution des ombres. Le programme appliqué utilise comme référence de hauteur des nuages 10.000 m. Il a été reconnu que cette hauteur de nuages est surestimée dans la plupart des cas, en particulier pour les pixels détectés comme contaminés par les fumées de feux : cette valeur a cependant été conservée par mesure de précaution.

- Une fois que le masque de nuages a été produit, la prochaine étape est de **vérifier et d'éliminer les pixels affectés par la saturation dans le moyen infra-rouge (MIR)**. L'IFI suggère d'utiliser les informations de qualité jointes aux données SPOT-VEGETATION S1. Mais il s'est avéré que ces informations n'étaient pas totalement fiables. Une approche plus simple a donc été adoptée, donnant des résultats satisfaisants. Une valeur seuil (1000) est appliquée au canal MIR et les deux pixels adjacents à gauche et à droite du pixel incriminé sont supprimés. Ce dernier stade a été ajouté après que les observations aient montré que la ligne de saturation n'affectait pas que la valeur du pixel adjacent, mais également le pixel situé à un cran supplémentaire. Les tests ont montré que la majorité des artefacts de saturation était éliminée avec succès.

- La dernière étape consiste à rassembler les fichiers « masque » pour **créer une image contenant tous les pixels contaminés**, qui sera utilisée dans la phase suivante du traitement. Les masques importants qui nécessitent d'être assemblés sont le masque des ombres de nuages, de saturation MIR, le masque de neige dilaté et le masque du mode d'occupation des sols non brûlable, produit lors de l'extraction des données de l'archive. A ce stade, tous les masques intermédiaires sont éliminés.

A.3 Module de détection des pixels brûlés

L'algorithme utilisé a été développé pour GBA-2000 pour la Russie, IFI (International Forest Institute) [Ershov and Novik, 2001]. Ce dernier traite les propriétés spectrales de la zone en la subdivisant en sous régions de 200 km par 200 km. Comme cet algorithme assigne des valeurs seuil différentes selon que la zone soit forestière ou non, un prétraitement est nécessaire pour discriminer les zones forestières des zones non forestières.

La première étape pour déterminer les surfaces brûlées est la création d'un index utilisant la bande B3 (proche IR) du produit journalier S1 ($S1_{B3}$) et un composite intermédiaire (IC) à partir de la bande B3 qui est continuellement actualisé sur une base journalière, avec les données non contaminées (IC_{B3}) (c'est à dire les données masquées).

L'index I_{B3B3} est calculé comme suit :

$$I_{B3B3} = (S1_{B3} - IC_{B3}) / (S1_{B3} + IC_{B3}) \quad (\text{A.1})$$

Les données pour lesquelles $S1_{B3}$ ou IC_{B3} sont égales à zéro sont supprimées. Si ces conditions particulières ne sont pas satisfaites, alors l'index I_{B3B3} n'est pas calculé pour ce pixel. Cela signifie que pour cette première date traitée, le tableau I_{B3B3} n'est pas calculé car, bien que les données S1 soient disponibles, il n'existe pas de composite IC_{B3} à partir duquel l'index est dérivé. Pour le premier jour de la séquence, l'étape suivante est donc ignorée (i.e. aucune carte de surface brûlée pour le 1er jour ne peut être produite).

Si I_{B3B3} est disponible, alors la moyenne ($M(I_{B3B3})$) et l'écart type ($SD(I_{B3B3})$) des valeurs de l'index sont calculées, ignorant les valeurs des pixels contaminés ou celles égales à zéro dans le tableau de l'index. Le critère pour qu'un pixel soit potentiellement brûlé est valide si les conditions suivantes sont satisfaites :

Si $IC_{B3B3} \leq (M(I_{B3B3}) - 2 \times SD(I_{B3B3}))$ et $B3$ (proche IR) < 260 et MIR (moyen IR) > 250

La création et la mise à jour du tableau IC_{B3} se continue tant qu'aucun pixel n'a été détecté comme potentiellement brûlé sur les images, pour un jour particulier. Si aucun changement n'a eu lieu pour IC_{B3} , ce tableau est gardé en mémoire pour générer l'index I_{B3B3} le jour suivant. Cette procédure essentielle permet de remplir les « trous » avec des

pixels non contaminés et aussi de moyenner les signatures spectrales pour à la fois les surfaces brûlées et non brûlées.

Pour créer l'image IC_{B3} , la première étape consiste à calculer l'angle de phase (appelé ici PA). Toutes les valeurs dans l'image sont ensuite remplacées par zéro si le masque des pixels contaminés est égal aussi à zéro. La valeur de IC_{B3} est calculée par la formule suivante :

- Si $IC_{B3} \neq 0$ et ($S1_{B3} \neq 0$ et angle de visée zénithale ≤ 70) et (l'angle de phase $< 0,8$), **alors** la nouvelle valeur de $IC_{B3} = (IC_{B3} + S1_{B3})/2$.
- Si ($IC_{B3} = 0$ et ($S1_{B3} \neq 0$ et angle de visée zénithale ≤ 70) et (l'angle de phase $< 0,8$)) **ou** ($IC_{B3} \neq 0$ et $S1_{B3} = 0$), **alors** la nouvelle valeur de $IC_{B3} = IC_{B3} + S1_{B3}$.
- Sinon, la nouvelle valeur de IC_{B3} reste inchangée (i.e. $IC_{B3} = IC_{B3}$).

Cette formule est valable pour la période d'été (avril - août), période considérée pour le traitement de la campagne ACE-Asia (mars - mai). Une autre formule existe dans l'algorithme pour traiter la période d'automne.

Les mêmes règles sont appliquées pour générer une image composite intermédiaire pour le canal moyen IR (IC_{MIR}). Ce produit n'est pas utilisé dans la phase de détermination des pixels potentiellement brûlés, mais dans la phase de post-traitement.

Les valeurs de l'image IC_{B3} sont conservées pour déterminer les surfaces brûlées dans le traitement du jour suivant. Les valeurs de l'image composite intermédiaire sont continuellement moyennées tant qu'il reste des valeurs propres disponibles. S'il y a un changement dans la signature spectrale à cause d'un événement de feux, alors ce changement filtre les valeurs du composite intermédiaire afin qu'il soit continuellement ajusté pour être représentatif des nouvelles conditions spectrales de la surface végétale. Les pixels qui ont été affectés par un feu possèdent donc plus d'une détection pour les considérer comme potentiellement brûlés au cours de la saison. Cette information est ensuite utilisée pour affiner la carte des pixels brûlés au moment du post-traitement.

Les fichiers de sortie comportent donc les images des surfaces potentiellement brûlées pour chaque jour de la saison ainsi que les jours où ils ont été détectés comme tel.

A la fin de chaque mois, les images composites intermédiaires (IC_{B3} et IC_{MIR}) sont conservées. Ces fichiers sont utilisés pour améliorer les résultats, déterminer la procédure

de post-traitement et comme image de référence.

A.4 Module de post-traitement

A.4.1 Procédure 1

Le premier stade du post-traitement consiste à **sommer le nombre de fois que chaque pixel a été détecté comme potentiellement brûlé** durant la période de traitement. Ceci donne, pour chaque pixel, le nombre total de fois que le pixel a satisfait le critère défini par IFI pour la détection des surfaces brûlées au cours de la saison.

Une autre information utile est le jour où le pixel a été détecté pour la première fois comme potentiellement brûlé. Si le pixel détecté comme potentiellement brûlé est confirmé plus tard comme étant un pixel réellement brûlé, l'information du jour sera utilisée pour faire des statistiques mensuels.

A.4.2 Procédure 2

Pour déterminer les pixels, ou surfaces, qui ont réellement brûlés, les données ont besoin de plusieurs phases de post-traitement. Des algorithmes ont été développés pour maximiser l'élimination des fausses détections afin de s'assurer que les pixels qui ont effectivement brûlés sont préservés dans les cartes finales de surfaces brûlées. Basée sur l'analyse des images composites intermédiaires et des images des surfaces potentiellement brûlées, la méthode suivante a été proposée :

- L'exclusion de tous les pixels brûlés situés au sein de la classe de végétation 9 de l'UMD. Cela correspond au type de végétation « open shrubland ». Cette classe a été exclue car tous les pixels détectés comme potentiellement brûlés se sont avérés être de fausses détections.
- Le jeu de données est analysé sur une base mensuelle, avec une référence faite au composite intermédiaire disponible à la fin de chaque mois. La référence de la date détectée du produit brûlé indique le mois du feu.

- Les pixels potentiellement brûlés se situant autour du masque de l'eau, généré à partir du produit UMD, sont éliminés.
- Les pixels potentiellement brûlés sont supprimés s'ils sont localisés dans un espace spectral en dehors de ± 2 de l'écart type de l'échelle des valeurs dans les bandes B3 et MIR. Cette analyse est effectuée pour chaque classe de végétation du produit UMD.
- Tous les pixels (potentiellement brûlés) isolés, et ceux faisant des blocs de moins de 3 pixels sont supprimés.
- Une zone tampon est créée autour de chaque bloc des pixels potentiellement brûlés, en utilisant une fenêtre 5×5 . Pour chaque classe de la carte UMD, les valeurs moyennes pour les bandes spectrales B3 et MIR sont calculées pour ces pixels, à la fois non inclus dans le masque des surfaces potentiellement brûlées mis à jour, et inclus dans le masque des surfaces potentiellement brûlées mis à jour. Les valeurs de distance sont ensuite calculées pour chaque pixel dans cette zone tampon pour les valeurs moyennes des masques des surfaces brûlées et non-brûlées. Les valeurs de distance sont comparées les unes aux autres, déterminant ainsi l'association de classe au pixel localisé dans la zone tampon. Les pixels restants sont classés comme surfaces brûlées dans le produit final.

Basés sur les résultats des surfaces brûlées obtenus de ce second post-traitement, certaines restrictions ont été appliquées dans les algorithmes pour différents types de végétations et régions. En particulier, la fenêtre 5×5 s'est avérée surestimer la taille des surfaces brûlées, en particulier dans les régions non-forestières. Comme compromis, une fenêtre de taille 3×3 a été utilisées dans les régions forestières (les surfaces forestières sont dérivées de la carte d'occupation des sols UMD) et aucune expansion n'a été appliquée pour les surfaces brûlées comprises dans des zones non forestières. Les pixels détectés comme brûlés pour la classe de végétation 9 (open shrubland) du produit UMD, n'ont été supprimés que pour les hautes latitudes nord, par l'intermédiaire d'un masque.

L'étape suivante consiste à éliminer les fausses détections. Pour chaque mois d'été, la moyenne et l'écart type sont calculés pour chaque classe de végétation UMD pour les pixels appartenant aux images potentiellement brûlées dans les bandes spectrales B3 et MIR. Pour chacune de ces bandes, une surface a été définie (limites maximales et minimales) pour les surfaces potentiellement brûlées. Si les pixels indiqués comme potentiellement brûlés sont situés au delà de ± 2 de l'écart type, alors ils sont exclus pour les analyses suivantes, et ne sont plus considérés comme potentiellement brûlés. Ceci est appliqué à la fois aux canaux B3 et MIR.

La phase suivante consiste à éliminer les pixels isolés, et ceux appartenant à des blocs de moins de 3 pixels qui sont indiqués comme brûlés dans le jeu de données. Pour déterminer le nombre de pixels des groupes continus, une fonction de dilatation des 8 pixels voisins au bloc est appliquée. A partir de l'image du bloc, les pixels sont exclus s'ils sont dans des blocs de moins de 3 pixels.

A la suite de l'analyse des pixels de surfaces brûlés toujours présents après dans les différentes phase du post-traitement pour les imageries journalières, il a été observé une sous-estimation des surfaces brûlées, par l'algorithme. Pour corriger ce problème, une zone tampon a été créée autour de chaque pixel, en utilisant une fenêtre de taille de 5×5 pixels et une procédure maximale focale. La procédure remplace la valeur du centre du pixel par la valeur maximale des pixels environnants. La zone tampon est créée à partir de l'image des surfaces brûlées filtrée (après regroupement) pour chaque mois. Une zone tampon est donc créée autour de chaque produit mensuel. L'étape finale de ce post-traitement est de s'assurer de l'exactitude que chaque pixel de la zone tampon appartienne réellement à une zone de surface brûlée. Aussi, pour chaque classe de végétation de la carte UMD, les valeurs moyennes des pixels appartenant et n'appartenant pas à des zones potentiellement brûlées sont calculées pour les bandes B3 et MIR. Pour chaque pixel situé dans la zone tampon, une estimation de la distance est calculée entre la moyenne des pixels potentiellement brûlés et ceux non brûlés. Pour la distance entre les valeurs spectrales du pixel situé dans la zone tampon et la valeur moyenne de tous les pixels potentiellement brûlés, le calcul

se fait selon :

$$D1_{ij} = [(\mu IC'_{B3(ij)} - B_{B3(j)})^2 + (\mu IC'_{MIR(i)} - B_{MIR(j)})^2]^{1/2}$$

où $\mu IC'_{B3(ij)}$ est la valeur moyenne pour chaque classe UMD (i) de végétation à l'intérieur du masque des surfaces brûlées pour la bande B3 (et de même pour la bande MIR) et $B_{B3(j)}$ est la valeur du pixel dans la zone tampon pour la bande B3 (et de même pour la bande MIR). Une distance similaire $D2_{ij}$ est créée pour les pixels à l'extérieur du masque des surfaces potentiellement brûlées.

Les deux distances pour chaque pixel sont comparées l'une à l'autre pour déterminer la classe d'appartenance de chaque pixel dans la zone tampon. Un facteur est appliqué à la distance entre le pixel du tampon et les pixels qui ne sont pas brûlés. Pour les mois d'été, le facteur est de 0,7. Par conséquent, si la distance $D1_{ij} < 0,7 \times D2_{ij}$ (pour les mois d'été), alors le pixel de la zone tampon est proche des caractéristiques spectrales des pixels brûlés et il est à son tour identifié comme brûlé au sein du produit final. Si cette condition n'est pas satisfaite, alors le pixel n'est pas considéré comme brûlé.

Annexe B

Inventaire d'émissions particulaires pour les fuels fossiles

B.1 Inventaire de Cooke

Cooke *et al.* (1999) a développé un inventaire global d'émissions d'aérosol carboné par les fuels fossiles (résolution 1°x1°). La méthode utilisée pour estimer la quantité d'aérosol carboné, complexe (cf figure B.1), est basée sur la quantité de fuel consommée :

$$Q_{ac} = Q_{fc} \times EF_{AC}$$

avec :

Q_{ac} : quantité d'aérosol carboné

Q_{fc} : quantité de fuel consommée

EF_{AC} : facteur d'émissions

Ces deux derniers termes seront développés dans les paragraphes suivants.

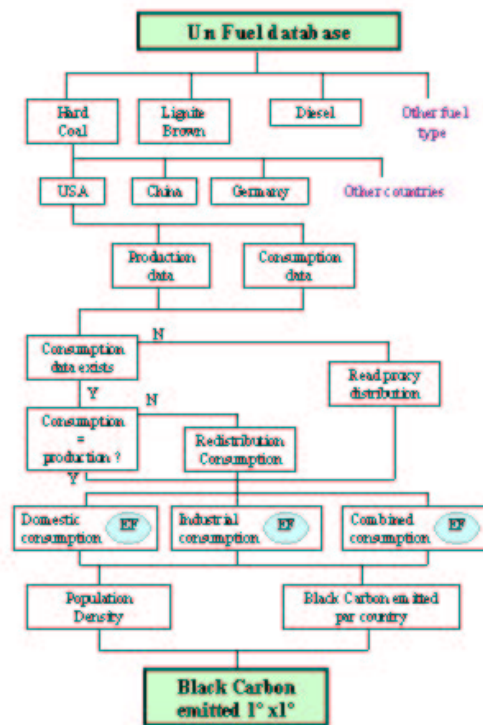


FIG. B.1 – Principe utilisé pour le calcul des émissions d'aérosols carbonés provenant de la combustion de fuels fossiles [Cooke et al., 1996]

• Consommation de fuels (Q_{fc})

La base de données des Nations Unies « Energy Statistics Database » (1993) a été utilisée pour les 185 pays répertoriés. Les différents types de fuels sont répartis en 8 groupes et 23 sous-groupes d'origine fossiles, (cf tableau B.2 en fin d'annexe), les plus émetteurs d'aérosols carbonés étant l'essence, le diesel et le charbon. Les consommations de chaque pays sont évaluées à partir des données de production, d'import et d'export, considérées comme étant plus précises et plus fiables que les données de consommation, en raison de la meilleure connaissance des échanges internationaux.

Aussi, la quantité de fuel consommée par chaque pays peut s'exprimer par la relation suivante [Cooke and Wilson, 1996] :

$$\text{Fuel consommé} = \text{production} + \text{import} - \text{export} - \text{stocks} - \text{transferts} - \text{transports}$$

Un des grands avantages de cette méthode, pour la suite, est de tenir compte de la

diversité d'utilisation de ces fuels consommés. En effet, on distingue ici la quantité de fuel consommée par le secteur industriel, à des fins domestiques ou bien liée au transport (pour l'essence et le diesel). Une catégorie dite « combinée » regroupe les secteurs industriels et domestiques.

• **Facteurs d'émissions (EF_{AC})**

Les facteurs d'émissions représentent la fraction (en ‰) de masse de fuel fossile émise sous forme de BC (ou OC primaire). Les valeurs utilisées, issues de la littérature, sont définies ici pour les particules submicroniques, tailles pour lesquelles l'impact radiatif est maximal.

Une différenciation a été effectuée selon le niveau de développement des pays, c'est à dire selon que le pays est classé comme développé, semi-développé, ou en voie de développement. En effet, plus le pays est considéré comme développé et plus les techniques industrielles sont contrôlées, et plus la combustion sera efficace, et moins important sera le facteur d'émissions correspondant. L'OECD (Organization for Economic Cooperative Development) de 1984 constitue le groupe des pays développés. Les pays semi-développés sont les pays d'Europe de l'Est, l'ex-URSS, Israël, l'Afrique du Sud, Hong Kong, Singapour et Taiwan. Tous les autres sont considérés comme étant en voie de développement.

Une différenciation importante due à la variabilité des EF, a pu être réalisée parmi les émissions liées aux différentes utilisations des produits consommés. Les utilisations domestiques favorisent la production de particules, la combustion ayant lieu dans des conditions moins idéales qu'en milieu industriel (températures plus faibles et mauvaise oxygénation).

Neuf facteurs d'émission sont donc définis par type de fuels : un pour chaque « classe » de pays et un pour chaque type d'utilisation. Ils sont ensuite appliqués aux consommations annuelles en fuels fossiles et fournissent des cartes d'émissions annuelles de BC (ou OC) par type de fuels, pour chacun des 185 pays.

• **Répartition en fonction de la population**

Une redistribution géographique des données d'émissions globales de BC (et OC), quelles

que soient leurs utilisations, est basée sur la densité de population, supposée représentative du degré d'activité industrielle et domestique dans chaque pays.

La base de données de population utilisées par Cooke est celle de Lerner *et al.* (1988). Elle permet de représenter une densité d'émissions, c'est à dire une émission par habitant sur une maille $1^\circ \times 1^\circ$.

B.2 Mise à jour de l'inventaire d'émissions

• Filière de traitement

Au niveau global (GEIA : Global Emissions Inventory Activity), les données disponibles dans Cooke *et al.*, [Cooke and Wilson, 1996 ; Cooke *et al.*, 1999] couvrent la période 1970-1989. Aussi, l'utilisation de l'inventaire de Cooke dans les modèles ne permet pas une comparaison avec des données expérimentales récentes. Une nouvelle version des données de fuels (1950-1997) a donc été commandée à l'ONU, pour compléter cet inventaire.

De nombreuses différences existent, liées aux bouleversements mondiaux, en particulier dans le bloc de l'est depuis 1990 (en 1990 : les deux Allemagne se sont réunifiées, en 1992 : l'URSS s'est démantelée), ainsi qu'en Afrique et Asie dans les années 1950-1970. Ces nombreux changements politiques induisent des modifications géographiques et/ou économiques. La filière de traitement a donc été réactualisée avec ces nouvelles informations.

- L'une des premières modifications a été d'ajouter 30 « nouveaux » pays. Une nouvelle codification a été appliquée dans tous les fichiers et programmes : cette étape est très importante car ces codes, propres à chaque pays permettent de distribuer les émissions d'un pays selon le quota de population qui lui est attribué, en chaque point de grille $1^\circ \times 1^\circ$.

Dans l'ancienne méthode, les pays sont regroupés géographiquement. En effet, si des données nécessaires au calcul des consommations de fuels sont inexistantes pour un pays et un type de fuel, alors une moyenne, réalisée avec les données des pays voisins (proxy-countries) lui est attribuée. De nouveaux regroupements géographiques ont donc été déterminés (cf tableau B.3 en fin d'annexe).

Jusqu'à présent, le choix des niveaux de pays était fait sans critère objectif. De plus, certains pays ont évolué, d'autres se sont appauvris... Aussi, nous avons défini une nouvelle méthode plus systématique qui repose sur le PIB de chaque pays (www.Canoe.qc.ca/TopoAtlas), lequel semble plus juste que le regroupement précédent.

- Les données de population ont été réactualisées : la population de 1984 [Lerner *et al.*, 1988] est remplacée par des données de densité de population plus récentes : population de 1990, fournie par le GEIA (www.weather.engin.umich.edu/geia/).

La nouvelle filière de traitement possédant une nouvelle codification, l'utilisation de l'ancienne population n'est plus possible : les données de densité de population de 1990 sont donc utilisées pour toutes les années. Bien que pour les années 1950-1980 ceci implique une approximation, il y a amélioration nette du traitement des années 1990, période qui nous intéresse tout particulièrement ici.

Aussi, pour utiliser cette donnée « population » sur toutes les années de la filière de traitement, il a fallu apporter quelques modifications. Tout d'abord, prendre en compte tous les pays qui n'existent plus ou bien dont la géographie a été modifiée. Afin de résoudre ce problème, on a ajouté arbitrairement ces pays avec les données de l'ancienne population [Cooke *et al.*, 1999] dans le nouveau fichier de population, utilisé dans toute la filière de traitement. L'URSS, cité en 1980 par exemple, ne figure pas dans les données de population de 1990. Nous l'avons donc ajouté, avec les valeurs de population qu'elle possédait dans Cooke *et al.* (1999).

Toutefois un cas particulier a été décelé : en 1992 la Yougoslavie s'est scindée en 4 pays : Slovénie, Croatie, Bosnie et une « nouvelle » Yougoslavie. Dans le nouveau fichier de population de 1990, il n'existe pas de densité de population pour ces nouveaux pays. Un moyen de contourner ce problème a été de répartir les données de consommation de ces 4 pays sur l'ancien territoire de la Yougoslavie, avec les valeurs de son ancienne population. Ceci constitue bien entendu une première approximation, en attendant de se procurer des données de population plus récentes, sous un format exploitable.

• Facteurs d'émissions

Les valeurs des facteurs d'émissions particulaires des fuels fossiles utilisées ici sont souvent des estimations (ou best-guess), parce qu'encore mal connues et peu étudiées. Aussi, au cours d'une campagne expérimentale organisée par le Laboratoire d'Aérodologie, nous avons testé les valeurs des facteurs d'émission pour le charbon, utilisées dans l'inventaire de Cooke. Cette expérience a eu lieu à la chaufferie de l'hôpital de Rangueil à Toulouse, qui utilise durant la saison d'hiver, une chaudière à charbon.

Une première approximation des facteurs d'émission a été calculée à partir des résultats bruts de la manipulation. La figure B.2 représente le suivi en temps réel de BC, obtenu avec le PSAP (analyseur optique mesurant les variations du coefficient d'absorption) et les résultats bruts de CO₂, obtenus par le Qtrack (analyseur de CO₂).

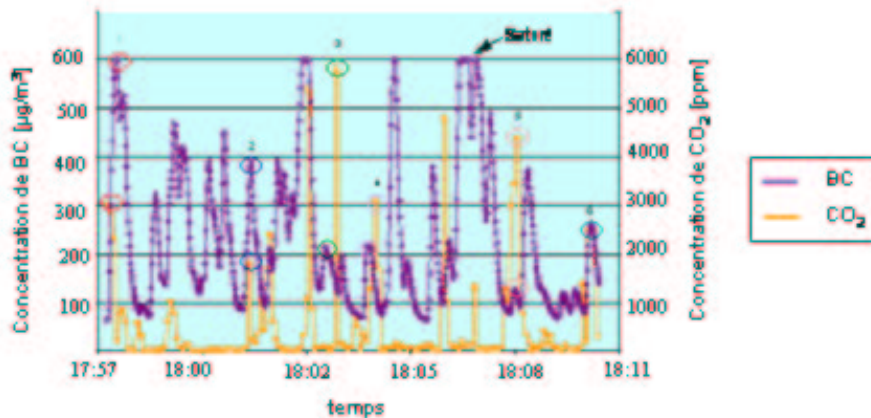


FIG. B.2 – Résultats bruts de BC et CO₂, lors d'une des manipulations où la chaudière tournait à plein régime, sans filtre dépoussiéreur.

Un premier calcul brut des facteurs d'émission a été effectué à partir de l'expression suivante :

$$EF = \frac{\Delta BC}{\Delta CO_2} \times 0,9$$

avec

ΔBC : pic de la concentration en BC

ΔCO_2 : pic de la concentration en CO_2

Par la suite, une étude approfondie nécessitera une analyse statistique intégrée, et la prise en compte du CO.

Les calculs des facteurs d'émission sont répertoriés dans le tableau B.1, pic par pic.

| | pic 1 | pic 2 | pic 3 | pic 4 | pic 5 | pic 6 |
|----------------------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| ΔBC | 300 | 180 | 580 | 310 | 440 | 248 |
| ΔCO_2 | 6000 | 3900 | 2100 | 2150 | 1250 | 2608 |
| EF (g/kg) | 0.09 | 0.09 | 0.65 | 0.34 | 1.14 | 0.21 |

TAB. B.1 – Facteurs d'émission calculés pendant la manipulation où la chaudière tournait à plein régime, sans filtre dépoussiéreur.

Nous pouvons voir une grande variabilité des facteurs d'émissions: de $0,1 \text{ g.kg}^{-1}$ à 1 g.kg^{-1} . Il est important de préciser que ces facteurs d'émissions correspondent aux fines et grosses particules, car aucune différenciation de taille n'a été réalisée dans ces prélèvements. Nous pouvons les comparer aux facteurs d'émissions des « Bulk Black Carbon Aerosols » considérés dans l'inventaire de Cooke. Ces valeurs varient, pour une utilisation industrielle, de 0,2 pour les pays développés à 1,0 pour les pays en voie de développement, en passant par 0,325 pour les semi-développés.

L'ordre de grandeur entre les valeurs mesurées et celles de l'inventaire est donc cohérent: les facteurs d'émission calculés pour l'expérience « sans dépoussiéreur » correspondraient plutôt en moyenne à ceux des pays en voie de développement et semi-développés.

Néanmoins, une analyse plus précise des données recueillies lors de cette expérience permettrait de vérifier les facteurs d'émission considérés dans l'inventaire, voire d'en corriger certains.

En sortie de la filière de traitement, les résultats sont sous la forme de quantité de BC ou OC (en Tg/an pour tous les fuels, à l'exception des gaz qui sont exprimés en TJ/an). Ces données sont accessibles pour le monde entier, pour chaque pays, de 1950 à 1997.

Annexe B. Inventaire d'émissions particulières pour les fuels fossiles

| PRIMARY | | SECONDARY | |
|--|----|------------------------------------|----|
| Solid Fuels | | Solid Fuels | |
| Animal wastes | AW | Brown coal coke | BK |
| Bagasse | BS | Charcoal | CH |
| Fuelwood | FW | Coke-oven coke | OK |
| Hard coal | CL | Gas coke | GK |
| Lignite/brown coal | LB | Hard coal (patent fuel) briquettes | BC |
| Municipal wastes | MW | Lignite (brown coal) briquettes | BB |
| Oil shale | OS | Peat briquettes | BP |
| Other non-commercial | NC | | |
| Peat | PT | Liquid Fuels | |
| Pulp and paper wastes | PU | Aviation gasolene | AV |
| Thorium | TH | Bitumen/asphalt | BT |
| Uranium | UR | Feedstocks | FS |
| Vegetal wastes | VW | Gas-diesel oil | DL |
| | | Jet fuel | JF |
| | | Kerosene | KR |
| | | Liquefied petroleum gas | LP |
| | | Lubricants | LU |
| | | Motor gasolene | MO |
| | | Naphtha | NP |
| | | Natural gasolene | NT |
| | | Other petroleum products | PP |
| | | Petroleum coke | PK |
| | | Petroleum wax | PW |
| | | Plant condensate | CD |
| | | Residual fuel oil | RF |
| | | White spirit/industrial spirit | WS |
| | | Gaseous fuels | |
| | | Blast furnace gas | BG |
| | | Coke-oven gas | OG |
| | | Gasworks gas | GG |
| | | Refinery gas | RG |
| | | Electricity and Power | |
| | | Thermal | ET |
| Liquid Fuels | | | |
| Alcohol | AL | | |
| Crude petroleum | CR | | |
| Natural gas liquids | GL | | |
| Natural gas liquids, not elsewhere specified | MP | | |
| Gaseous fuels | | | |
| Natural gas | NG | | |
| Electricity and Power | | | |
| Falling water | WF | | |
| Geothermal | EG | | |
| Hydro | EH | | |
| Nuclear | EN | | |
| Steam and hot water | ST | | |
| Total electricity | EL | | |
| Wind | EW | | |
| Solar | ES | | |
| Tide, Wave | EO | | |

TAB. B.2 – Groupes et sous-groupes pour les fuels fossiles.

| Region | Countries Used |
|---|--|
| European Union (18 countries) | 056 (Belgium) – 208 (Denmark) – 251, 250 (France) – 280 (Germany Federal Rep) – 300 (Greece) – 372 (Ireland) – 380, 382 (Italy) – 442 (Luxembourg) – 528 (Netherlands) – 620 (Portugal) – 724 (Spain) – 828 (United Kingdom) – 276 (Germany) – 292 (Gibraltar) – 492 (Monaco) – 674 (San Marino) |
| EFTA Countries (10 countries) | 040 (Austria) – 234 (Faeroe Islands) – 246 (Finland) – 352 (Iceland) – 579, 578 (Norway) – 752 (Sweden) – 757, 756 (Switzerland) – 744 (Svalbard & Jan Mayen Islands) |
| Eastern Europe (including former USSR) (32 countries) | 008 (Albania) – 100 (Bulgaria) – 200 (Czechoslovakia) – 278 (Germany Democratic Rep) – 348 (Hungary) – 616 (Poland) – 642 (Romania) – 810 (USSR) – 890 (Yugoslavia) – 031 (Azerbaijan) – 051 (Armenia) – 070 (Bosnia Herzegovina) – 112 (Belarus) – 191 (Croatia) – 203 (Czech Republic) – 233 (Estonia) – 268 (Georgia) – 398 (Kazakhstan) – 417 (Kyrgyzstan) – 428 (Latvia) – 438 (Liechtenstein) – 440 (Lithuania) – 498 (Moldovia Rep) – 643 (Russina Fed) – 703 (Slovakia) – 705 (Slovenia) – 762 (Tajikistan) – 795 (Turkmenistan) – 804 (Ukraine) – 807 (Macedonia, TFYR) – 860 (Uzbekistan) – 891 (Yugoslavia Fed Rep) |
| Turkey/Cyprus (2 countries) | 196 (Cyprus) – 792 (Turkey) |
| Northern Africa (6 countries) | 012 (Algeria) – 818 (Egypt) – 434 (Libyan Arab Jamahiriya) – 470 (Malta) – 504 (Morocco) – 788 (Tunisia) |
| North Central Africa 1 (5 countries) | 854 (Burkina Faso) – 148 (Chad) – 466 (Mali) – 562 (Niger) – 736 (Sudan) |
| North Central Africa 2 (15 countries) | 204 (Benin) – 132 (Cape Verde) – 270 (Gambia) – 288 (Ghana) – 324 (Guinea) – 624 (Guinea Bissau) – 384 (Cote d'Ivoire) – 430 (Liberia) – 478 (Mauritania) – 566 (Nigeria) – 686 (Senegal) – 694 (Sierra Leone) – 768 (Togo) – 732 (Western Sahara) – 267 (French West Africa) |
| Central Africa (14 countries) | 108 (Burundi) – 120 (Cameroon) – 140 (Central African Rep) – 174 (Comoros) – 178 (Congo) – 226 (Equatorial Guinea) – 266 (Gabon) – 646 (Rwanda) – 678 (Sao Tome & Principe) – 690 (Seychelles) – 800 (Uganda) – 180 (Dem Rep of Congo) – 263 (French Equatorial Africa) – 646 (Rwanda Urundi) |
| South Central Africa (9 countries) | 024 (Angola) – 454 (Malawi) – 834 (United Rep of Tanzania) – 190 (Dem Rep of Congo) – 894 (Zambia) – 711 (South Africa, Cust Union of) – 717 (Rhodesia Nyasaland) – 835 (Tanganyika) – 836 (Zanzibar) |

Annexe B. Inventaire d'émissions particulières pour les fuels fossiles

| | |
|---|--|
| Zaire 180 (21 countries) | 108 (Burundi) - 120 (Cameroon) - 140 (Central African Rep) - 174 (Comoros) - 178 (Congo) - 226 (Equatorial Guinea) - 266 (Gabon) - 646 (Rwanda) - 678 (Sao Tome & Principe) - 690 (Seychelles) - 800 (Uganda) - 263 (French Equatorial Africa) - 645 (Rwanda Urundi) - 024 (Angola) - 834 (United Rep of Tanzania) - 894 (Zambia) - 434 (Malawi) - 711 (South Africa, Cust Union of) - 717 (Rhodesia-Nyasaland) - 935 (Tanganyika) - 936 (Zanzibar) |
| East Africa (5 countries) | 262 (Djibouti) - 230, 231 (Ethiopia) - 404 (Kenya) - 706 (Somalia) |
| Southern Africa (11 countries) | 072 (Botswana) - 426 (Lesotho) - 450 (Madagascar) - 480 (Mauritius) - 508 (Mozambique) - 516 (Namibia) - 638 (Reunion) - 710 (South Africa) - 748 (Swaziland) - 716 (Zimbabwe) - 654 (St Helena) |
| Western Asia (Middle East) (15 countries) | 048 (Bahrain) - 364 (Iran) - 368 (Iraq) - 376 (Israel) - 400 (Jordan) - 415 (Kuwait) - 422 (Lebanon) - 512 (Oman) - 634 (Qatar) - 684 (Saudi Arabia) - 760 (Syrian Arab Rep) - 784 (United Arab Emirates) - 720 (Democratic Yemen) - 886 (Yemen former) - 887 (Yemen) |
| Midwest Asia (11 countries) | 004 (Afghanistan) - 050 (Bangladesh) - 064 (Bhutan) - 356 (India) - 462 (Maldives) - 496 (Mongolia) - 524 (Nepal) - 586, 588 (Pakistan) - 144 (Sri Lanka) - 156 (China) |
| North East Asia (24 countries) | 096 (Brunei Darussalam) - 104 (Myanmar) - 344 (China, Hong Kong SAR) - 360 (Indonesia) - 116 (Cambodia) - 408 (Korea, Dem Peoples Rep) - 410 (Korea Rep) - 418 (Lao, People Dem Rep) - 458 (Malaysia) - 702 (Singapore) - 158 (Other Far East) - 764 (Thailand) - 704 (Vietnam) - 156 (China) - 162 (Christmas Islands) - 265 (French Indo China) - 455 (Malaya Singapore) - 457 (Sarawak) - 459 (Malaysia-Peninsula) - 461 (Sabah) - 626 (East Timor) - 647 (Ryuku Islands) - 866 (Vietnam Dem Rep) - 868 (Vietnam South) |
| South East Asia (8 countries) | 360 (Indonesia) - 458 (Malaysia) - 316 (Guam) - 598 (Papua New Guinea) - 608 (Philippines) - 158 (Other Far East) - 446 (Macau) - 562 (Pacific Islands) |
| China 156 (33 countries) | 096 (Brunei Darussalam) - 104 (Myanmar) - 344 (China, Hong Kong SAR) - 360 (Indonesia) - 116 (Cambodia) - 408 (Korea, Dem Peoples Rep) - 410 (Korea Rep) - 418 (Lao, People Dem Rep) - 458 (Malaysia) - 702 (Singapore) - 158 (Other Far East) - 764 (Thailand) - 704 (Vietnam) - 265 (French Indo China) - 455 (Malaya Singapore) - 457 (Sarawak) - 459 (Malaysia-Peninsula) - 461 (Sabah) - 626 (East Timor) - 647 (Ryuku Islands) - 866 (Vietnam Dem Rep) - 868 (Vietnam South) - 004 (Afghanistan) - 050 (Bangladesh) - 064 (Bhutan) - 356 (India) - 462 (Maldives) - 496 (Mongolia) - 524 (Nepal) - 586, 588 (Pakistan) - 144 (Sri Lanka) - 162 (Christmas Islands) |
| Northern America (5 countries) | 124 (Canada) - 392, 393 (Japan) - 840 (USA) - 666 (St Pierre & Miquelon) |

| | |
|---|---|
| Central America (11 countries) | 084 (Belize) - 188 (Costa Rica) - 222 (El Salvador) - 320 (Guatemala) - 340 (Honduras) - 484 (Mexico) - 558 (Nicaragua) - 590, 591 (Panama) - 136 (Cayman Island) - 592 (Panama Canal Zone) |
| Caribbean (Small Islands) (21 countries) | 111 (Anguilla, Tuvalu) - 028 (Antigua & Barbuda) - 044 (Bahamas) - 052 (Barbados) - 212 (Dominica) - 308 (Grenada) - 312 (Guadeloupe) - 474 (Martinique) - 532 (Netherlands Antilles) - 659 (St Kitts-Nevis) - 662 (St Lucia) - 670 (St Vincent & Grenadines) - 780 (Trinidad & Tobago) - 796 (Turks & Caicos Islands) - 092 (British Virgin Island) - 423 (Leeward Island) - 500 (Montserrat) - 530 (Netherlands Antigua & Barbuda) - 533 (Aruba) - 658 (St Kitts-Nevis-Anguilla) - 850 (U.S. Virgin Island) |
| Caribbean (Large Islands) (6 countries) | 060 (Bermuda) - 192 (Cuba) - 214 (Dominican Republic) - 332 (Haiti) - 388 (Jamaica) - 630 (Puerto Rico) |
| Northern South America (7 countries) | 170 (Colombia) - 218 (Ecuador) - 254 (French Guiana) - 328 (Guyana) - 740 (Suriname) - 862 (Venezuela) - 076 (Brazil) |
| Western South America (4 countries) | 068 (Bolivia) - 076 (Brazil) - 600 (Paraguay) - 604 (Peru) |
| Southern South America (4 countries) | 032 (Argentina) - 152 (Chile) - 238 (Falkland Islands) - 858 (Uruguay) |
| Brazil 076 (9 countries) | 170 (Colombia) - 218 (Ecuador) - 254 (French Guiana) - 328 (Guyana) - 740 (Suriname) - 862 (Venezuela) - 068 (Bolivia) - 600 (Paraguay) - 604 (Peru) |
| Oceania (16 countries) | 036 (Australia) - 184 (Cook Islands) - 242 (Fiji) - 258 (French Polynesia) - 296 (Kiribati) - 520 (Nauru) - 540 (New Caledonia) - 554 (New Zealand) - 090 (Solomon Islands) - 776 (Tonga) - 111 (Anguilla, Tuvalu) - 548 (Vanuatu) - 882 (Samoa) - 016 (American Samoa) - 370 (Niue) - 872 (Wake Island) |
| Anguilla, Tuvalu 111 (35 countries) | Caribbean (Small Islands) + Oceania - 2*(111 Anguilla, Tuvalu) |
| Other Far East 158 (28 countries) | North East Asia + South East Asia - 1*(360 Indonesia) - 1*(458 Malaysia) - 2*(158 Other Far East) |
| Indonesia 360 (28 countries) | North East Asia + South East Asia - 1*(158 Other East Countries) - 1*(458 Malaysia) - 2*(360 Indonesia) |
| Malaysia 458 (28 countries) | North East Asia + South East Asia - 1*(158 Other East Countries) - 1*(360 Indonesia) - 2*(458 Malaysia) |
| World 001 (6 countries) | 002 (Africa) + 003 (North America) + 005 (South America) + 006 (Asia) + 007 (Europe) + 009 (Oceania) |

| | |
|-------------------------------------|---|
| Africa 002 (64 countries) | Northern Africa + North Central Africa 1 + North Central Africa 2 + Central Africa + South Central Africa + East Africa + Southern Africa - 1*(180 Zaire) |
| North America 003 (3 countries) | Northern America - 392,393 (Japan) |
| South America 005 (52 countries) | Central America + Caribbean (Small Islands) + Caribbean (Large Islands) + Northern South America + Western South America + Southern South America - 1*(076 Brazil) |
| Asia 006 (56 countries) | Western Asia (Middle West) + Midwest Asia + North East Asia + South East Asia + 392,393 (Japan) - 1*(156 China) - 1*(158 Other East Countries) - 1*(368 Indonesia) - 1*(458 Malaysia) |
| Europe 007 (62 countries) | European Union + EFTA Countries + Eastern Europe (including USSR) + Turkey/Cyprus |
| Oceania 009 (16 countries) | Oceania |

FIG. B.3 – new appendix 3.E: country codes used for various regions as proxy countries in calculating the emissions of black carbon from fossil fuel use .

Annexe C

Publication : 0D-Modelling of carbonaceous aerosols

Papier accepté au Journal of Atmospheric Chemistry (2005) : sous presse.

Running Head : 0D-Modelling of carbonaceous aerosols

Article Type : PAPER

Title : 0D-Modelling of Carbonaceous Aerosols over Greater Paris focusing on the organic particle formation.

Authors : LIOUSSE, C. (1), C. MICHEL (1), B. BESSAGNET (2), H. CACHIER (3) and R. ROSSET (1)

1. Laboratoire d'Aérodologie, CNRS-UPS, UMR 5560, 14 ave E. Belin, 31 400 Toulouse, France

2. INERIS, Direction des Risques Chroniques, Modélisation et Analyse Economique pour la gestion des Risques (MECO), Parc Technologique ALATA - BP n°2, 60550 Verneuil en Halatte, France

3. Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, CNRS-CEA, Ave de la Terrasse, 91 198-Gif sur Yvette Cedex, France

Correspondance : Dr C. Liousse, Laboratoire d'Aérodologie, CNRS-UPS, UMR 5560, 14 ave E. Belin, 31 400 Toulouse, France ; ph : +33 5 61 33 27 66 ; fax : +33 5 61 33 27 90 ; e-mail : lioc@aero.obs-mip.fr

Abstract

To improve our understanding of aerosol formation and ageing in urban atmospheres, we have tested the ORISAM 0-D aerosol module (ORganic and Inorganic Spectral Aerosol Model). This module accounts for both types of primary carbonaceous particles (black carbon BC and primary organic carbon OC_p) and also simulates the formation of secondary inorganic and organic particles (sulfates, nitrates, ammonium, water and secondary organic carbon particles OC_{sec}) by attachment of gas precursors to preexisting carbonaceous particles. Simulations were performed for surface aerosols over Greater Paris area during the ESQUIF summer 1998 and winter 2000 experiments. Results show that OC_{sec} formation is highly dependent on temperature and insolation with more intense secondary formation in summer than in winter. Moreover in Summer, when atmospheric conditions shift from warm and humid to hot and dry, the model indicates a decreasing formation of secondary organic aerosols OC_{sec} as shown by an increase of the $OC_p/(OC_p + OC_{sec})$ ratio from 42% to 56%. These results satisfactorily compare with the few experimental available data for $BC/(OC_p + OC_{sec})$ ratios increasing from 24 to 37% against modelled values in the range 21 to 32%. ORISAM module sensitivity to initial size distributions, background concentrations and emissions of gases and primary carbonaceous particles was documented too. One main result is that the formation of secondary organic particles with ORISAM is very sensitive to the concentrations of gaseous precursors. At the present stage of ORISAM development, OC_{sec} build up appears to be however less sensitive to particulate background concentrations.

Key words : carbonaceous aerosol, secondary organic aerosol formation, urban plumes, modelling.

C.1 Introduction

Aerosol particles are often quoted for their overall cooling effect of about the same order of magnitude as the positive forcing by greenhouse gases (Charlson *et al.*, 1992; Haywood and Shine, 1995; Penner *et al.*, 1996; Jacobson, 2002; Chung and Seinfeld,

2002). However, these estimates are still subject to debate even in sign. The primary and most obvious reason is that the relative amount of the absorbing fraction (mostly black carbon-BC) among scattering particles (sulphate, nitrate and organic particles) is poorly known. Also, more documentation is required, on the particle size distribution of each aerosol component, their mixing state (internal versus external) and subsequent optical properties. Moreover, due to the strong absorbing component of the urban aerosol mixture, top and bottom of the atmosphere radiative forcing values have been found quite different, involving important columnar heating rates (Léon *et al.*, 2003; Mallet, 2003).

Urban particles are expected to exert a significant direct forcing and to have a significant impact on the oxidising capacity of the atmosphere. They may also play a deleterious role on health (Atkinson *et al.*, 2001; Brauer *et al.*, 2003). Recently only, for urban atmospheres, the importance of carbonaceous particles and particularly of organic particles have been evidenced (Putaud *et al.*, 2003; Cachier *et al.*, 2005). This is partly due to important uncertainties founding the organic particle concentrations, uncertainties primarily related to specific artefacts encountered in both organic aerosol sampling and analysis procedures. Intercomparison of measurements (Schmidt *et al.*, 2001) and methods (<http://ocs.fortlewis.edu/Aerosols/OCEC/agenda.htm>) have shown that the determination of black carbon and organic carbon contents is operationally defined. Size distributions and the optical and hydrophilic properties of organic particles are also uncertain due to lack of data. Finally, emission inventories proposed in the literature for organic particles can be largely conflicting. A main reason relies in the primary or secondary origin of organic particles. Recent experiments have shown for example that the formation of secondary organic aerosol takes place readily close to sources (Cachier *et al.*, 2005). Due to this complexity, large discrepancies appear in the proposed global budgets if only the primary origin is considered (Cooke *et al.*, 1999), or the secondary origin (Kanakidou and Tsigaridis, 2000) or both (Lioussé *et al.*, 1996).

Aiming to better understand the formation of organic particles and to contribute to the construction of realistic budgets, a 0-D aerosol module ORISAM (ORganic and Inorganic

Spectral Aerosol Model) was developed at Laboratoire d'Aérodologie (France). This aerosol module has first been used to simulate urban aerosol formation and transformation. Our urban case study applied to the Greater Paris area for summer 1998 and winter 2000 and relied on the ESQUIF experiment (Etude et Simulation de la Qualité de l'air en Ile de France (see <http://www.aero.jussieu.fr/themes/CA/Projet%20ESQUIF.html>). The few existing measurements for carbonaceous aerosols were used to validate parameterizations and to run sensitivity tests.

C.2 The modelling procedure

C.2.1 The 0-D aerosol model

The ORISAM 0-D model is illustrated by the flow diagram in figure C.1. The module allows aerosol mixing and evolution by considering the formation of secondary aerosols through coating of preexisting insoluble aerosols. ORISAM relies on previous works of Bessagnet (2000) and Bessagnet and Rosset (2001). In our work, insoluble aerosols have been partitioned into black carbon (BC) and primary organic carbon (OC) and the secondary organic (OC_{sec}) separated according to their origins (anthropogenic/biogenic origins). The secondary inorganic aerosols are sulphates, nitrates, ammonium and water. A sectional representation for aerosol size distribution is adopted with a variable number of sections (Fassi Fihri *et al.*, 1997).

Coagulation (particle agglomeration), condensation, sedimentation and absorption of semi-volatile species are the different processes taken into account in the microphysical module. The RACM (Regional Atmospheric Chemistry Mechanism) scheme is used to describe the chemistry kinetics in the gas phase (Stockwell *et al.*, 1997). The chemical thermodynamic module ISORROPIA (Nenes *et al.*, 1998) is used to calculate for the inorganic components thermodynamic equilibrium between the particle and gas phases, most of them being highly dependent on atmospheric temperature and humidity. Secondary organic aerosols (SOA) are supposed to originate only from the absorption of volatile organic hydrocarbons onto the surface of primary particles. As it is not possible to ac-

count for all the complex, numerous and variable oxidation mechanisms taking place in the gas phase, some of them being even still unknown and in order to maintain reasonable computer time, SOA formation is parametrized. Following Wang *et al.* (1992), an alternative way is to simulate this formation by a two-step process: firstly, the total mass of condensable organic gases is obtained using an empirical method relying on experimental constant yields (Y), and secondly, temperature dependent partitioning coefficients (K_p) (Odum *et al.*, 1996) are used to derive SOA mass.

C.2.2 Aerosol Model Initialization

- **Period of simulation :**

Two specific days were chosen during the summer 1998 data set. Simulations were also conducted for three days of winter 2000 for sensitivity tests, though no experimental data exist for this latter period. All selected days were chosen without rain and for their contrasted conditions (high relative humidity (RH) and low temperature, high temperature and low RH, low temperature and low RH).

- **Meteorological data :**

Temperature, relative humidity, radiance, and boundary layer thickness are necessary. As shown in figures C.2 which display profiles of relative humidity and temperature, measured in Paris every hour and interpolated every minute for model input :

August 7th, 1998, is quite hot (average temperature 23°C) and dry (average relative humidity 47%). On the contrary, July 28th, 1998, is colder (17°C), with reduced temperature diurnal amplitude, and much more humid (80%).

For winter 2000, January 22nd is cold (5°C in the average) and humid (average relative humidity 81%); January 25th is still colder (-0.9°C mean) and quite dry (49%), whereas January 30th is warmer (11°C) and also quite humid (81%).

The boundary layer thickness ranged from 410 m to 1886 m in summer during ESQUIF, whereas 105m to 787 m for winter urban conditions. In the model, a sinusoidal function is used to reproduce the daily variation of the boundary layer thickness. The daily variation

of radiances needed for the simulation, is inferred from the TUV radiation model (Tropospheric Ultraviolet and Visible radiation model), developed by Madronich and Flocke (1998).

- **Emissions :**

The same emissions are used for the different cases, whatever the season (summer and winter days) in order to focus on the impact of meteorological conditions only. The emissions of the anthropogenic gases (hydrocarbons, SO₂, NH₃, NO_x), are extracted from the GENEMIS database (GENERation of an EMIssion database, <http://www.ier.unistuttgart.de/public/de/organisation/abt/tfu/projekte/genemis/GENEMIS.html>) with a 3 km spatial resolution. The gaseous species in the GENEMIS database differ from those introduced in the RACM regional model, so aggregation factors were used for adaptation (Stockwell *et al.*, 1997). The biogenic emissions (isoprene, monoterpenes) are obtained from a simulation for the Paris area performed with the Meso-NH-C model (Solmon, 2001). Let us note that, as described later in the paper, these choices are determinant to fix the background gaseous concentrations and then the SOA formation. Emission fluxes are given for one-hour time intervals for anthropogenic gases and three-hour time interval for biogenic gases, and subsequently interpolated to one-minute intervals.

BC and primary OC emission fluxes are obtained from a new inventory constructed for the year 1997 (Liousse *et al.*, 2004). As no experimental data for carbonaceous aerosol size were available in ESQUIF we assumed the same distribution as in Chazette and Liousse (2001). The uncertainty due to particle size is certainly rather high as shown by the preliminary sensitivity tests presented later in this paper. A two-mode log-normal distribution is considered. The first mode, assumed centred at 0.1 μm (mass diameter size) contains only 50% BC mass. The second mode is centred at 0.23 μm with 100% of primary OC mass and 50% of BC mass.

- **Background concentrations :**

Initial background gas concentrations are obtained at 00:00 local time (LT) after a

spin-up period covering the whole day before. Different references for aerosol initialisation were chosen. Preliminary simulations presented in paragraph 3.1, point to high variabilities in BC, primary OC, secondary organic aerosol during the day and maximum concentrations at night (00:00 LT) due to accumulation processes. Indeed, no particle sink is taken into account in this modelling exercise (no particle deposition nor dynamical evolution except evolution of the boundary layer thickness). Therefore, the mean state obtained by averaging aerosol concentrations the day before is that chosen for initialisation (called *init-mean* in the following). For example, primary carbonaceous aerosol concentrations for the 08/07/98 are $1.53 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (50% BC) for the first mode and $7.87 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (50% BC and 100% OC) for the second mode.

C.3 Modelling Results

C.3.1 Simulated aerosol evolution

Figures C.3a, C.3b and C.3c display the evolution of the different aerosol components obtained respectively for three days: August 07th and July 28th 1998 and January 25th, 2000. Results are presented at 0:00, 12:00 and 24:00 LT. The secondary aerosols either inorganic (sulphates, nitrates, ammonium and water) or organic (SOA) display increasing concentrations with the hour of the day, and marked differences from one meteorological situation to another.

- Concentrations of the secondary inorganic aerosols are quite different for winter and summer days, and appear to be mainly driven by the competitive effects of relative humidity, temperature and photochemical conditions. As shown with the results for summer days (figures C.3a and C.3b), formation of the inorganic aerosol components is twice more important on 07/28/98 ($28 \mu\text{g}/\text{m}^3$) as compared to 08/07/98 ($13 \mu\text{g}/\text{m}^3$), when afternoon relative humidity is higher and temperature lower. The water capture may cause enhancement of the absorption of the different semi-volatile species at the aerosol surface, and thus the formation of secondary inorganic species. The role of photochemistry is illustrated

through comparison between the two days January 25th and August 07th with about the same mean atmospheric relative humidity (47% and 49%): a significant difference is there observed for the inorganic aerosol components ($7.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ and $13 \mu\text{g}/\text{m}^3$) which points to the importance of photochemistry during summer days. This sensitivity to photochemical formation also exists at higher relative humidities (RH about 80%), similar differences being observed in winter ($11\text{-}12.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$) for simulations performed on January 22nd and 30 (results not shown here) and in summer ($28 \mu\text{g}/\text{m}^3$ for simulations of July 28th).

- The formation of secondary organic aerosol generally begins in the early morning due to the conjunction of the morning traffic peak emissions and the onset of photochemistry. When temperature reaches a maximum, secondary aerosol VOC precursors are found predominantly in the gas phase. When the temperature decreases, around 18:00 LT approximately, the transfer of condensable organic species from the gas to the particulate phase may become more important. Such a process, driven by the module parameterizations, is in agreement with the theoretical works of Sheehan and Bowman (2001), who have shown that temperature governs the transfer of organic species from the gas to the particulate phase and conversely. This temperature dependence is illustrated by comparison of the two summer days in which the mean temperature is markedly different: when comparing figures C.2a and C.2b to figures C.3a and C.3b, it may be seen that, with almost similar afternoon photochemistry activity for the two summer days, the relative concentration of secondary organic carbon is weaker on August 7th 1998 than for the milder day, July 28th 1998. Such a difference is still enhanced after 24 hours of simulation ($11.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ and $7.65 \mu\text{g}/\text{m}^3$ on July 28th and August 07th). During the hot and dry day August 07th, SOA formation is reduced when temperature reaches a maximum, as VOCs remain in the gaseous phase. At the end of the afternoon, when temperature decreases, SOA formation again increases, a process which may be favoured by the parallel increase of traffic precursor emission. This SOA formation is still more visible due to the decrease of the boundary layer thickness. For the selected winter days, similar profiles of secondary organic aerosol formation are obtained. However, SOA concentrations are weaker by a factor of two (mean: $4.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in winter whereas $9.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ in summer), which may

primarily reflect the impact of photochemistry.

C.3.2 Comparison between experimental and modelled values

Table C.1 presents BC/OC_{tot} ratio values simulated for the different situations, in winter and summer. It may be recalled that OC_{tot} includes both OC_p and OC_{sec}. Measured values are shown for the summer experiment. As BC is an inert species, and considering that emissions are the same for the different case studies, any decrease of BC/OC_{tot} ratio may be interpreted as an indicator of secondary OC production. A statistically significant difference is observed for mean BC/OC_{tot} ratios obtained by the model in winter (43%) and in summer (33%). In winter, lower temperatures and weak radiances create conditions of low photolytic activity of and consequently, weaker SOA formation than in summer. Higher BC/OC_{tot} ratios are thus expected in winter. Interestingly such a seasonal trend in BC/OC_{tot} ratios was experimentally obtained by Castro *et al.* (1999) for urban areas in Portugal in summer 1993 and winter 1992-93: in Coimbra (33% and 48% respectively) and in Oporto (37% and 59%).

An interesting feature in table C.1 is also that modelled average values (« mean day values » for the 9h to 21h LT time period) compare satisfactorily with experimental values obtained during the summer ESQUIF campaign especially for their trends. Indeed, BC/OC_{tot} ratio values for July 28th and August 07th show the same decrease of a third for either measurements or simulated values. If we recall the important discrepancies appearing for urban carbonaceous aerosol measurements between different analytical protocols (Schmidt *et al.*, 2001), this fair agreement between simulated and experimental values may be coincidental but similar trends of BC/OC_{tot} under different meteorological situations is certainly an indicator of a reasonable parameterisation of the SOA formation in ORISAM for our case study. Furthermore, the experimental values were obtained for Gif sur Yvette aerosols at a suburban location, whereas the modelled values were calculated for central Paris. This difference in location has been shown to introduce a small shift of about 3% in experimental BC/OC ratios (Ruellan and Cachier, 2001), the pure urban aerosol being enriched in BC. This minor correction still emphasizes the agreement. Ho-

wever, due to the quoted limitations (linked to both experiments and modelling) more data comparisons are needed to actually validate the model SOA formation.

C.3.3 Sensitivity tests upon initialisation conditions

C.3.3.1 Impact of temperature and relative humidity on SOA formation

Two sets of sensitivity tests have been conducted with the same emissions and initialisations, changing the temperature or the relative humidity only. Figure C.4 displays 24 hours averages of values of OC_{sec}/OC_{tot} ratios obtained for the different simulations. Although comparison is based on 24 hours averages, OC_{sec} formation is highly dependent on temperature. However, dependency with the relative humidity is seen to be less important. Interestingly, a temperature threshold seems to appear around 20°C, with a sharp decrease of the OC_{sec}/OC_{tot} ratios around this temperature value. At lower temperatures, increasing temperature favours the SOA formation with although much less effect. This threshold is apparently the same for both seasons but as expected, photochemical OC_{sec} formation is more significant in summer than in winter (up to 50% more). Such results confirm the hierarchy of processes described in paragraph 3.1.

C.3.3.2 Sensitivity tests for SOA formation according to aerosol and gaseous precursor initialization

Different tests were conducted to capture the role of initial concentration levels of aerosol and gaseous precursors.

Firstly, the role of the carbonaceous particle size distribution was scrutinized. This parameter is probably the one subject to the larger uncertainties, due to lack of measurements. For the purpose of the tests, particle sizes used for « actual conditions » (paragraph 2.2: 0.1 μm for the first mode and 0.23 μm for the second mode) were respectively divided or multiplied by a factor of two. Such a range may account for more recent results (Putaud *et al.*, 2003; Cachier *et al.*, 2005). It was found in our sensitivity tests however, that these changes of particle size have no impact on OC_{sec} formation whereas important changes of the particle specific surface are expected with changes in the particulate size

distribution.

Secondly, as primary aerosol and gas concentrations have probably a strong impact on SOA formation, different simulations were performed changing concentrations of either the carbonaceous particles or the gases. Figures C.5a and C.5b show the relative increase in secondary organic aerosol due to changes in emissions when aerosol (figure C.5a) and gas amounts (figure C.5b) are successively divided and multiplied by a factor of 8, 4 or 2. As expected, it is shown that the secondary aerosol formation is highly dependent on the initial concentrations of aerosols or precursor gases. Also, it may be seen that the response to gas changes is much more important than the one obtained through changes in aerosol concentration levels: the range varies from -85% to almost 300% for gases whereas only from -14% to 33% for particles. It is interesting to note that significant differences occur between the two meteorological situations illustrated in figure C.5a. On 07/28/98, increase or decrease in particle emissions have a weaker impact on SOA formation when compared to 08/07/98. The impact of aerosol concentrations thus seems to be more important for the day with less favourable conditions (high temperature, low relative humidity) for SOA formation. Indeed the number of aerosols might play an important role to allow the transfer of the high gaseous organic precursors amount into particulate phase. The situation is different in Figure C.5b where conditions of SOA formation remain more favourable on 07/28/98 than on 08/07/98 (more hot, less humid), whatever the initialisation.

The initialisation procedure (called Init-mean) relies on average background aerosol concentration values obtained by a 24hr spin up performed for the previous day. Sensitivity tests were conducted by changing background concentrations of primary BC and OC particles by applying the Init-norm test. Let us recall that the init-norm test refers to an initialisation with instantaneous concentrations taken at 24h00 LT at the end of the spin up. Comparisons of BC/OC_{tot} ratios obtained for the two different initialisations are shown in table C.2. The initialisation procedure may be seen to have an important impact on BC/OC_{tot} values.

For summer, BC/OC_{tot} ratios are much lower in the new (init-norm case) simulation than in the previous (init-mean case) one. This is mainly due to higher primary organic

aerosol concentrations for the new case: BC concentrations are multiplied by 1.5 (for August 07th and July 28th), OC_p by 2.1 and 2.5 (for August, 7th and July 28th respectively). In addition, differences in OC_{sec} concentrations between the two cases are small as compared to differences in primary organic aerosol concentrations. Indeed, differences between secondary aerosol formation rates between init-norm and init-mean situations are slightly negative (-15% and -37%), which means that the secondary aerosol formation is favoured under the mean (not extreme) conditions. The difference between the two initialisation conditions is less pronounced for 07/28/98 than for 08/07/98. It seems that for this day (07/28/98) with particularly optimal conditions for secondary organic carbon formation, the initialisation conditions are less influent.

For winter days, the variation in primary aerosol concentrations between the two initialisations is of the same order, 1.4 both for BC and OC_p. Same tendency is observed for the two other winter days. Finally, it was observed that comparisons of simulations with experimental data are worst for all days with the Init-norm conditions.

C.4 Conclusion

Using the 0-D ORISAM aerosol module, tests were performed to simulate aerosol formation and ageing over Paris during the ESQUIF experiment for summer 1998 and winter 2000.

The module parameterizations allow to reproduce trends in the formation of secondary organic particles (SOA) and differences found experimentally between summer and winter aerosols. Moreover, in spite of the difficulty to accurately obtain actual BC and OC aerosol contents (still subject to debate), the few experimental black carbon to organic carbon ratio values available for this comparison are well reproduced for the summer season. No validation has been possible for winter due to lack of measurements, though there is still a general agreement for qualitative comparisons.

The module sensitivity to different changes was tested, such as temperature, relative

humidity, initial size distribution, background particulate concentrations and emissions of gases and primary carbonaceous aerosol. The most important effect is certainly that of temperature. This temperature effect shows a marked threshold value (20°C) at both seasons above which VOC transfer from the gas to particulate phase could be reduced, thus precluding any further important SOA formation. Further tests are ongoing to check if this threshold value is found at other sites. Changes in gas emissions have been shown to have a large impact on SOA formation too. Further investigations are needed to test the relative importance of chemically different VOC precursors. Unexpectedly, the aerosol size distribution has no quantifiable impact on the SOA formation, so further developments should be proposed for the parameterisation of OC_{sec} formation to account for the role of particle surface areas, in particular effective thermodynamic links of inorganic and organic species and particles (Pun *et al.*, 2002).

Changes in aerosol number appear of poor importance and a weak effect only of particulate background concentrations may be observed. It may be hypothesized that under unfavourable hot conditions when the gas to particle transfer is slowed down by high temperature, the need of aerosol sites active for absorption processes, could be then more determinant.

This preliminary work needs to be confirmed and completed by other studies over different areas in order to conclude if this type of module is able to reproduce SOA formation in a wide range of situations without considering more complex parameterisations. Tests on the impact of different combustion sources (biogenic/anthropogenic, fossil fuel/biomass burning) are ongoing. Furthermore, 1D and 3D aerosol modelling studies with ORISAM have allowed to test successfully along with the particulate phase transformations, the particle transport as well as wet and dry depositions (Cousin *et al.*, 2005).

| % | simulated BC/OC _{tot} ratio | | | | EF (Mesured BC/OC _{tot} ratio) | |
|---|--------------------------------------|------|-------|--------|--|---------|
| | Date | Mean | 0h-9h | 9h-21h | 21h-24h | 9h-21h |
| | 01/22/00 | 45 | 49 | 43 | 42 | No data |
| | 01/25/00 | 45 | 48 | 42 | 42 | No data |
| | 01/30/00 | 40 | 45 | 37 | 36 | No data |
| | 08/07/98 | 37 | 42 | 37 | 21 | 32 |
| | 07/28/98 | 29 | 40 | 24 | 20 | 21 |

TAB. C.1 – Simulated BC/OC_{tot} ratio (in %) for the selected winter and summer days. Summer days with existing experimental data are shaded.

| Initialisation type | Date (9h-21h) | Mean simulated BC/OC _{tot} ratio (%) | Mean Measured BC/OC _{tot} ratio (%) |
|---------------------|---------------|--|---|
| Init mean | 01/25/00 | 42 | No data |
| | 08/07/98 | 37 | 32 |
| | 07/28/98 | 24 | 21 |
| Init norm | 01/25/00 | 46 | No data |
| | 08/07/98 | 23 | 32 |
| | 07/28/98 | 20 | 21 |

TAB. C.2 – Simulated BC/OC_{tot} ratio (in %) for two different initial background concentration conditions at 00h00: - « init-mean » with the average daily concentrations obtained by a 24h spin-up the day before. - and « init-norm » with concentrations obtained at 00h00 after a 24h spin-up the day before.

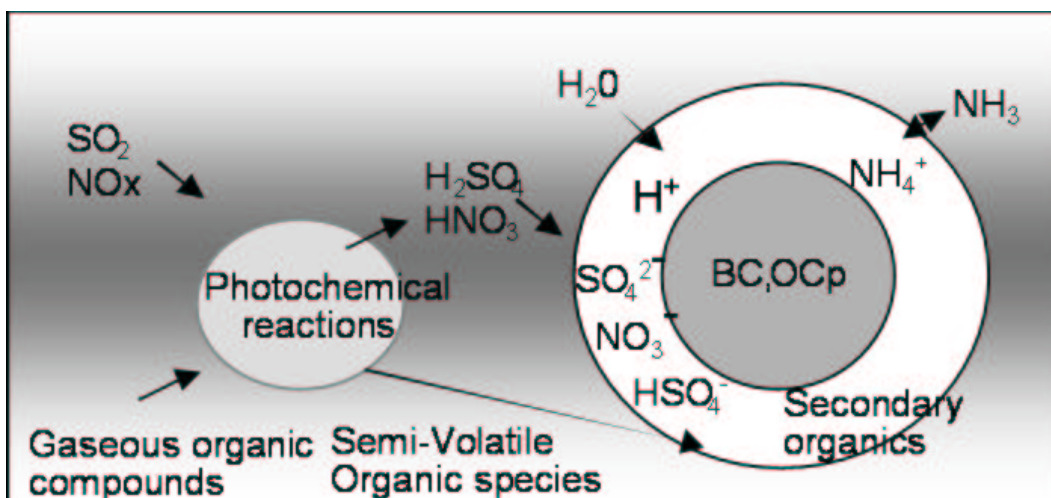


FIG. C.1 – General schematic representation of ORISAM

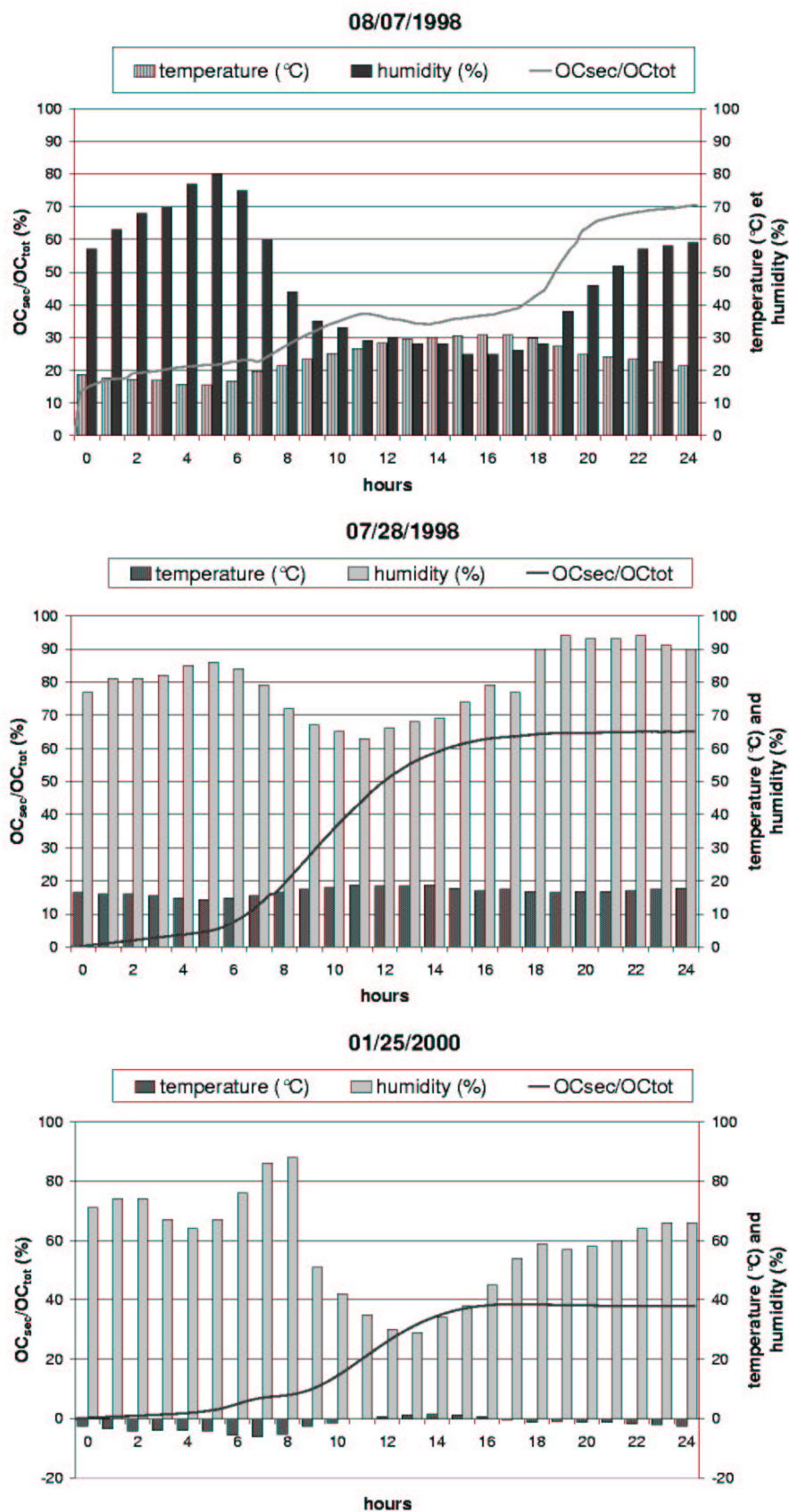
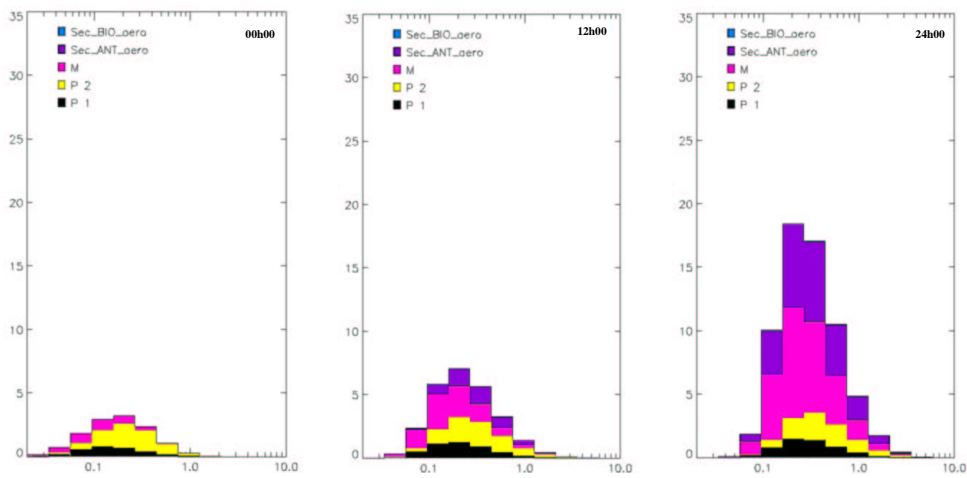
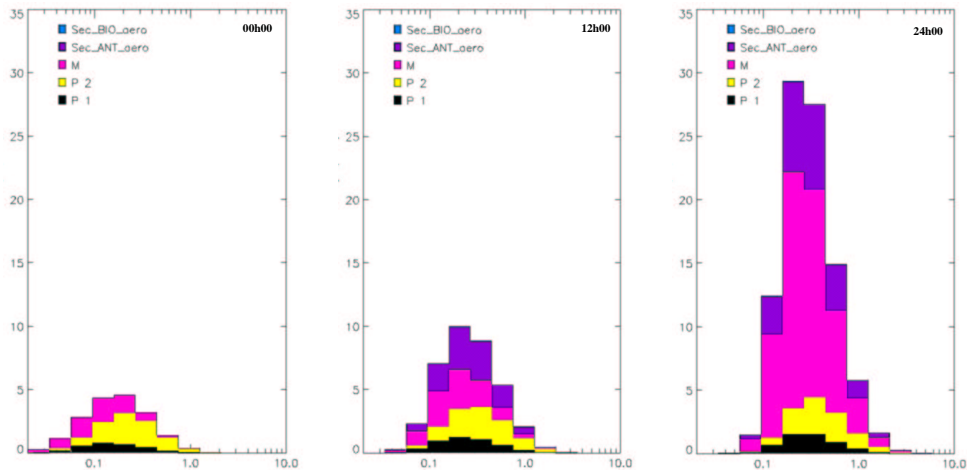


FIG. C.2 – Daily evolutions of temperature, relative humidity and OC_{sec}/OC_{tot} ratio (in %) 251
 (a) August 07th 1998, (b) July 28th 1998 and (c) January 25th 2000.

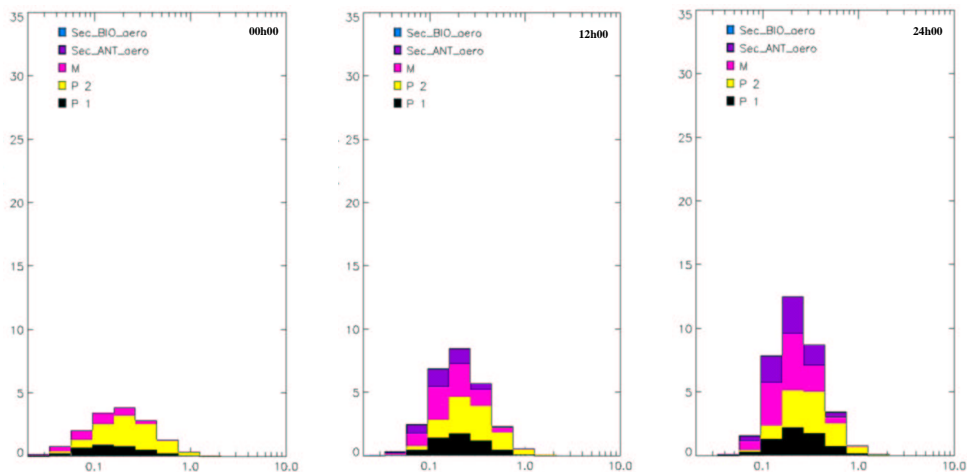
Mass size distribution
3a : 08/07/98



3b : 07/28/98



3a : 01/25/00



Diametre (μm)

FIG. C.3 – Evolution of the different aerosol components respectively for (a) August 07th 1998, (b) July 28th 1998 and (c) January 25th 2000 (P1 : black carbon, P2 : primary organic carbon, M : cater soluble fraction including water, Sec-bio-aero : biogenic secondary organic aerosol, Sec-ant-aero : anthropogenic secondary organic aerosol.

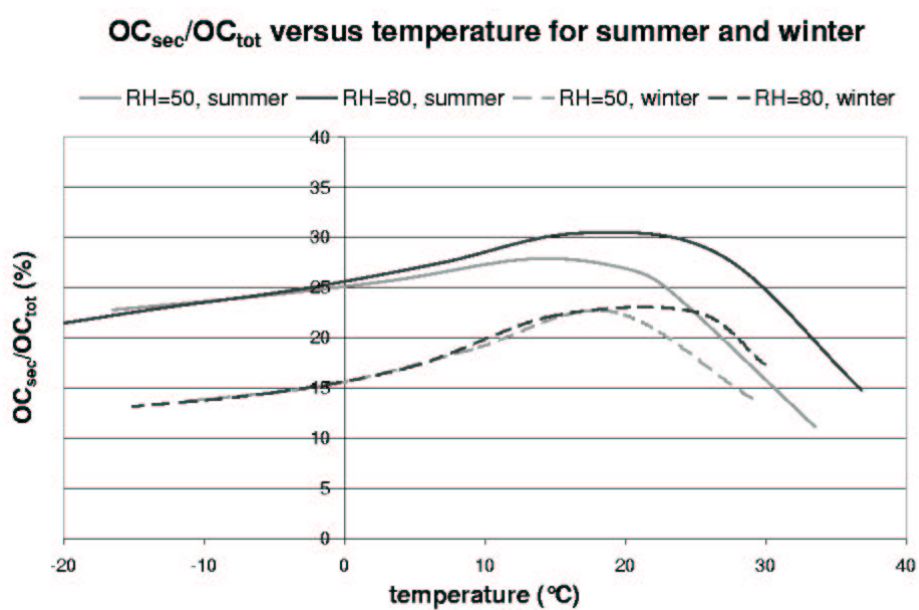


FIG. C.4 – Temperature threshold for SOA formation as seen by the evolution of the OC_{sec}/OC_{tot} ratio, for different meteorological conditions: two relative humidity (50 and 80%) and two seasonal (winter and summer) insolation conditions.

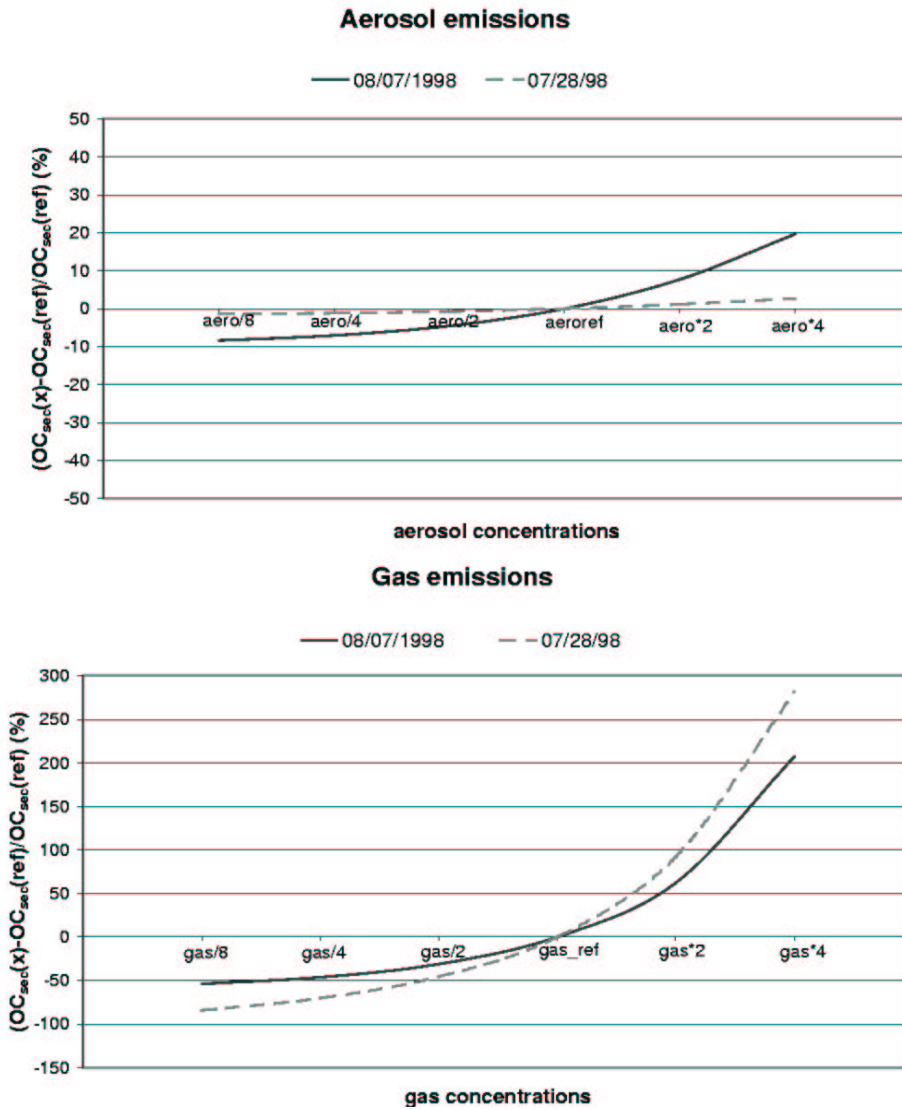


FIG. C.5 – Relative increase of OC_{sec} (in %), (a) for different particle emissions and (b) for different gas emissions.

Annexe D

Concentrations gazeuses de fond

| Espèces | Pékin | Gosan | ABBI-feux |
|---------|----------|----------|-----------|
| O3 | 3.31E+11 | 3.53E+10 | 7.64E+10 |
| H2O2 | 3.02E+08 | 1.48E+07 | 4.92E+07 |
| NO | 2.06E+11 | 2.36E+10 | 6.56E+10 |
| NO2 | 1.91E+11 | 2.11E+09 | 1.25E+10 |
| NO3 | 2.62E+05 | 3.31E+03 | 1.46E+04 |
| N2O5 | 5.75E+06 | 6.51E+02 | 1.43E+04 |
| HONO | 9.71E+08 | 3.34E+08 | 1.10E+09 |
| HNO3 | 2.33E+09 | 1.03E+09 | 3.68E+09 |
| HNO4 | 7.87E+07 | 6.39E+05 | 8.89E+06 |
| NH3 | 4.72E+11 | 1.91E+10 | 1.37E+11 |
| HCL | 0.00E+00 | 0.00E+00 | 0.00E+00 |
| SO2 | 1.75E+11 | 1.97E+09 | 8.97E+09 |
| SULF | 3.25E+10 | 8.67E+09 | 5.21E+10 |
| CO | 5.85E+12 | 6.14E+10 | 1.06E+12 |
| O3P | 1.43E+04 | 3.58E+02 | 1.54E+03 |
| O1D | 3.37E-03 | 6.93E-04 | 1.52E-03 |
| OH | 1.30E+06 | 4.92E+06 | 6.16E+06 |
| HO2 | 6.61E+06 | 5.92E+06 | 1.63E+07 |
| CH4 | 4.68E+08 | 8.59E+05 | 1.39E+10 |
| ETH | 4.78E+10 | 8.92E+08 | 1.23E+10 |
| HC3 | 1.22E+11 | 5.63E+09 | 1.57E+10 |
| HC5 | 1.05E+11 | 3.79E+09 | 1.15E+10 |
| HC8 | 4.22E+10 | 1.62E+09 | 4.94E+09 |
| ETE | 7.95E+10 | 1.54E+09 | 1.80E+10 |
| OLT | 3.16E+10 | 4.51E+08 | 5.12E+09 |
| OLI | 2.86E+09 | 2.76E+07 | 7.09E+08 |
| DIEN | 0.00E+00 | 0.00E+00 | 0.00E+00 |
| ISO | 1.70E+07 | 0.00E+00 | 6.73E+06 |
| API | 1.15E+07 | 0.00E+00 | 0.00E+00 |
| LIM | 2.49E+06 | 0.00E+00 | 0.00E+00 |
| TOL | 6.80E+10 | 1.10E+09 | 7.68E+09 |
| XYL | 3.42E+10 | 2.81E+08 | 2.66E+09 |
| CSL | 1.06E+08 | 3.47E+06 | 2.75E+07 |
| HCHO | 3.56E+10 | 1.82E+09 | 1.27E+10 |
| ALD | 2.58E+10 | 1.05E+09 | 9.83E+09 |
| KET | 1.89E+10 | 1.59E+09 | 4.57E+09 |
| GLY | 5.48E+09 | 2.66E+08 | 1.25E+09 |

Annexe D. Concentrations gazeuses de fond

| | | | |
|------|----------|----------|----------|
| MGLY | 4.67E+09 | 1.76E+08 | 1.04E+09 |
| DCB | 2.59E+09 | 5.98E+07 | 5.54E+08 |
| MACR | 1.31E+07 | 0.00E+00 | 1.12E+07 |
| UDD | 1.11E+08 | 3.78E+06 | 3.39E+07 |
| HKET | 2.24E+08 | 2.43E+07 | 3.19E+07 |
| ONIT | 5.34E+09 | 4.25E+08 | 5.77E+08 |
| PAN | 3.22E+09 | 2.31E+07 | 2.10E+08 |
| TPAN | 9.32E+08 | 4.84E+06 | 5.06E+07 |
| OP1 | 3.64E+07 | 1.38E+06 | 4.76E+06 |
| OP2 | 3.08E+08 | 1.56E+07 | 3.50E+07 |
| PAA | 1.73E+07 | 6.78E+05 | 2.41E+06 |
| ORA2 | 9.33E+08 | 2.53E+06 | 1.54E+09 |
| MO2 | 9.34E+05 | 8.87E+05 | 3.05E+06 |
| ETHP | 1.51E+05 | 1.49E+05 | 2.31E+05 |
| HC3P | 2.58E+05 | 4.14E+05 | 4.91E+05 |
| HC5P | 5.78E+05 | 6.92E+05 | 9.47E+05 |
| HC8P | 6.69E+05 | 8.50E+05 | 1.17E+06 |
| ETEP | 5.00E+05 | 3.17E+05 | 1.67E+06 |
| OLTP | 1.62E+06 | 7.58E+05 | 3.84E+06 |
| OLIP | 3.41E+05 | 1.08E+05 | 1.24E+06 |
| ISOP | 2.82E+03 | 0.00E+00 | 1.65E+04 |
| APIP | 1.03E+03 | 0.00E+00 | 0.00E+00 |
| LIMP | 6.70E+02 | 0.00E+00 | 0.00E+00 |
| PHO | 3.77E+02 | 2.41E+03 | 4.10E+03 |
| ADDT | 1.53E+02 | 9.58E+00 | 8.37E+01 |
| ADDX | 3.11E+02 | 9.85E+00 | 1.17E+02 |
| ADDC | 2.17E+00 | 2.76E-01 | 2.76E+00 |
| TOLP | 5.83E+05 | 3.12E+05 | 9.75E+05 |
| XYLP | 1.19E+06 | 3.22E+05 | 1.37E+06 |
| CSLP | 8.30E+03 | 9.00E+03 | 3.22E+04 |
| ACO3 | 3.27E+05 | 3.24E+05 | 1.14E+06 |
| TCO3 | 1.54E+05 | 7.01E+04 | 2.51E+05 |
| KETP | 5.47E+04 | 5.39E+04 | 7.65E+04 |
| OLNN | 5.86E+02 | 7.02E-01 | 2.27E+01 |
| OLND | 3.60E+03 | 3.89E+00 | 1.49E+02 |
| XO2 | 8.03E+05 | 7.64E+05 | 1.44E+06 |
| HC5A | 6.62E+05 | 4.09E+05 | 4.69E+05 |
| HC8A | 2.29E+07 | 1.90E+07 | 2.20E+07 |
| OLTA | 9.08E+06 | 3.76E+06 | 1.80E+07 |
| OLIA | 6.25E+06 | 9.11E+05 | 1.15E+07 |
| TOLA | 3.21E+07 | 9.64E+06 | 2.50E+07 |
| XYLA | 4.45E+07 | 1.03E+07 | 3.94E+07 |
| CSLA | 6.68E+05 | 1.86E+05 | 4.25E+05 |
| ALDA | 3.87E+05 | 1.69E+05 | 4.58E+05 |
| LIMA | 9.52E+04 | 6.03E-10 | 1.01E-09 |
| APIA | 1.92E+05 | 6.03E-10 | 1.01E-09 |

TAB. D.1 – Concentrations gazeuses de fond des simulations références effectuées avec ORISAM-0D pour Pékin, Gosan et « ABBI-feux »

Annexe E

Conduite de Projet de Recherche

Conduite du projet de recherche

Christelle MICHEL

Titre de la thèse :

L'aérosol^(*) de combustion dans une région en grande mutation,
l'Asie.



Ecole doctorale

Sciences de l'Univers, de l'Environnement et de l'Espace de Toulouse

Laboratoire d'accueil

Laboratoire d'Aérodologie, Observatoire Midi-Pyrénées, Toulouse

(*) aérosol : suspension de particules solides et/ou liquides dans un milieu gazeux.

E.1 Présentation du Projet

E.1.1 Contexte

Protocole de Kyoto pour les gaz à effet de serre, convention de Genève pour les réductions d'émissions des particules ... : ces engagements correspondent aujourd'hui à une vraie demande sociétale permettant d'appréhender l'impact de la chimie atmosphérique sur le climat, la pollution et la santé.

Bien que les aérosols soient absents du Protocole de Kyoto, leur rôle climatique, plus difficile à évaluer que celui des gaz à effet de serre, est maintenant avéré. De récents travaux ont montré que l'aérosol carboné et les sulfates avaient un impact radiatif direct aussi important que les gaz à effet de serre, mais de signe contraire. Même si ce rôle est encore peu connu, les gouvernements des pays industrialisés commencent à mettre en place des stratégies de réduction des émissions de particules.

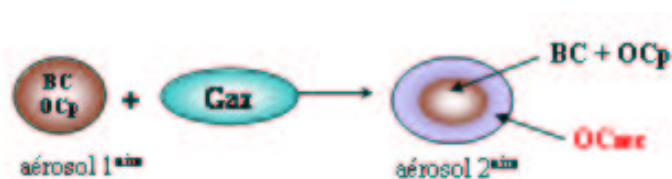


FIG. E.1 – L'aérosol carboné.

L'impact radiatif des particules est complexe et multiple à cause de l'inhomogénéité de la distribution géographique des aérosols et de leurs propriétés. Sur la figure E.1, on peut distinguer :

- l'aérosol primaire (émis directement à la source)
- l'aérosol secondaire (formé par réaction avec les gaz)

La particularité de l'aérosol carboné est que les deux fractions qui le composent ont des propriétés radiatives opposées. Le carbone suie (BC) absorbe le rayonnement solaire (il « réchauffe » l'atmosphère) et le carbone organique (OC), qu'il soit d'origine primaire (OC_p) ou secondaire (OC_{sec}), diffuse le rayonnement solaire (il « refroidit » l'atmosphère).

Par leur capacité à agir comme noyau de condensation, ils peuvent modifier le temps de

vie des nuages, limiter les précipitations, augmenter le pouvoir réfléchissant des systèmes nuageux, et donc entraîner un refroidissement.

Comme les propriétés des deux composantes sont totalement différentes, on comprend bien que suivant la quantité de carbone organique secondaire formée, l'impact radiatif de l'aérosol sera soit positif, soit négatif. Or cette composante secondaire est actuellement très mal connue, et difficile à quantifier.

Dans le cadre de cette problématique, la campagne ACE-Asia (Asian Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment) [<http://saga.pmel.noaa.gov/aceasia/>], a été mise en place. Cette campagne est soutenue par l'International Global Atmospheric Chemistry (IGAC) dont l'objectif est l'amélioration de la compréhension de l'impact des aérosols atmosphériques sur le système climatique terrestre.

Le choix de l'Asie a été motivé par la nécessité d'étudier cette zone en grande mutation, où l'abondance relative de l'aérosol ne cesse d'augmenter en conséquence de la croissance des activités anthropiques (liées à l'homme) polluantes. De plus, une forte empreinte régionale est observée, avec différents types d'émissions, dépendant de la grande hétérogénéité des végétations et des climats (émissions de feux de biomasse (végétation)), ainsi que de l'évolution rapide de la population et de l'industrialisation (émissions de combustion de fuels fossiles et de biofuels).

J'ai effectué ma thèse, intitulée « **L'aérosol de combustion dans une région en grande mutation, l'Asie** », au sein du Laboratoire d'Aérodologie, dans l'équipe Système Atmosphérique Multiphasique (SAM), sous la direction de Catherine Lioussé. Ces travaux s'intègrent dans les trois axes de recherche de l'équipe SAM (émission, réactivité à l'échelle locale et évolution), et dans les thématiques de deux programmes :

- Programme GICC: Gestion et Impact du Changement Climatique, mis en oeuvre par le ministère de l'écologie et du développement durable, dans le but d'optimiser les stratégies de prévention de l'augmentation des gaz à effet de serre (GES) et d'adaptation aux changements climatiques (Protocole de Kyoto et Programme

national de lutte contre l'effet de serre).

- Programme PNCA: Programme National de Chimie Atmosphérique, l'INSU, Institut National des Sciences de l'Univers (ministère de la Recherche), thème n°3: aérosols et chimie hétérogène.

E.1.2 Mon projet de recherche

Il a pour but d'améliorer la compréhension de l'aérosol carboné par une approche mettant en œuvre: études expérimentales, cartographies des cadastres d'émissions, modélisation et données satellites. Alors que les mesures et les données satellites permettent de caractériser ponctuellement et localement des phénomènes, la cartographie et la modélisation permettent de spatialiser ces phénomènes et de réduire les coûts liés à ces études.

Mon travail de thèse se décompose en deux parties:

♣ **Elaboration du cadastre d'émission des feux de végétation**

★ *Cadre de l'étude*

Avant de débiter les travaux de modélisation, il était tout d'abord nécessaire d'avoir des inventaires d'émissions adaptés à la zone et la période d'étude. Un inventaire d'émissions de fuels fossiles et de biofuels avait été développé pour l'Asie [Streets *et al.*, 2003], mais rien n'existait au début de ma thèse pour les feux.

La caractérisation des émissions par les feux de biomasse a beaucoup évolué ces dernières années. Les inventaires jusqu'alors disponibles reposaient sur une détermination statistique de la quantité de biomasse brûlée. Des premières améliorations qualitatives furent apportées par l'utilisation des distributions spatiales des pixels de feux actifs, c'est-à-dire par l'acquisition des données satellites au moment où la végétation est en train de brûler (événement ponctuel dans le temps).

★ *Stratégie*

L'inventaire d'émissions que j'ai construit est basé, non pas sur la localisation de feux actifs, mais sur la distribution des surfaces brûlées jusqu'alors peu utilisée pour la détermination

des émissions de gaz et particules. Travailler sur les surfaces brûlées permet d'avoir directement une notion de la quantité et de la localisation de la végétation brûlée, mais également de minimiser l'effet de l'échantillonnage temporel (signature de longue durée).

★ *Résultats*

Le résultat de ce travail, le cadastre ABBI (Asian Biomass Burning Inventory), a été comparé avec un inventaire d'émissions des feux de végétation construit à partir des pixels de feux. En terme de bilan, la somme de carbone suie (BC) émis est sensiblement la même entre les deux inventaires. Par contre, les distributions spatiales et temporelles sont totalement différentes. Cette étude montre les limites de l'utilisation des pixels de feux dans l'établissement des cartes d'inventaires d'émissions par les feux de biomasse, tout en soulignant l'importance de la méthode que j'ai développée.

♣ **Modélisation de l'aérosol carboné**

★ *Cadre de l'étude*

La plupart des études de modélisation de l'aérosol sont conduites avec des modèles de « mélange externe », dans lesquels les particules sont décrites indépendamment les unes des autres, sans interaction.

★ *Stratégie*

J'ai ensuite introduit les émissions de feux (ABBI) et de fuels fossiles dans MésoNH-C-ORISAM, modèle déterministe de transport chimique comportant un module aérosol. Ce modèle a la particularité de considérer toute la complexité de l'aérosol (mélange interne), de prendre en compte son évolution physico-chimique dans le temps et son transport.

★ *Résultats*

Les sorties du modèle ont été comparées avec les mesures au sol (Corée, Japon, Chine ...), et aéroportées (vols effectués aux dessus de l'océan Pacifique au sud du Japon).

Les études suivantes ont été menées :

- impact des feux de biomasse par rapport à celui de fuels fossiles sur la concentration

en particules carbonées

- transport des particules depuis lors zone d'émissions (feux du Kazakhstan) jusqu'à Pékin.
- impact des différents inventaires d'émissions de feux au sein de MésoNH-C-ORISAM

Des tests avec le module ORISAM dans sa version 0D ont ensuite été effectués pour étudier la sensibilité du modèle aux facteurs ayant des impacts sur les concentrations de carbone organique.

E.2 Ressources financières et humaines du Projet

La réalisation de ce travail de thèse a nécessité l'implication de nombreuses personnes et la participation financière de différents organismes.

Une collaboration avec Jean-Marie Grégoire (Centre Commun de Recherche (CCR) de la Commission Européenne (Ispra, Italie)) a été mise en place pour la phase de traitement de données satellites. J'ai ainsi séjourné six mois dans ce laboratoire européen. Plusieurs déplacements ont ensuite été nécessaires pour faire le point avec ma responsable de thèse Catherine Liousse et les personnes impliquées dans ce projet au CCR (Jean-Marie Grégoire et Kevin Tansey).

Cette collaboration a été principalement financée par une bourse ATUPS de l'université Paul Sabatier, et les projets PNCA et GICC.

Le travail effectué avec le modèle MésosNH-C a demandé un investissement important de la part des ingénieurs de recherche du laboratoire d'Aérodynamique (Juan Escobar et Didier Gazen) et du doctorant Frédéric Cousin.

L'utilisation constante de ressources informatiques importantes a été facilitée par les nombreuses interventions de Laurent Cabanas, assistant ingénieur. Ma participation à plusieurs conférences pour présenter les résultats de mes travaux a occasionné également de nombreux frais.

Les tableaux suivants quantifient le rôle des intervenants dans la réalisation de ce projet et les ressources financières pour les trois années de thèse.

| Personnes impliquées | Heures |
|---------------------------------------|---------------|
| Catherine Liousse (CR1 - LA) | 200 |
| Frédéric Cousin (doctorant - LA) | 100 |
| Juan Escobar (IR - LA) | 30 |
| Didier Gazen (IR - LA) | 10 |
| Laurent Cabanas (AI - LA) | 150 |
| Bruno Guillaume (ingénieur - LA) | 30 |
| Jean-Marie Grégoire (chercheur - CCR) | 90 |
| Kevin Tansey (post-doc - CCR) | 90 |
| Ilaria Marengo (stagiaire - CCR) | 50 |
| Luigi Boschetti (doctorant - CCR) | 15 |
| Pierre Tulet (IT - Météo-France) | 10 |

Annexe E. Conduite de Projet de Recherche

| Type de dépense | Montants (euros) | Organismes |
|-----------------------------------|------------------|----------------------|
| Frais de fonctionnement | 22 300 | CNRS |
| Salaire ⁽¹⁾ | 74 000 | Université |
| Salaires autres ⁽²⁾ | 24 100 | Université/CNRS/EU |
| Mission/Conférence ⁽³⁾ | 5 300 | CNRS/INSU |
| Collaboration CCR | 4 400 | Université/CNRS/INSU |
| Heures de calcul | 68 600 | CNRS |
| → Total | 198 700 | |

1- Le salaire personnel comprend l'allocation de recherche MNRT et mon salaire de moniteur (charges sociales comprises).

2- Ces salaires comprennent les salaires des personnes ayant permis l'aboutissement de ce projet (ingénieurs d'étude, chercheurs, assistants ingénieur, techniciens, comptables, doctorants ...) , toutes charges comprises.

3- Comprend les frais de déplacement, d'hébergement, d'inscription et les repas.

E.3 Gestion de Projet

Mon travail de thèse se décompose en 2 principaux thèmes : création d'un inventaire d'émission et modélisation de l'aérosol. Pour mener à bien ces études, plusieurs étapes peuvent être dégagées :

♣ Création de l'inventaire d'émissions des feux de végétation

★ *Démarche*

Ce travail de traitement de données a débuté en février 2002, lorsque les données satellites furent disponibles, et que j'ai rejoint l'équipe de Jean-Marie Grégoire en Italie.

La démarche utilisée peut se résumer ainsi :

- Feux de végétation : événements télédéetectables (acquisition par le satellite SPOT-Végétation).
- Données satellites → carte de surfaces brûlées : application d'un algorithme qui permet la localisation géographique et temporelle des surfaces brûlées issues des feux de végétation.
- Carte de surfaces brûlées × (carte de couvert végétal et facteurs d'émission) → inventaire d'émissions de gaz et particules (ABBI) : les cartes de surfaces brûlées sont croisées avec une carte de couvert végétal pour permettre la détermination du type de végétation brûlée. Ces cartes résultantes sont ensuite multipliées par les facteurs adéquats, dépendants du type de végétation et permettent d'obtenir l'inventaire d'émissions.

★ *Collaboration*

L'obtention des surfaces brûlées s'est faite en étroite collaboration avec le Centre Commun de Recherche (CCR) d'Ispra, Italie. Ainsi, entourée de spécialistes dans le traitement de données satellites pour la détection des surfaces brûlées, j'ai pu bénéficier de leurs outils (algorithmes, logiciels ...) et de leur savoir-faire dans le domaine pour mener à bien mon étude.

La cartographie des surfaces brûlées a donc été obtenue grâce à une filière de traite-

ment développée pour le projet GBA2000 [Tansey, 2002; Grégoire *et al.*, 2003], modifiée pour ma zone et période d'étude.

★ *Bibliographie*

Une importante phase de bibliographie a été nécessaire pour déterminer les facteurs adaptés à l'Asie : facteurs d'efficacité de brûlage, de densité de biomasse et d'émissions. Cette étude a été valorisée par des concertations avec des chercheurs spécialistes de la végétation à Ispra, et avec Catherine Liousse, spécialiste des émissions de particules carbonées.

★ *Traitement de données*

Les étapes précédentes m'ont permis de mettre en place une filière de traitement informatique pour la création de l'inventaire d'émissions, qui se divise en deux parties :

- la première est basée sur l'utilisation d'un logiciel d'analyse, SIG, Système d'Information Géographique. Cette étape consiste à croiser plusieurs cartes entre elles, pour obtenir des cartes ou des fichiers multi-information. Les cartes et les tables résultant de cette analyse permettent d'effectuer des études statistiques (ex : distribution du type de végétation brûlée par pays, distribution latitudinale des surfaces brûlées...). Pour l'élaboration de l'inventaire d'émissions, les surfaces brûlées ont été redistribuées dans une grille de 1° x 1°.
- la deuxième partie qui concerne la compilation des émissions est basée sur un traitement par programmes fortran 90, développé avec l'aide de Bruno Guillaume. L'inventaire ABBI (Asian Biomass Burning Inventory) a été élaboré pour 58 composants gazeux et les 2 aérosols carbonés primaires.

♣ **Modélisation de l'aérosol**

★ *Démarche*

Les émissions de feux (ABBI) et de fuels fossiles (inventaire de Streets *et al.*, 2003) ont été introduites dans MésoNH-C-ORISAM, modèle déterministe de transport chimique comportant un module aérosol. Les simulations pour 4 jours d'étude ont été réalisées puis

comparées aux mesures. En vue de mettre en évidence l'importance d'une bonne description de la localisation temporelle et spatiale des feux de végétation pour les exercices de modélisation, un autre inventaire d'émission a également été introduit dans MésoNH-C-ORISAM pour comparaison.

★ *Modélisation numérique*

- L'utilisation du module OD (c'est à dire variation temporelle en un point) ORISAM [Bessagnet, 2000] a fait l'objet de mon stage de DEA et des premiers mois de ma thèse. Au cours de cette période, j'ai amélioré un inventaire d'émissions d'aérosols carbonés, émis par les fuels fossiles [Cooke *et al.*, 1999], puis je l'ai introduit dans le module pour étudier la formation de carbone organique secondaire. Ce travail m'a permis de me familiariser avec le module aérosol qui a ensuite été introduit dans le modèle MésoNH-C.
- La dernière étape de ma thèse fut consacrée à la modélisation avec le modèle MésoNH-C-ORISAM. Elle commença par la prise en main du modèle, suivie par de nombreux tests. En effet, les conditions extrêmes rencontrées en Asie nécessitèrent d'importantes modifications de la configuration du modèle afin de résoudre plusieurs difficultés d'ordre numérique. Les ressources humaines du laboratoire d'Aérodologie en la personne de Frédéric Cousin et Juan Escobar, se sont chargées des améliorations impliquant la programmation tandis que je réalisais les phases de tests associés.

★ *Interprétation scientifique des résultats*

Parallèlement au travail de modélisation, un important dépouillement des mesures de la campagne ACE-Asia a été opéré. Cette étape a permis de déterminer les journées où de fortes concentrations de particules carbonées avaient été observées.

Une fois les simulations obtenues, j'ai comparé les sorties du modèle avec les mesures « sol » (Corée, Japon, Chine ...), et « avions » (vols effectués au dessus de l'océan Pacifique au sud du Japon). J'ai pour cela automatisé le traitement des données face au nombre important de fichiers à analyser. Une étude sur l'impact et la contribution des émissions de feux de biomasse par rapport aux émissions de fuels fossiles sur la concentration des

particules carbonées et de leur transport, ainsi que sur la formation de l'aérosol organique secondaire dans le modèle a ensuite été menée.

♣ **Communications**

La qualité d'un travail scientifique se juge sur son contenu, mais également sur la mise en forme des résultats, que ce soit par des publications dans des revues scientifiques, mais aussi lors de communications orales. J'ai donc été amenée à présenter mes travaux à plusieurs reprises au cours de mes trois années de thèse sous différents supports.

★ *Communications écrites*

Mon travail a fait l'objet de deux publications dans des revues scientifiques :

- l'une sur les résultats obtenus avec le module ORISAM (travaux de DEA) [Liousse *et al.*, 2005]
- l'autre sur une comparaison de l'inventaire d'émissions ABBI avec un inventaire des feux de végétation, élaboré non pas à partir des surfaces brûlées, mais à partir des pixels de feux [Michel *et al.*, 2005].

Un rapport sur le travail effectué dans le cadre de la collaboration avec le centre européen d'Ispra a été rédigé pour l'Université Paul Sabatier (rapport ATUPS) afin de justifier l'intérêt de ce séjour.

★ *Communications orales*

Ma participation à plusieurs conférences internationales m'a permis de présenter mon travail à l'oral :

- Conférence EGS (Nice - mai 2002) : poster sur les travaux de DEA
- Workshop émissions (Toulouse - juin 2002) : présentation orale sur la cartographie des surfaces brûlées en Asie.
- Conférence IGAC (Crète - septembre 2002) : poster sur la création de l'inventaire ABBI et la nouvelle méthode de traitement.
- Séminaire de mi-thèse (Toulouse - novembre 2002) : présentation des résultats des deux premières années de thèse.

Lorsque j'ai débuté ma thèse, les différentes étapes de travail étaient clairement définies. Toutefois s'agissant d'un travail de recherche totalement nouveau, des développements non prévus (algorithmes pour le traitement de données satellites, modèle MésoNH-C-ORISAM ...) ont dû être effectués afin de permettre la réalisation de ce projet, ce qui a retardé certains travaux. De plus, ma charge d'enseignement à l'université, et les formations CIES (Centre d'Initiation à l'Enseignement Supérieur de Toulouse) représentent un investissement personnel et temporel important.

E.4 Connaissances et compétences développées durant la thèse

La réalisation de ce travail de thèse m'a permis de développer des compétences complémentaires à celles que j'avais acquises au cours de mon cursus universitaire.

La particularité de ce projet est qu'il regroupe plusieurs domaines scientifiques : le traitement de données satellites, la physico-chimie de l'atmosphère, la météorologie, l'analyse de résultats expérimentaux et leurs dépouillements, la modélisation...

Etant donné la diversité du sujet, je dirais que les compétences majeures que j'ai eues à développer sont la communication, le travail en équipe et une grande capacité d'adaptation.

♣ Vulgarisation

Il fallait expliquer à des non spécialistes, la chimie atmosphérique, pour définir les objectifs de mon travail et leur permettre ainsi de collaborer efficacement. Pour cela, j'ai fait preuve d'esprit de synthèse et de vulgarisation des termes scientifiques. A mon tour, je me suis familiarisée avec les termes techniques des autres domaines (notamment pour le traitement satellite et la végétation). J'ai également été confrontée à ce problème de vulgarisation scientifique, lors de mes participations :

- aux journées scientifiques nationales : sensibilisation du public aux problèmes de pollution, explications et démonstrations du fonctionnement des principaux appareils de mesure de la qualité de l'air (ozone, monoxyde de carbone, monoxyde et dioxyde d'azote...) et de météo.
- aux doctoriales (séminaire de sensibilisation à la dynamique et à la vie de l'entreprise) : présentation de mon sujet de thèse à des néophytes de la physico-chimie de l'atmosphère.

♣ Communication et langue

Lors de mon séjour à Ispra, la langue de travail utilisée était l'anglais : j'ai donc acquis une bonne connaissance des termes techniques dans cette langue. Ceci est primordial pour

travailler en équipe, pour la publication de rapports scientifiques et pour la participation à des séminaires sous forme de communications orales ou de posters face à une communauté scientifique internationale exigeante.

♣ Informatique

Tout comme je me suis adaptée sur le plan des connaissances scientifiques des différents secteurs d'étude touchés par mon projet de thèse, j'ai appris à utiliser les outils requis à l'analyse des données dans ces domaines, notamment les outils informatiques :

- utilisation de l'environnement Linux/Unix,
- programmation en fortran (notions),
- Systèmes d'Informations Géographiques (pour la création de l'inventaire d'émission),
- utilisation du modèle déterministe de transport chimique MésoNH-C (pour la réalisation des simulations)...

♣ Interprétation scientifique des résultats

Après le traitement des données, une importante phase d'analyse et d'interprétation des résultats a suivi. J'ai ainsi approfondi mes connaissances en physico-chimie de l'atmosphère (gaz et particules) acquises au cours de ma formation universitaire, plus précisément au niveau de l'étude des processus physico-chimiques de l'aérosol, des interactions gaz-particules, et de la dispersion des polluants dans l'atmosphère.

♣ Travail en équipe

Le travail en équipe a été très présent au cours de ces trois années de thèse, d'une part au sein du laboratoire, mais également avec l'équipe de Jean-Marie Grégoire de la Commission Européenne, et l'équipe de Gregory Carmichael de l'université de l'Iowa (USA). Ces collaborations ont permis d'avoir des avis très pointus sur plusieurs domaines d'étude, et ont contribué de façon significative à l'avancement du projet. Toutefois, la rédaction d'une publication me demanda une souplesse importante pour prendre en compte l'avis des différents co-auteurs et parvenir à un consensus.

♣ Autonomie

Au cours de ces trois années, j'ai appris à chercher l'information, tant au niveau de la documentation (recherche bibliographique), qu'auprès des personnes pouvant me renseigner sur le domaine d'étude considéré.

J'ai également dû faire preuve d'autonomie pour la gestion du temps dans l'organisation de mon projet, et preuve d'engagement au niveau de l'équipe SAM pour la définition de ses axes d'études.

♣ Enseignement et encadrement

Mes activités de monitrice m'ont permis par ailleurs de m'initier à l'encadrement et la formation, et m'ont demandé d'importantes qualités organisationnelles et administratives.

Elles m'ont également ouvert de nouvelles perspectives quant à mon projet professionnel dans un cadre hors académique (formation du personnel, audit ...).

E.5 Evaluation des retombées du Projet

Ce travail de thèse s'inscrit dans les programmes nationaux GICC et PNCA, qui sont des projets à long terme : quantifier la contribution des aérosols sur le bilan radiatif terrestre, améliorer les descriptions des inventaires d'émission, comprendre les processus physico-chimiques des particules et des gaz... Répondre à ces problématiques demande l'investissement de nombreux chercheurs et plusieurs années d'études. Le laboratoire d'Aérodologie s'investit largement dans ces axes d'études.

Mon travail de thèse a permis la création d'un inventaire d'émissions des feux de biomasse adapté à la zone asiatique, apportant une amélioration significative par rapport aux données pré-existantes. La filière de traitement mise en place va permettre le traitement des émissions des feux dans le monde entier et ainsi apporter une meilleure description de la distribution des feux, aussi bien pour les modèles climatologiques (échelle globale), que les modèles régionaux.

La rédaction d'une publication sur ces travaux permet d'obtenir la reconnaissance d'un certain savoir-faire dans ce domaine au niveau de la communauté scientifique internationale. Ces retombées sont aussi importantes pour le laboratoire, les co-auteurs, que pour moi-même.

La partie modélisation a permis de tester et valider le module d'aérosol récemment inséré dans le modèle MésoNH-C. Des comportements de l'aérosol spécifiques à cette région ont été simulés et la contribution des feux de végétation a été évaluée par rapport aux fuels fossiles.

La collaboration avec le CCR d'Ispra et l'équipe de Jean-Marie Grégoire existait avant le début de ma thèse, mais mon séjour a renforcé et bonifié les liens entre ces deux équipes. L'échange des données satellites pour la création des inventaires d'émissions va donc continuer pour les années futures.

E.6 Mes conclusions

Avec le recul, je pense que le doctorat est un diplôme qui n'est pas facile à valoriser sur un CV, d'où la nécessité d'orienter son travail de recherche en adéquation avec les objectifs de sa vie professionnelle future. Je dirais donc que faire une thèse est un choix très personnel, et qu'il faut prêter beaucoup d'attention au choix du sujet, à son intérêt, au directeur de thèse, au laboratoire, et aux conditions de travail et d'accompagnement. Il faut absolument être conscient que très peu de postes sont disponibles actuellement en sortie de thèse, que le passage par le post-doc est quasiment obligatoire pour qui veut intégrer la recherche publique, imposant bien souvent une mobilité géographique, avec des garanties de succès incertaines.

En ce qui me concerne, le choix de faire une thèse sur ce sujet faisait partie intégrante de mon projet professionnel. Avant le DEA, j'ai effectué une MST « Mesures et traitements des pollutions et nuisances », option « air, combustion et nuisances », au cours de laquelle j'ai acquis de nombreuses connaissances sur la pollution gazeuse et son traitement. Aussi, je souhaitais approfondir mes connaissances en physico-chimie de l'atmosphère au niveau de la pollution particulaire. La thèse me semblait être une formation adaptée pour les compétences que je cherchais à acquérir et surtout elle me permettait un développement personnel que je n'aurais trouvé dans aucune autre formation, ou premier emploi.

La gestion de projet, la rigueur, l'autonomie, la prise d'initiative, la résistance au stress, la communication, des connaissances techniques pointues, l'esprit d'analyse, l'enseignement... sont autant d'exemples des divers aspects qui m'attiraient dans la réalisation d'une thèse, et auxquels j'ai été confrontée.

Durant ces trois années, j'ai également participé à de nombreuses formations, certaines faisant partie intégrante des mes activités de monitrice, et d'autres, à ma propre initiative, pour me préparer à ma future insertion sur le marché du travail.

Pour ce qui est de l'après thèse, je l'ai préparée dès le choix du sujet de thèse en prenant un sujet appliqué, en cohérence avec mon projet professionnel. Le choix du laboratoire est également entré en compte : la possession du modèle MésosNH-C, développé en

collaboration avec Météo-France, les compétences de Catherine Liousse dans son domaine et les collaborations avec le CCR ont aussi orienté mon choix.

Si c'était à refaire, je referais une thèse, même si pendant ces trois années, j'ai sans cesse pensé à une orientation pratique de mon travail. Il est clair que la solution la plus simple afin de répondre aux attentes du monde industriel, aurait été de choisir un sujet plus appliqué, financé par une bourse CIFRE par exemple.

A court terme, dans le cadre d'un programme collaboratif du Laboratoire d'Aérologie, la compagnie Sassol (première industrie Sud-africaine dans les produits dérivés du charbon) m'a proposé un contrat de six mois au sein de son entreprise à Johannesburg pour faire des mesures expérimentales d'aérosols.

Je pourrai ainsi acquérir une double compétence modélisation-mesure, et une première expérience sur le marché de l'emploi international.

A plus long terme, je souhaiterai travailler dans le secteur privé (industriels, cabinets d'ingénierie environnementale) ou le secteur public (ministère de l'environnement, commission européenne...) dans le but de participer à une politique de développement et de délocalisation des pôles industriels, de réduction des émissions, afin d'étudier leur impact sur la santé publique...



Table des figures

| | | |
|-----|--|-----|
| 1.1 | <i>Représentation schématique du système respiratoire.</i> | 24 |
| 1.2 | <i>Forçage radiatif moyen au sommet de l'atmosphère [IPCC2001].</i> | 26 |
| 1.3 | <i>Nuage brun au dessus de la Chine (UNEP, NASA).</i> | 28 |
| 1.4 | <i>Le domaine ACE-Asia.</i> | 32 |
| 1.5 | <i>Schéma d'une coupe horizontale d'une dépression type des moyennes latitudes (Cooper et al., [2002]).</i> | 35 |
| 2.1 | <i>Comparaison des images Landsat-TM et SPOT-VEGETATION en Inde, mars 2001.</i> | 44 |
| 3.1 | <i>Types de répartitions granulométriques des aérosols.</i> | 72 |
| 3.2 | <i>Domaine de l'inventaire d'émissions de Streets et al., [2003], pour les émissions de fuels fossiles</i> | 90 |
| 3.3 | <i>Emissions de CO par les fuels fossiles, les feux de biomasse et les biofuels en 10^{+9}ppp.m.s⁻¹</i> | 91 |
| 4.1 | <i>Pression au niveau de la mer (en hPa) à 6UTC les 25, 26, 27 et 28 avril 2001.</i> . | 102 |
| 4.2 | <i>Température potentielle équivalente à 700 hPa (en K) à 6UTC le 28 avril 2001.</i> | 103 |
| 4.3 | <i>Précipitations cumulées sur 6h (en mm) le 28 avril 2001 à 6UTC.</i> | 103 |
| 4.4 | <i>Vecteur et module du vent (en m/s) à 300 hPa le 27 avril 2001 à 6UTC.</i> | 103 |
| 4.5 | <i>Profil vertical de CO_{feux} obtenu sur Pékin le 29 avril 2001 à 6UTC</i> | 105 |
| 4.6 | <i>Rétro-trajectoire aboutissant à Pékin le 29 avril à 6UTC. (a) Projection horizontale. (b) Projection dans le plan vertical zonal entre 60E-180E et 0-8000 m d'altitude.</i> | 105 |

| | | |
|------|--|-----|
| 4.7 | <i>Isohypses à 700 hPa le 26 avril 2001 à 12UTC</i> | 107 |
| 4.8 | <i>(a) Déplacement vertical des particules durant les 12h précédent le 26 avril 2001 à 12UTC: $\Delta Z = Z - Z_0$ (en km) à $Z = 5000$ m. (b) coupe verticale de Z_0 le 26 avril à 12UTC (en km) qui représente l'altitude initiale qu'avaient les masses d'air le 26 avril 2001 à 00UTC. (c) coupe verticale des concentrations de CO_{feux} (en ppb), traceurs émis par les feux de biomasse, le 26 avril à 12UTC.</i> | 108 |
| 4.9 | <i>Température potentielle équivalente (en K).</i> | 110 |
| 4.10 | <i>(a) Déplacement vertical des particules au cours des 12 dernières heures, le 28 avril 2001 à 12UTC: $\Delta Z = Z - Z_0$ (en km). (b) coupe verticale de Z_0 (en km) le 28 avril à 12UTC. (c) coupe verticale des concentrations de CO_{feux} (en ppb) le 28 avril à 12UTC.</i> | 111 |
| 4.11 | <i>(a) Déplacement vertical des particules au cours des 12 dernières heures, le 28 avril 2001 à 24UTC: $\Delta Z = Z - Z_0$ (en km). (b) coupe verticale de Z_0 (en km) le 28 avril à 24UTC. (c) coupe verticale de CO_{feux} (en ppb) le 28 avril à 24UTC.</i> | 112 |
| 4.12 | <i>Contribution des différentes sources de CO sur Pékin le 29 avril 2001 à 6UTC. (a) par rapport au CO total simulé par le modèle. (b) par rapport à la somme des traceurs de CO (CO_{feux}, $CO_{\text{fuel fossile}}$ et CO_{biofuels}).</i> | 115 |
| 4.13 | <i>Evolution temporelle des concentrations en CO (a) et en particules carbonées (b) le long des deux trajectoires représentatives de la couche C1 (voir figure 4.6).</i> | 116 |
| 4.14 | <i>Evolution temporelle des concentrations en CO (a) et en particules carbonées (b) le long de la trajectoire C2.</i> | 116 |
| 4.15 | <i>Evolution temporelle des concentrations en CO (a) et en particules carbonées (b) le long de la trajectoire C3.</i> | 117 |
| 4.16 | <i>Evolution temporelle du rapport $OC_{\text{sec}}/OC_{\text{tot}}$ au cours des trois trajectoire C1, C2 et C3.</i> | 119 |
| 4.17 | <i>(a) rétrotrajectoires moyennes des masses d'air arrivant sur Pékin pour les printemps 2001 et 2003. (b) Nombre de trajectoires et concentrations en PM_{10} moyennes pour chaque masse d'air observées sur Pékin [Wang et al., 2004].</i> | 120 |
| 4.18 | <i>(a) Trajectoire du Twin-Otter durant le vol RF17 le 27 avril 2001. (b) Altitude (en hPa) du Twin Otter durant le vol RF17 le 27 avril 2001.</i> | 123 |

| | | |
|------|---|-----|
| 4.19 | (a) Trajectoire du C-130 durant le vol RF15 le 27 avril 2001. (b) Altitude (en hPa) du C-130 durant le vol RF15 le 27 avril 2001. | 123 |
| 4.20 | Comparaison entre les observations (en rose) et les résultats de la simulation (en bleu) obtenus le long de la trajectoire du Twin-Otter le 27 avril 2001. La pression est indiquée (en noir) pour repérer l'altitude de l'avion. | 125 |
| 4.21 | Comparaison entre les observations (en rose) et les résultats de la simulation (en bleu) obtenus le long de la trajectoire du C-130 le 27 avril 2001. La pression est indiquée (en noir) pour repérer l'altitude de l'avion. | 127 |
| 4.22 | Comparaison des concentrations de monoxyde de carbone obtenues le long de la trajectoire du C-130 le 27 avril 2001 (vol RF15). Les observations sont représentées en rose et les résultats de la simulation en bleu. | 128 |
| 4.23 | Comparaison des concentrations d'ozone obtenues le long de la trajectoire du C-130 le 27 avril 2001 (vol RF15). Les observations sont représentées en rose et les résultats de la simulation en bleu. | 129 |
| 4.24 | Comparaison des concentrations de dioxyde de soufre obtenues le long de la trajectoire du C-130 le 27 avril 2001 (vol RF15). Les observations sont représentées en rose et les résultats de la simulation en bleu. | 130 |
| 4.25 | Comparaison des concentrations de BC et OC mesurées et simulées sur les différents paliers effectués par le C-130 le 27 avril 2001 (vol RF15). Les altitudes (en m) des paliers ont été ajouté. | 131 |
| 4.26 | Comparaison des concentrations de BC et OC mesurées et simulées sur les différents paliers effectués par le Twin-Otter le 27 avril 2001 (vol RF17). | 132 |
| 4.27 | Coupe verticale le long du segment [1-2]. | 134 |
| 4.28 | Concentration en CO_{feux} sur le verticale du segment [1-2], le 27 avril 2001 à 1UTC. | 135 |
| 4.29 | (a) Trajectoire du Twin-Otter durant le vol RF16 le 26 avril 2001. (b) Altitude (en hPa) du Twin-Otter durant le vol RF16 le 26 avril 2001. | 137 |
| 4.30 | (a) Trajectoire du Twin-Otter durant le vol RF18 le 28 avril 2001. (b) Altitude (en hPa) du Twin-Otter durant le vol RF18 le 28 avril 2001. | 138 |

| | | |
|------|--|-----|
| 4.31 | <i>Comparaison des concentrations de BC et OC mesurées et simulées sur les différents paliers effectués par le Twin-Otter (a) pour le 26 avril 2001 (vol RF16) et (b) pour le 28 avril (vol RF18).</i> | 139 |
| 4.32 | <i>Evolution des concentrations simulées et mesurées en sulfate et nitrate pour les vols du Twin-Otter du 26, 27 et 28 avril 2001.</i> | 141 |
| 4.33 | <i>Concentrations simulées et mesurées de BC et OC les 26, 27 et 28 avril 2001 à (a) Sado, (b) Rishiri, (c) Hachijo, et (d) Chichi-jima.</i> | 143 |
| 4.34 | <i>Localisation des sites de mesure du Japon pendant ACE-Asia (extrait de Matsu-moto et al., 2003).</i> | 143 |
| 4.35 | <i>Thetae à 950 hPa (en K) le 27 avril 2001 à 00UTC. Les flèches représentent la direction du vent à 950 hPa</i> | 145 |
| 4.36 | <i>Concentration de BC (en $\mu\text{g.m}^{-3}$) les 26, 27 et 28 avril 2001 à 12 UTC et 24 UTC.</i> | 146 |
| 4.37 | <i>Concentration de OC (en $\mu\text{g.m}^{-3}$) les 26, 27 et 28 avril 2001 à 12 UTC et 24 UTC.</i> | 147 |
| 4.38 | <i>Concentrations de BC (en $\mu\text{g.m}^{-3}$) à (a) Sado et (b) Rishiri le 27 avril mesurées et simulées. Pour la simulation, les lignes bleues représentent les concentrations sur les 24 points de grille autour de Sado et Rishiri, et la ligne violette, les concentrations sur le point de grille centré sur Sado et Rishiri</i> | 149 |
| 5.1 | <i>Concentrations de BC (en $\mu\text{g.m}^{-3}$) simulées avec l'inventaire ABBI et ACESS pour les 26, 27 et 28 avril 2001 toutes les 12h.</i> | 156 |
| 5.2 | <i>Concentrations de OC_p (en $\mu\text{g.m}^{-3}$) simulées avec l'inventaire ABBI et ACESS pour les 26, 27 et 28 avril 2001 toutes les 12h.</i> | 157 |
| 5.3 | <i>Concentrations de BC et OC_{tot} (en $\mu\text{g.m}^{-3}$) mesurées et simulées avec l'inventaire ABBI et ACESS pour les 26, 27 et 28 avril 2001 sur les 4 îles du Japon : (a) Rishiri, (b) Sado, (c) Chichi-jima et (d) Hachijo.</i> | 160 |
| 5.4 | <i>Concentrations de BC et OC (en $\mu\text{g.m}^{-3}$) à Gwandu mesurées et simulées avec l'inventaire ABBI et ACESS pour les 26, 27 et 28 avril 2001.</i> | 161 |

| | | |
|------|--|-----|
| 5.5 | <i>Concentrations de BC et OC (en $\mu\text{g.m}^{-3}$) à Gosan mesurées et simulées avec l'inventaire ABBI et ACESS pour les 26, 27 et 28 avril 2001.</i> | 162 |
| 5.6 | <i>Concentrations de $\text{BC}_{2.5}$ et $\text{OC}_{2.5}$ (en $\mu\text{g.m}^{-3}$) à Gosan mesurées et simulées avec l'inventaire ABBI et ACESS pour les 26, 27 et 28 avril 2001.</i> | 163 |
| 5.7 | <i>Différence des concentrations de SOA (en $\mu\text{g.m}^{-3}$) simulées entre les inventaire ABBI et ACESS pour les 26, 27 et 28 avril 2001 toutes les 12h.</i> | 165 |
| 5.8 | <i>Comparaison des concentrations obtenues à Gosan (a), Pékin (b) et au point « ABBI-feux » (c) avec Méso-NH-C et ORISAM.</i> | 169 |
| 5.9 | <i>Contribution des espèces (en %) pour les simulations 3D et 0D pour Gosan [(a) et (b)], Pékin [(c) et (d)] et le point « ABBI-feux » [(e) et (f)].</i> | 170 |
| 5.10 | <i>Comparaison des rapports moyens $\text{BC}/\text{OC}_{\text{tot}}$ et $\text{OC}_{\text{sec}}/\text{OC}_{\text{tot}}$ obtenus avec les 6 tests et la simulation de référence, effectués avec ORISAM le 27/04/01 pour (a) Gosan, (b) Pékin et (c) « ABBI-feux ».</i> | 172 |
| 5.11 | <i>Comparaison des émissions gazeuses (en $\text{molec.cm}^{-2}.\text{s}^{-1}$) pour les COV (espèces RACM) entre les quatre sites présentés : Pékin, Gosan, ABBI-feux et Paris. . .</i> | 174 |
| 5.12 | <i>Comparaisons concentrations d'ozone (en molec.cm^{-3}) pour MésoNH-C et ORISAM-0D pour les Pékin, Gosan et « ABBI-feux » le 27 avril 2001.</i> | 176 |
| 5.13 | <i>Comparaisons concentrations d'HO_2 (en molec.cm^{-3}) pour MésoNH-C et ORISAM-0D pour les Pékin, Gosan et « ABBI-feux » le 27 avril 2001.</i> | 177 |
| B.1 | <i>Principe utilisé pour le calcul des émissions d'aérosols carbonés provenant de la combustion de fuels fossiles [Cooke et al., 1996]</i> | 222 |
| B.2 | <i>Résultats bruts de BC et CO_2, lors d'une des manipulations où la chaudière tournait à plein régime, sans filtre dépoussiéreur.</i> | 226 |
| B.3 | <i>new appendix 3.E: country codes used for various regions as proxy countries in calculating the emissions of black carbon from fossil fuel use</i> | 232 |
| C.1 | <i>General schematic representation of ORISAM</i> | 248 |
| C.2 | <i>Daily evolutions of temperature, relative humidity and $\text{OC}_{\text{sec}}/\text{OC}_{\text{tot}}$ ratio (in %) for (a) August 07th 1998, (b) July 28th 1998 and (c) January 25th 2000.</i> | 249 |

| | | |
|-----|--|-----|
| C.3 | <i>Evolution of the different aerosol components respectively for (a) August 07th 1998, (b) July 28th 1998 and (c) January 25th 2000 (P1: black carbon, P2: primary organic carbon, M: cater soluble fraction including water, Sec-bio-aero: biogenic secondary organic aerosol, Sec-ant-aero: anthropogenic secondary organic aerosol.</i> | 250 |
| C.4 | <i>Temperature threshold for SOA formation as seen by the evolution of the OC_{sec}/OC_{tot} ratio, for different meteorological conditions: two relative humidity (50 and 80%) and two seasonal (winter and summer) insolation conditions.</i> | 251 |
| C.5 | <i>Relative increase of OC_{sec} (in %), (a) for different particle emissions and (b) for different gas emissions.</i> | 252 |
| E.1 | <i>L'aérosol carboné.</i> | 258 |

Liste des tableaux

| | | |
|-----|--|-----|
| 1.1 | <i>Emissions de CO, NO_x, SO₂, NMVOC (organiques carbonés volatils non-méthaniques)(en Tg) et BC (en TgC) en Asie pour l'année 1995 et contribution de l'Asie pour chaque espèces par rapport aux valeurs mondiales (en %) (d'après l'inventaire EDGAR 3.2 pour l'année 1995 pour les gaz [Olivier et al., 1996; Olivier et al., 1999; Olivier and Berdowski, 2001] et Lioussse et al., (2004) pour BC.</i> | 10 |
| 1.2 | <i>Emissions de CO, NO_x, SO₂ et NMVOC en Asie pour les inventaires ACCESS et EDDAR 3.2 pour les émissions fuels fossiles et biofuels (FF + BF) et pour les feux de biomasse (BB).</i> | 11 |
| 3.1 | <i>Composition des classes de RACM précurseurs d'aérosols secondaires.</i> | 81 |
| 3.2 | <i>Rendement des précurseurs RACM.</i> | 82 |
| 3.3 | <i>Rendement des précurseurs ReLACS.</i> | 86 |
| 3.4 | <i>Initialisation des 2 modes.</i> | 94 |
| 5.1 | <i>Facteurs d'émission en BC et OC_p des inventaires ABBI et ACCESS à partir desquels sont calculés les facteurs d'émission pour les classes de la carte de végétation UMD [Hansen et al., 2000].</i> | 158 |
| 5.2 | <i>Comparaison des rendements (en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{ppm}^{-1}$) des classes RACM pour les inventaires « d'Andreae » et « de Middleton »</i> | 181 |
| B.1 | <i>Facteurs d'émission calculés pendant la manipulation où la chaudière tournait à plein régime, sans filtre dépoussiéreur.</i> | 227 |
| B.2 | <i>Groupes et sous-groupes pour les fuels fossiles.</i> | 228 |

C.1 *Simulated BC/OC_{tot} ratio (in %) for the selected winter and summer days. Summer days with existing experimental data are shaded.* 247

C.2 *Simulated BC/OC_{tot} ratio (in %) for two different initial background concentration conditions at 00h00: - « init-mean » with the average daily concentrations obtained by a 24h spin-up the day before. - and « init-norm » with concentrations obtained at 00h00 after a 24h spin-up the day before.* 247

D.1 *Concentrations gazeuses de fond des simulations références effectuées avec ORISAM-0D pour Pékin, Gosan et « ABBI-feux »* 254