



Etude des interactions entre aérosols et climat : assimilation des observations spatiales de POLDER dans LMDz-INCA

Sylvia Generoso

► To cite this version:

Sylvia Generoso. Etude des interactions entre aérosols et climat : assimilation des observations spatiales de POLDER dans LMDz-INCA. Océan, Atmosphère. Université Paris-Diderot - Paris VII, 2004. Français. NNT : . tel-00008456

HAL Id: tel-00008456

<https://theses.hal.science/tel-00008456>

Submitted on 11 Feb 2005

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.

Thèse de doctorat de l'université Paris VII

Spécialité : Méthodes Physiques en Télédétection

**Étude des interactions entre aérosols et climat :
assimilation des observations spatiales de POLDER
dans LMDz-INCA**

Sylvia Generoso

Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement
(LSCE/IPSL, CEA-CNRS)

Thèse soutenue le 13 décembre 2004 pour l'obtention du titre de Docteur de
l'université Paris VII, devant le jury composé de :

Olivier Boucher	Rapporteur
Frank Dentener	Rapporteur
Alain Chédin	Examineur
Olivier Talagrand	Examineur
Stéphane Jacquemoud	Président du jury
François-Marie Bréon	Directeur de thèse
Yves Balkanski	co-directeur de thèse (invité)

Remerciements

Ma thèse se termine, c'est une page qui se tourne. C'est d'autant plus difficile que l'histoire a été agréable. J'aimerais ici trouver le ton juste pour remercier tous ceux qui m'ont formé, soutenu, qui ont croisé mon chemin, qui ont fait de cette thèse une véritable aventure humaine.

Je voudrais remercier Laurent Turpin et Pascale Delecluse de m'avoir accueilli dans leur laboratoire. Ces presque quatre années passées au LSCE m'ont apporté beaucoup, tant sur le plan professionnel que personnel.

Je voudrais remercier mes deux rapporteurs, Olivier Boucher et Frank Dentener, pour le temps qu'ils ont consacré à ce manuscrit. Je suis impressionnée par la minutie avec laquelle Frank (néerlandais habitant en Italie) l'a lu en français. Olivier, je te remercie aussi pour ta gentillesse pendant trois ans, ton efficacité et tes nombreux conseils. Je souhaiterais également remercier mes examinateurs, Olivier Talagrand et Alain Chédin, pour leurs conseils. Alain merci aussi d'avoir pris le rôle de « parrain de thèse » avec autant d'attention. Merci enfin à Stéphane Jacquemoud d'avoir présider mon jury.

Je suis très reconnaissante à mon directeur de thèse François-Marie Bréon, et mon co-directeur de thèse, Yves Balkanski, pour l'opportunité qu'ils m'ont offert de travailler sur un sujet aussi passionnant. Je me suis toujours senti considérée comme une priorité et constamment encouragée. FM, Yves, vous vous êtes toujours adressés à moi sur un ton chaleureux et affectueux. C'est sur ce même ton que j'aimerais vous adresser mes remerciements les plus sincères.

François-Marie, je pense que, plus qu'un directeur de thèse, tu as été un véritable « papa scientifique » pour moi. J'ai appris énormément. Mais aussi, tu m'as fait confiance, tu as respecté mes choix, et tu m'as laissé mon autonomie. Tes conseils, ton honnêteté scientifique m'ont formé. Tes encouragements, ta patience (pas une seule fois tu en as manqué) ont été un soutien constant. Tu as été moteur tout au long de ce projet. J'ai peur de ne pas l'avoir assez dit : Merci. J'espère qu'un peu de ton efficacité aura déteint sur moi.

Yves, j'ai toujours pu compter sur ton oreille attentive et tu as toujours été d'excellents conseils pour moi. Cela m'a été d'une aide précieuse. Merci aussi de m'avoir toujours harcelé de questions, pousser à bout pour que je n'en laisse aucune sans réponse ! Tu as grandement contribué à forger mon analyse scientifique et mon sens critique. Mille mercis.

Je ne vois pas comment, dans ces conditions, j'aurai pu basculer dans le côté « obscur ». Mais sais-t-on jamais. J'aurais pu être tentée. Frédéric Chevallier, mon « tonton scientifique », maître (« jedi ») en assimilation de données, a réduit à néant cette éventualité. Frédéric, j'ai beaucoup appris sur ces techniques grâce toi. Mais aussi, tu as eu le souci constant de me faire réfléchir à leur utilisation. Merci pour ta patience, ta gentillesse et le temps que tu m'as consacré. Ce travail te doit beaucoup.

Bien d'autres m'ont consacré de leur temps pour discuter. À chaque fois, j'ai beaucoup appris. Merci en particulier à Christiane Textor, Michael Schulz, Didier

Hauglustaine, Sarah Guibert, Cyril Moulin, Pierre Couvert, Patrick Chazette, François Dulac. Merci également à Fabienne Maignan, Jean-Yves Peterschmitt, François Marabelle et Jean Poitou de m'avoir assisté à chaque fois que j'en ai eu besoin.

Je voudrais remercier particulièrement Manu, mon « grand frère scientifique », Marie et Liva. Qu'aurais-je fait sans votre soutien constant ? Vous m'avez toujours poussée, motivée. Vous m'avez apporté l'équilibre dont j'avais besoin au labo. Manu, merci pour nos discussions où nous refaisons le monde et pour les pauses où l'on a beaucoup ri. Marie, Liva, vous m'avez toujours aidé à tout relativiser. Vos encouragements ont été (et sont) des références constantes. Merci pour votre patience et vos conseils pleins de sagesse.

J'aimerais pouvoir dire un grand merci à tous ceux qui ont rendu l'ambiance si agréable au LSCE, sur qui j'ai pu compter, qui m'ont écouté et encouragé quand j'en avais besoin. Mille et un mercis à Séverine, Nicolas H, Zegbeu, Sarah, Sophie, Cyril, FM, Frédéric, Marie-Pierre, Claire, Cédric, Léo, Anne, Juliette, Nathalie, Nicolas V., Diégo, Sylvie C., Amaëlle, Gabrielle ... j'en oublie probablement. Pardonnez-moi.

Tout au long de ma thèse, j'ai pu m'appuyer sur le soutien sans faille et les encouragements sans limites de ma famille et de mes amis. Merci d'abord à Philippe qui a toujours été présent et m'a apporté son aide constante.

Une mention très spéciale pour mes deux copines, Carine et Sandrine, sans qui je n'aurais pas eu autant d'énergie pendant plus de trois ans. Merci pour votre gentillesse, votre présence, votre sincérité et votre écoute. Je ne vous referai plus subir une thèse. C'est promis.

Un grand merci à mon frère, Stéphane, qui m'a toujours encouragé tout en me ramenant sur Terre quand il le fallait. Stéphane, merci pour tes conseils de grand frère avisés. Merci aussi à Véro et Matteo, parce que tous les trois, vous m'avez permis de m'évader.

Merci infini à ma maman chérie. Je ne sais même pas par où commencer tellement elle (a) fait pour moi. Il serait d'ailleurs bien long de tout énumérer. Ce qui m'a le plus marqué pendant tout ce temps est l'incroyable énergie qu'elle investit dans l'optimisme et sa manière de toujours positiver tout ce qui m'arrive. J'admire cette force. Merci maman.

Je ne peux pas terminer sans penser à mon père. Mon plus grand regret est qu'il ne soit plus là aujourd'hui pour être fier de moi. Pourtant, si j'en suis là, c'est aussi à lui que je le dois. J'écirais donc les derniers mots de ce manuscrit pour lui, pour lui dire merci. J'aimerais pouvoir lui dire beaucoup plus.

Table des Matières

1. INTRODUCTION	11
1.1 L'enjeu de l'étude des aérosols	11
1.2 Les difficultés spécifiques.....	12
1.3 Présentation du projet de thèse	14
2. LES AÉROSOLS.....	19
2.1 Introduction.....	20
2.2 Les différents types d'aérosols.....	20
2.2.1 Les poussières minérales	20
2.2.2 Les sels marins	21
2.2.3 Les aérosols carbonés	21
2.2.4 Les sulfates	21
2.2.5 Les nitrates.....	22
2.3 L'impact des aérosols sur le climat.....	22
2.3.1 Description des processus d'interactions.....	22
2.3.1.1 L'effet direct	22
2.3.1.2 L'effet indirect	23
2.3.2 Estimation quantitative	23
2.3.3 Le rôle des aérosols d'origine anthropique	24
2.4 L'observation des aérosols.....	25
2.4.1 L'observation par satellite	25
2.4.1.3 Le principe, l'historique et les projets futurs	25
2.4.1.4 L'exemple de POLDER.....	28
2.4.1.5 Quels sont les prochains défis de l'observation spatiale ?.....	29
2.4.2 Les mesures depuis le sol.....	29
2.5 La modélisation des aérosols	30
2.5.1 Les modèles d'aérosols	30
2.5.2 L'exemple du LMDz-INCA.....	31
2.5.3 Les sources d'incertitude et les prochains défis	33
2.6 Conclusion.....	33
3. LES ÉMISSIONS DANS LMDZ-INCA.....	37
3.1 Introduction.....	38
3.2 Etude de la représentativité des émissions du modèle	39
3.2.1 Description des émissions	39
3.2.2 Analyse de la représentativité des émissions	40
3.2.2.6 Comparaisons aux observations.....	40
3.2.2.7 Conclusions	43
3.3 Émissions par les feux de biomasse : correction des inventaires par les observations spatiales	44
3.3.1 Présentation de la méthode	44
3.3.2 Validation de la méthode	46
3.3.2.8 Validation de la distribution temporelle	46
3.3.2.9 Validation de la distribution spatiale	48
3.3.2.10 Les sources d'incertitude.....	49
3.4 Présentation des résultats.....	50
3.4.1 Le cycle saisonnier.....	50
3.4.2 La variabilité interannuelle.....	52

3.4.3 À l'échelle planétaire	56
3.5 Comparaison aux autres méthodes	56
3.5.1 Présentation des autres méthodes.....	56
3.5.2 Comparaison des quantités émises.....	57
3.6 Vers la résolution journalière des émissions par les feux ?	60
3.7 Conclusion	62
<u>4. LE TRANSPORT DE PANACHES D'AÉROSOLS À</u>	
<u>GRANDE ÉCHELLE.....</u>	<u>67</u>
4.1 Introduction.....	68
4.2 Vers l'océan Atlantique.....	70
4.2.1 Les exports du continent africain	70
4.2.1.11 Dans l'hémisphère Nord.....	70
4.2.1.12 Dans l'hémisphère Sud	75
4.2.2 Les exports du continent américain	80
4.3 Vers l'océan Pacifique.....	82
4.3.1 Les exports du continent asiatique.....	82
4.3.2 Les exports du continent américain	87
4.4 Vers l'océan Indien	89
4.5 Conclusion	89
<u>5. LE CALCUL DES ÉPAISSEURS OPTIQUES DANS LE</u>	
<u>LMDZ-INCA.....</u>	<u>93</u>
5.1 Introduction.....	94
5.2 Méthode.....	94
5.2.1 Principe général.....	94
5.2.2 Dans LMDz-INCA	95
5.3 Analyse des résultats	97
5.3.1 Modifications à l'échelle planétaire et annuelle.....	97
5.3.2 Analyse par régions.....	98
5.3.3 Moyennes mensuelles aux stations de mesures.....	99
5.4 Conclusion	104
<u>6. L'ASSIMILATION DES OBSERVATIONS POLDER</u>	
<u>DANS LMDZ-INCA</u>	<u>107</u>
6.1 Introduction.....	108
6.2 Méthode.....	110
6.2.1 Le formalisme du filtre de Kalman.....	110
6.2.2 Simplifications liées à notre cas d'étude.....	110
6.2.3 Application à POLDER et au LMDz-INCA	111
6.3 Estimations des statistiques d'erreur	113
6.3.1 Méthode	113
6.3.2 Matrices de covariance d'erreur.....	115
6.3.3 Biais	117
6.4 Validation a posteriori du code	118
6.4.1 Erreur théorique de l'analyse	118
6.4.2 Stabilité.....	119
6.4.3 Cohérence	120

Table des Matières

6.4.4 Optimalité.....	121
6.5 Résultats	121
6.5.1 Analyse à l'échelle planétaire	121
6.5.2 Analyse par régions	128
6.5.3 Moyenne mensuelle aux stations AERONET	132
6.6 Exemple d'application	137
6.7 Conclusion.....	140
7. CONCLUSION	145
RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....	151
ANNEXES A	163
ANNEXES B	169

Chapitre 1

Introduction

Au cours de ma thèse, je me suis intéressée aux aérosols et plus particulièrement à leurs interactions avec le climat. Dans ce chapitre d'introduction, j'expose brièvement les enjeux de l'étude de ces particules et je montre pourquoi le problème à résoudre pour améliorer nos connaissances est complexe. J'introduirai in fine le projet de thèse que j'ai réalisé et présenterai le plan de ce manuscrit.

1.1 L'enjeu de l'étude des aérosols

Pour la première fois dans l'histoire de la Terre, les conséquences des activités humaines sont susceptibles de modifier le climat terrestre à l'échelle globale [IPCC, 2001]. Connaître les interactions entre les différentes composantes du système climatique est donc devenu un enjeu essentiel pour pouvoir prévoir l'évolution du climat. Les considérations de la communauté scientifique sur le changement climatique global se sont d'abord focalisées sur les gaz à effet de serre et le réchauffement global qu'ils induisent. Cependant, les aérosols sont d'autres constituants atmosphériques importants qui influencent le climat et qui ont été affectés par les activités humaines. La Figure 1.1 issue du rapport IPCC (Intergovernmental Panel on Climate Change) paru en 2001, expose l'état de nos connaissances en termes d'estimations du forçage radiatif des différents agents externes qui influencent le climat. Le concept de forçage radiatif, que nous évoquerons plus en détail au chapitre 2, permet de quantifier la variation du flux radiatif au sommet de l'atmosphère suite à l'application d'une perturbation. Les facteurs externes pris en compte dans cette étude, outre les aérosols, sont les gaz à effet de serre, l'ozone troposphérique, les nuages induits par le transport aérien, la modification de la constante solaire et le changement de l'albédo de surface dû à l'utilisation des sols. En termes d'estimations quantitatives de l'impact sur le climat, les aérosols sont les plus méconnus. Dans certains cas, nos connaissances ne nous permettent ni de savoir si la perturbation appliquée tend à réchauffer ou à refroidir le

climat ni de connaître son ampleur. Or la présence d'aérosols modifie en particulier la quantité de lumière réfléchie vers l'espace (effet direct) et la microphysique des nuages (effet indirect) qui sont un des éléments clés dans le cycle de l'eau atmosphérique. Les aérosols font partie intégrante du système climatique. La compréhension quantitative de leur impact est par conséquent essentielle si l'on veut comprendre le système climatique dans son ensemble.

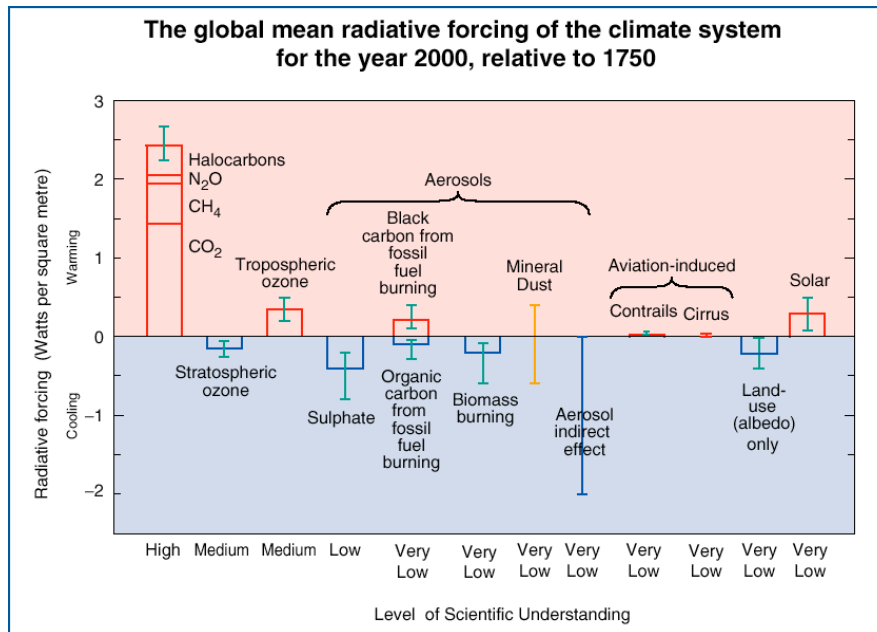


Figure 1.1: Forçages radiatifs depuis le début de l'ère industrielle (1750) jusqu'à la période actuelle (fin des années 90). La hauteur des barres rectangulaires correspond aux valeurs retenues comme meilleures estimations. Les barres verticales indiquent l'incertitude sur l'estimation. Dans certains cas, aucune meilleure estimation n'est possible (pas de barres rectangulaires). Il est également indiqué le niveau de compréhension scientifique pour chaque agent climatique. D'après [IPCC, 2001].

1.2 Les difficultés spécifiques

Pour comprendre la complexité de l'étude des aérosols, intéressons-nous à la manière dont ces particules sont formées et disparaissent. Les aérosols sont des particules solides ou liquides en suspension dans l'atmosphère [IPCC, 2001] dont la taille varie de quelques nanomètres à plusieurs centaines de micromètres (μm), balayant ainsi une gamme de plus de cinq ordres de grandeur. Pour bien comprendre l'étendue d'une telle distribution en taille, il suffit de penser que la masse d'une particule de 10 μm de diamètre est équivalente à la masse d'un milliard de particules de 10 nm de diamètre [Seinfeld and Pandis, 1997]. Les particules dont le diamètre est inférieur à 2.5 μm sont dites appartenir au « mode fin » et celles dont le diamètre est supérieur à 2.5 μm au « mode grossier ». Les phénomènes qui influencent la taille des particules sont schématisés sur la Figure 1.2. Des processus différents engendrent des particules de taille différente. Dans le mode fin, on distingue le mode de nucléation et le mode d'accumulation. Les aérosols dans le mode de nucléation ont des diamètres compris entre 0.005 et 0.1 μm . Les particules y sont prépondérantes en nombre mais en raison de leur petite taille, elles ne représentent en général pas plus de quelques pour cent de la masse totale de particules. Elles sont formées par la condensation de vapeurs. Elles disparaissent principalement par agrégation avec des particules de taille supérieure. Dans le mode d'accumulation, le diamètre des particules varie entre

0.1 et 2.5 μm . La condensation de vapeur sur des particules existantes permet aux aérosols de grossir jusqu'à de telles tailles. Les mécanismes de dépôt sont moins efficaces dans ce mode que dans les modes de nucléation et grossier, ce qui y génère une accumulation de particules (à l'origine du nom) et leur confère un temps de résidence dans l'atmosphère plus élevé que dans les modes de nucléation et grossier. Enfin, le mode grossier englobe les particules dont le diamètre est supérieur à 2.5 μm . Elles sont en général formées par des actions mécaniques comme le soulèvement de poussières désertiques par l'action du vent. Ces particules ont des vitesses de sédimentation élevées et retombent en quelques jours. Dans le cas des poussières désertiques, par exemple, seules les particules dont le diamètre est inférieur à 10 μm sont transportées sur de grandes distances (5000 km), les plus grosses (jusqu'à 100 μm) se déposent à proximité immédiate des sources.

En fonction de leur taille, les aérosols ont des origines diverses, sont soumis à des processus de transport, de dépôt différents, possèdent des propriétés optiques et des durées de vie extrêmement variables. Leur capacité à absorber de l'eau varie fortement selon le type d'aérosols en fonction de l'humidité relative. Leur distribution globale est fortement inhomogène. Sous le terme générique d'« aérosols », c'est en fait une multitude de particules aux caractéristiques différentes que l'on regroupe. C'est de cette variabilité extrême que naissent les difficultés de l'étude des aérosols mais aussi tout le défi scientifique.

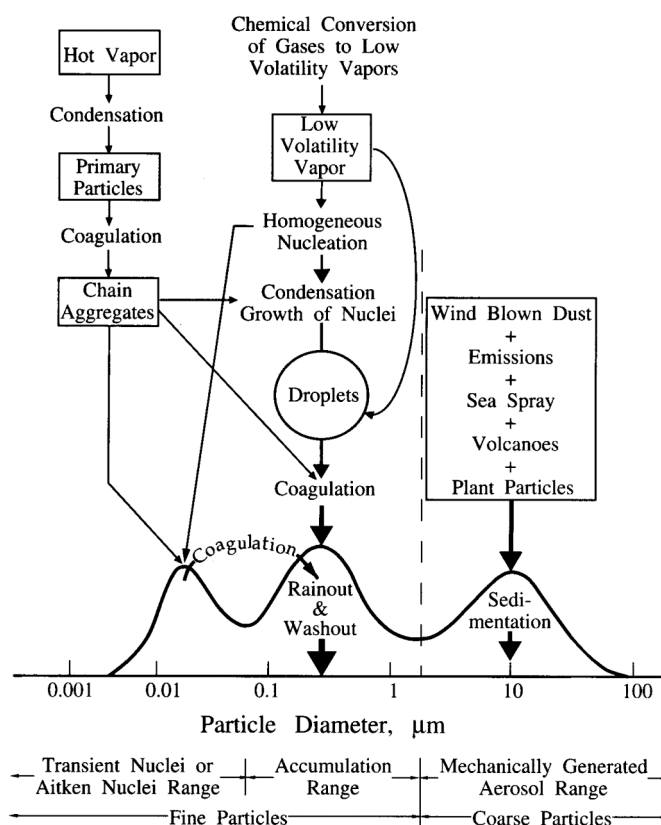


Figure 1.2: Schéma représentant les principaux modes, les principales sources et mécanismes de formation et de déposition des aérosols. [Whitby and Cantrell, 1976]

1.3 Présentation du projet de thèse

Pour réduire les incertitudes actuelles sur l'impact radiatif des aérosols, plusieurs approches sont possibles. D'une part, l'approche expérimentale, qui consiste en la mesure in-situ ou l'observation depuis l'espace, permet d'obtenir des informations sur la réalité de la présence de ces particules dans l'atmosphère. Elles ne permettent cependant pas encore d'avoir accès à l'ensemble des paramètres qui caractérisent l'aérosol. Par exemple, il reste difficile de discriminer l'origine et le type d'aérosols à partir des mesures spatiales. L'autre approche principale réside dans la description de ces particules via des modèles numériques. Cet outil donne accès à une description complète dans l'espace et dans le temps des aérosols et permet potentiellement de tenir compte de la diversité des tailles et des types. Cependant, la complexité du comportement de ces particules, de leur interaction entre elles et avec le cycle de l'eau nécessite des simplifications importantes dans les modèles. Les études comparatives menées jusqu'à présent montrent qu'il existe de larges différences dans les distributions spatiales et temporelles simulées par les modèles de chimie-transport.

Ces deux approches tentent par des voies complémentaires de répondre aux mêmes questions. Mettre en commun les efforts déjà réalisés dans ces deux disciplines, me semble primordial. C'est l'ensemble de mon travail de thèse qui repose sur l'interface entre observation et modélisation. L'approche que j'ai utilisée pour réduire les incertitudes actuelles sur les distributions de ces particules est celle de l'assimilation d'observations spatiales. Cet outil permet d'obtenir des distributions d'aérosols qui découlent à la fois des champs simulés et observés, la combinaison dépendant du niveau de confiance que l'on accorde au modèle et à l'observation. Cette méthode vise à trouver la solution statistique optimale entre un modèle donné et un jeu d'observations donné. Tout au long de ce projet, ma vision n'a été ni de vouloir améliorer un modèle avec des observations ni de compléter les champs observés par le modèle mais de mettre en commun toutes les informations complémentaires dont nous disposons actuellement.

Les techniques d'assimilation sont désormais très largement répandues dans les prévisions météorologiques (par exemple *Courtier and Talagrand*, [1987]) et ont été utilisées dans des études climatiques (océanographie, chimie de l'ozone). Dans le cadre de l'étude des aérosols, elles sont encore très peu répandues. Seuls *Collins et al.*, [2001]; *Rasch et al.*, [2001] ont mis en place de tels outils. Bien que l'assimilation repose sur un concept simple, sa mise en place nécessite une connaissance rigoureuse des erreurs du modèle et des observations car elles vont influencer directement le résultat final. Dans le cas des observations spatiales, des comparaisons avec les mesures au sol permettent d'obtenir une estimation relativement fiable des erreurs sur les quantités observées. Dans le cas des modèles, ces comparaisons permettent d'estimer l'erreur totale. Cependant, le résultat final d'un modèle dépend de plusieurs processus dont il est nécessaire d'évaluer la représentativité dans le modèle. Est-ce que l'erreur observée in fine dépend du modèle de circulation générale ? du modèle d'aérosols lui-même ? des deux ? Dans le cas de la modélisation des aérosols, trois étapes me semblent dominantes. La première correspond aux émissions d'aérosols qui régissent les concentrations dans les régions proches des sources. La seconde se réfère aux processus qui vont permettre aux aérosols d'être transportés dans les régions éloignées des sources continentales (en particulier, les processus de transport et de dépôt spécifiques à chaque type d'aérosol, leur caractère hydrophobe). Enfin, le calcul des propriétés optiques à partir des masses simulées nécessite des

hypothèses qui peuvent engendrer des erreurs significatives. C'est le souci de comprendre la représentativité de ces processus dans le modèle qui ont guidé mon travail de thèse et la structure de ce manuscrit.

Dans le chapitre 2, je présente les différents types d'aérosols et leurs processus d'interaction avec le climat. Nous comprendrons notamment pourquoi les aérosols d'origine anthropique, pourtant minoritaires en masse émise, perturbent particulièrement l'équilibre radiatif de la planète. Je m'intéresse ensuite au principe général des observations et des modèles dont la compréhension est la base de ce travail. Je présente en particulier les observations POLDER et le modèle LMDz-INCA avec lesquels j'ai bâti l'outil d'assimilation.

Dans le chapitre 3, j'évalue la représentation des émissions dans le LMDz-INCA. Les comparaisons entre le modèle et les observations ont mis en avant un désaccord sur le cycle saisonnier des émissions par les feux de biomasse. J'ai donc été amenée à corriger la représentation des variations saisonnières, interannuelles et spatiales de ces sources dans le modèle. J'ai choisi une approche basée sur les observations satellitaires des feux pour améliorer leur représentation dans le modèle. Je présente la méthode et ses validations.

Dans le chapitre 4, je me suis demandée comment le modèle représente les concentrations d'aérosols dans les régions éloignées des sources. Ce chapitre n'a pas vocation à présenter l'évaluation quantitative des processus de transport et de dépôt des aérosols dans le modèle. Le but ici est de m'assurer que le modèle que je souhaite utiliser pour bâtir mon assimilation est cohérent avec ce que l'on sait des distributions d'aérosols. Je base ce travail sur l'étude de panaches d'aérosols liés à des épisodes spécifiques de pollution, de feux, de tempêtes de poussières.

Dans le chapitre 5, j'améliore la prise en compte de l'humidification des particules sur le calcul des propriétés optiques des aérosols. Nous comprendrons comment les épaisseurs optiques sont calculées dans les modèles, en particulier dans le LMDz-INCA. Cette grandeur est la plus communément utilisée pour comparer les modèles aux observations spatiales. Pourtant, son calcul nécessite des hypothèses qui engendrent des erreurs significatives. Nous présenterons une estimation régionale des performances (en termes de corrélation) de la version choisie pour l'assimilation.

Dans le chapitre 6, je me consacre à l'assimilation des données de POLDER dans LMDz-INCA. Cette méthode repose sur la caractérisation des erreurs du modèle et des observations à intégrer, qui vont directement influencer le résultat final. J'ai prêté une attention particulière à évaluer ces erreurs sur une base objective, indépendante et à appliquer les mêmes méthodes pour caractériser les erreurs du modèle et celles des observations. Les résultats permettent d'obtenir des distributions spatio-temporelles complètes des différents types d'aérosols, qui découlent de l'information complémentaire contenue dans le modèle et dans les observations. Un exemple d'application à l'étude de l'effet indirect est présenté.

Dans le chapitre 7, je présenterai mes conclusions et discuterai des perspectives offertes par ce travail.

Chapitre 2

Les aérosols

2.1	Introduction.....	20
2.2	Les différents types d'aérosols.....	20
2.2.1	Les poussières minérales.....	20
2.2.2	Les sels marins.....	21
2.2.3	Les aérosols carbonés.....	21
2.2.4	Les sulfates.....	21
2.2.5	Les nitrates	22
2.3	L'impact des aérosols sur le climat.....	22
2.3.1	Description des processus d'interactions	22
2.3.1.1	L'effet direct	22
2.3.1.2	L'effet indirect.....	23
2.3.2	Estimation quantitative.....	23
2.3.3	Le rôle des aérosols d'origine anthropique.....	24
2.4	L'observation des aérosols.....	25
2.4.1	L'observation par satellite	25
2.4.1.1	Le principe, l'histoire et les projets futurs	25
2.4.1.2	L'exemple de POLDER.....	28
2.4.1.3	Quels sont les prochains défis de l'observation spatiale ?.....	29
2.4.2	Les mesures depuis le sol	29
2.5	La modélisation des aérosols	30
2.5.1	Les modèles d'aérosols	30
2.5.2	L'exemple du LMDz-INCA	31
2.5.3	Les sources d'incertitude et les prochains défis.....	33
2.6	Conclusion.....	33

2.1 Introduction

Dans ce chapitre, les principaux types d'aérosols et leurs processus d'interactions avec le climat sont présentés. Les aérosols sont des particules solides ou liquides en suspension dans l'atmosphère qui proviennent d'une large variété de sources naturelles et anthropiques. Les aérosols primaires sont émis directement dans l'atmosphère alors que les aérosols secondaires sont formés par réactions chimiques à partir de précurseurs gazeux. Ces particules résident peu dans l'atmosphère (typiquement quelques jours), elles sont déposées sous l'effet de leur poids (dépôt sec) ou lors de précipitations (dépôt humide).

Je présente tout d'abord les cinq principaux types d'aérosols. Je porte une attention particulière à la compréhension des distinctions (en masse émise, en impact sur le climat) entre aérosols d'origine naturelle et anthropique. J'ai choisi de ne pas dissocier la présentation de ces particules de celles des outils à notre disposition pour les étudier. C'est pourquoi ce chapitre comporte également une description du principe général de l'observation spatiale, des mesures depuis le sol et de la modélisation numérique. Les exemples de l'instrument spatial POLDER et du modèle LMDz-INCA sont traités car ce sont les deux composantes principales de l'outil d'assimilation que j'ai développé.

2.2 Les différents types d'aérosols

2.2.1 Les poussières minérales

Les poussières minérales sont des particules mises en suspension par l'action du vent sur les surfaces continentales désertiques ou semi-arides. La vitesse seuil d'érosion qui régule les émissions dépend de la rugosité de la surface, de la taille des grains et de l'humidité des sols [Marticorena *et al.*, 1997]. Elles représentent l'une des contributions majeures au contenu en aérosol de l'atmosphère, en particulier dans les régions tropicales et subtropicales. Les estimations des émissions globales varient entre 10^{12} et 3×10^{12} kg/an [Duce, 1995; IPCC, 2001] avec une très forte variabilité spatiale et temporelle. Les principales régions d'émission se situent dans les déserts de l'hémisphère Nord. Bien qu'essentiellement d'origine naturelle, une partie des émissions peut être imputable aux activités humaines car le développement de l'agriculture intensive tend à augmenter la surface des zones érodables [Tegen *et al.*, 1996]. Une étude a ainsi estimé que 30 à 50% du contenu actuel de l'atmosphère en poussière minérale provient de l'érosion de surfaces modifiées par l'activité humaine [Tegen and Fung, 1995]. La fraction des émissions d'origine anthropique reste cependant soumise à de fortes incertitudes et controverses. Ces particules ont un diamètre qui peut varier de moins d'1 μm jusqu'à 20 μm , mais plus de 80% d'entre elles sont situées dans le mode grossier. La durée de vie des poussières désertiques est très variable car les plus grosses sont déposées rapidement sous l'effet de leur poids alors que la fraction submicronique peut résider plusieurs semaines dans l'atmosphère.

2.2.2 Les sels marins

Ces particules sont libérées dans l'atmosphère par l'éclatement de bulles d'air qui ont été mises en suspension par l'action du vent sur les surfaces océaniques [Blanchard, 1983]. Leur présence dans l'atmosphère est donc essentiellement conditionnée par les vents de surface. Les sels marins constituent une fraction entièrement naturelle des aérosols. Avec les poussières minérales, ils représentent la majeure partie de la masse d'aérosols émise globalement. Les estimations d'émission varient entre 10^{12} et 6×10^{12} kg/an [Erickson and Duce, 1988; Tegen et al., 1997]. Le diamètre de ces particules peut varier entre 0.05 μm et plusieurs centaines de μm , la majorité des particules ayant un diamètre supérieur à 1 μm . Leur durée de vie dans l'atmosphère est par conséquent très variable.

2.2.3 Les aérosols carbonés

Les aérosols carbonés proviennent principalement de la combustion de la biomasse et des combustibles fossiles. Les aérosols émis lors de combustions sont essentiellement de taille submicronique et se composent de suies (*black carbon*, BC) et de particules organiques (*particulate organic matter*, POM). Les émissions par les feux de biomasse sont estimées à 45×10^9 kg de POM et 6×10^9 kg de BC par an [Lioussé et al., 1996], ceux par les combustibles fossiles entre 10^{10} et 3×10^{10} kg de POM [Cooke et al., 1999] et entre 6×10^9 et 8×10^9 kg de BC par an. Ces émissions sont soumises à une forte variabilité inter-annuelle. Les principales régions d'émission sont situées dans les régions tropicales et subtropicales comme en Afrique et en Amérique du Sud où les origines sont principalement anthropiques (feux liés aux pratiques agricoles, à la déforestation). 9% des émissions globales de BC et 20% de celles de POM sont attribuées aux feux dans les régions boréales et tempérées [Lavoué, 2000] où les origines sont essentiellement naturelles. Les POM peuvent également être formés par l'oxydation de composants organiques volatiles. Il s'agit alors d'une source secondaire. Cette source est essentiellement d'origine naturelle bien que les activités humaines sont responsables d'une augmentation des facteurs (ozone, NO_3) favorisant l'oxydation des composés organiques volatiles (COV). Les estimations varient entre 8×10^9 et 4×10^{10} kg par an [Griffin et al., 1999; IPCC, 2001]. Les COV anthropiques, dû aux combustibles fossiles et aux feux de biomasse, peuvent également être oxydés en POM. La source est estimée entre 3×10^8 et 1.8×10^9 [IPCC, 2001].

2.2.4 Les sulfates

Les sulfates sont des aérosols qui sont produits dans l'atmosphère par réactions chimiques à partir de précurseurs gazeux, les deux principaux étant le dioxyde de soufre (SO_2) et le sulfure de diméthyle (DMS). Le SO_2 provient essentiellement de la combustion de combustibles fossiles liés aux activités humaines et des volcans. Le DMS est émis naturellement par des sources biogéniques, en particulier par le plancton. Les estimations des quantités de sulfates présentes dans l'atmosphère sont fortement dépendantes des modèles car elles découlent de nos connaissances sur les sources des précurseurs, sur la fraction des précurseurs déposés avant conversion en aérosol et sur les taux de transformation des réactions chimiques. Les sulfates créés à partir de précurseurs d'origine anthropique sont estimés à 120×10^9 kg par an à plus ou moins un facteur 2 près. Les fractions biogénique et volcanique (la composante naturelle de l'aérosol) sont estimées respectivement à 57×10^9 et 21×10^9 kg par an, là aussi avec une incertitude de plus ou moins un facteur 2. Ces estimations

proviennent des bilans de masse des 11 modèles qui ont participé au rapport [IPCC, 2001]. Les sulfates sont des particules de taille submicronique essentiellement.

2.2.5 Les nitrates

La présence de nitrate est étroitement liée à la présence relative d'ammonium et de sulfates dans l'atmosphère. En effet, si l'ammonium est présent en excès par rapport à la quantité nécessaire à la neutralisation de l'acide sulfurique, alors de petites particules de nitrate peuvent se former. L'acide nitrique se déposera préférentiellement sur des particules de taille supérieure comme les sels ou les particules minérales [Basset and Seinfeld, 1984; Gard et al., 1998; Murphy and Thomson, 1997]. Les estimations de la quantité globale de ce type d'aérosols (NH_4NO_3) sont fixées à 0.24×10^9 kg pour les sources naturelles et 0.4×10^9 kg pour les sources anthropiques [IPCC, 2001].

2.3 L'impact des aérosols sur le climat

2.3.1 Description des processus d'interactions

Une fois dans l'atmosphère, les aérosols influent sur le bilan radiatif de la planète à la fois de manière directe et indirecte. L'influence des facteurs externes sur le climat peut être étudiée en utilisant le concept de forçage radiatif. Il est défini comme étant la variation de flux radiatif au sommet de l'atmosphère suite à l'application d'une perturbation en maintenant toutes les autres variables atmosphériques fixes (température, humidité de la troposphère et de la surface) et après ajustement des températures stratosphériques (retour à l'équilibre) [IPCC, 2001]. Les termes de *forçage radiatif positif* et de *forçage radiatif négatif* désignent respectivement les cas pour lesquels la perturbation tend à réchauffer ou à refroidir le climat.

2.3.1.1 L'effet direct

La présence d'aérosols dans l'atmosphère modifie directement l'équilibre radiatif de la planète car ces particules en suspension peuvent réfléchir et/ou absorber les rayonnements solaire et tellurique. La réflexion du rayonnement solaire entraîne une augmentation de l'albédo de la planète. Cet effet correspond à un cas de forçage radiatif négatif puisqu'une plus grande partie du rayonnement solaire est retournée vers l'espace, aboutissant ainsi à un refroidissement de la surface.

Contrairement au cas de réflexion, l'absorption tend à diminuer l'albédo car elle permet à une plus grande partie du rayonnement solaire d'atteindre la surface terrestre. Cet effet a récemment été mis en évidence par [Ackerman et al., 2000] lors de la campagne de mesures INDOEX menée en 1998 et 1999. Dans le cas d'aérosols absorbants, les deux manifestations de l'effet direct sont de signes opposés et le forçage radiatif qui en découle (au sommet de l'atmosphère) peut être négatif ou positif. Il dépend en fait de la réflectance de la surface. Si la réflectance de la surface est faible (c'est le cas des océans par exemple) alors le forçage radiatif sera négatif. En revanche, si la réflectance de surface est importante (au-dessus des continents notamment) alors l'effet d'absorption peut dominer par rapport à l'effet de réflexion et le forçage radiatif induit sera positif [Haywood and Shine, 1995; Haywood and Boucher, 2000]. Par ailleurs, l'absorption du rayonnement a pour conséquence l'augmentation de la température de l'air, ce qui induit la diminution de l'humidité

relative et mène donc à l'évaporation du nuage (effet semi-direct). Dans le cas où l'absorption se produit dans des zones claires, il peut y avoir inhibition de la formation nuageuse.

2.3.1.2 L'effet indirect

La présence d'aérosols dans l'atmosphère induit également une modification du bilan radiatif via leur impact sur la microphysique des nuages. En effet, les aérosols jouent le rôle de noyau de condensation (CCN) pour les gouttelettes nuageuses. Une augmentation du nombre de CCN se traduit par des gouttelettes de plus petite taille puisqu'une même quantité d'eau doit se répartir sur un plus grand nombre de CCN. Or pour un volume d'eau donné, si les gouttelettes d'un nuage sont plus petites et plus nombreuses alors sa surface réfléchissante est plus grande, ce qui augmente son albédo. Il s'agit là encore d'un forçage radiatif négatif des aérosols ; on parle ici du 1^{er} effet indirect (ou effet sur l'albédo des nuages). Ce processus d'interaction, décrit en 1977 par [Twomey, 1977], a été mis en évidence expérimentalement pour la première fois en 1987 par [Coakley et al., 1987] en observant l'augmentation de l'albédo des nuages suivant des trajectoires de bateaux dont les gaz d'échappements constituent une source d'aérosols. Par la suite, [Bréon et al., 2002] ont montré que le 1^{er} effet indirect des aérosols a un impact à l'échelle globale en couplant les données de taille de goutte et de contenu en aérosol de l'atmosphère mesurées par l'instrument spatial POLDER.

La diminution de la taille des gouttelettes nuageuses peut conduire à la suppression des précipitations si cette taille est devenue inférieure à la taille-seuil de formation des gouttes de pluie par coalescence. Cette suppression tend à augmenter la quantité d'eau liquide dans l'atmosphère et par conséquent la durée de vie du nuage, prolongeant ainsi son effet de refroidissement. Cet autre forçage radiatif négatif est appelé le second effet indirect (ou effet sur la longévité du nuage). Les observations issues de la mission spatiale TRMM (Tropical Rainfall Measuring Mission), lancée fin 1997, ont permis à Daniel Rosenfeld de fournir les premières observations de la suppression des précipitations d'une part dans les zones affectées par les feux de biomasse [Rosenfeld, 1999] et d'autre part dans les zones de fortes pollutions industrielles et urbaines [Rosenfeld, 2000].

2.3.2 Estimation quantitative

La variation de l'éclairement net au sommet de l'atmosphère, telle que définie au paragraphe précédent, est au premier ordre un bon indicateur des variations de la température de surface moyenne (au sens de globale et annuelle) à l'équilibre. On peut en effet définir le paramètre de sensibilité climatique λ tel que :

$$\Delta T_s / \Delta F = \lambda \quad \text{Équation 2.1}$$

Il correspond à la variation de la température de surface globale moyenne ΔT_s en réponse au forçage radiatif ΔF . Des études de modélisation de réponses à plusieurs forçages différents ont montré que λ dépend du modèle utilisé mais est pratiquement identique pour tous les différents types de forçages (à 25% près) [Le Treut et al., 1998]. C'est pourquoi le concept de forçage radiatif est très largement utilisé pour estimer l'impact des facteurs externes sur le climat. On distingue le « forçage radiatif des aérosols » dû aux seuls aérosols anthropiques de la « perturbation radiative des aérosols » due à la totalité des aérosols.

La figure 1.1 présentée au chapitre précédent nous permet de visualiser les estimations actuelles du forçage radiatif direct exercé par chaque type d'aérosols. Pour les sulfates, la valeur moyenne (annuelle et globale) retenue est de -0.4 Wm^{-2} avec une incertitude entre -0.2 et -0.8 Wm^{-2} . Les BC issus des combustibles fossiles exercent un forçage radiatif positif (entre $+0.1 \text{ Wm}^{-2}$ et $+0.4 \text{ Wm}^{-2}$) ; les OC un forçage radiatif négatif (-0.1 Wm^{-2}). Les incertitudes sont d'un facteur 2 pour les BC et 3 pour les OC. Notons que les particules de BC peuvent former des agrégats avec d'autres particules, notamment les sulfates et les particules organiques. La manière dont cette aggrégation est représentée dans les modèles (mélange interne ou externe) influe sur l'estimation du forçage radiatif. Les sources de BC et OC issus des feux de biomasse exercent un forçage radiatif combiné négatif de -0.2 Wm^{-2} avec une incertitude d'un facteur 3. L'incertitude sur le forçage radiatif des poussières désertiques est telle que son signe n'est pas connu, les estimations variant entre $+0.4$ et -0.6 Wm^{-2} . Enfin, dans le cas des nitrates, [Andreae, 1995] a estimé que le forçage radiatif direct de la partie anthropique de ces particules correspond à 2% du forçage total. Dans le cas du forçage radiatif indirect, les estimations sont particulièrement difficiles car elles nécessitent en outre que les processus d'interactions entre les aérosols et la microphysique des nuages soient décrits précisément dans les modèles. Seul le premier effet indirect (l'effet sur l'albédo des nuages) est pour l'instant pris en compte dans la figure 1.1. Les études ne permettent de fournir qu'une valeur comprise entre 0 et -2 Wm^{-2} . La modélisation du second effet indirect (l'effet sur la longévité du nuage) nécessite la prise en compte de rétroactions sur le cycle de l'eau atmosphérique. Ces rétroactions affectent le cycle hydrologique et la dynamique de l'atmosphère et rendent difficile l'application du concept de forçage radiatif à cette perturbation. On atteint pour cet effet les limites du concept de forçage radiatif.

2.3.3 Le rôle des aérosols d'origine anthropique

Les propriétés optiques des aérosols conditionnent leurs interactions avec le rayonnement. Ces propriétés sont fortement corrélées à la taille des particules. Ainsi, l'efficacité d'extinction, qui renseigne sur le degré d'interaction entre le rayonnement et les particules, dépend de leur taille. La Figure 2.1 montre que l'efficacité d'extinction est maximale pour les aérosols dont le diamètre est compris entre 0.1 et $2 \text{ }\mu\text{m}$. L'efficacité d'extinction y est présentée pour deux valeurs de l'indice de réfraction (qui renseigne sur la composition des particules).

Ces particules correspondent à celles du mode d'accumulation (dont le diamètre sec est compris entre 0.1 et $1 \text{ }\mu\text{m}$ et qui peut atteindre $2 \text{ }\mu\text{m}$ après hydratation). Les particules de taille submicronique sont donc celles qui interagissent le plus avec le rayonnement. Ce sont justement celles qui ont la plus grande durée de vie dans l'atmosphère (chapitre 1). Elles forment également la majorité des noyaux de condensation pour les gouttelettes nuageuses [Berresheim *et al.*, 1993]. Or nous avons vu à la section précédente que les particules de taille submicronique sont celles qui sont émises principalement par les activités humaines (sulfates, BC, OC) [Jones *et al.*, 1994]. Les émissions anthropiques sont donc en masse inférieures aux émissions naturelles mais affectent un mode particulièrement actif en terme d'interactions avec le rayonnement solaire, « moteur du climat », et peu alimenté par les émissions naturelles.

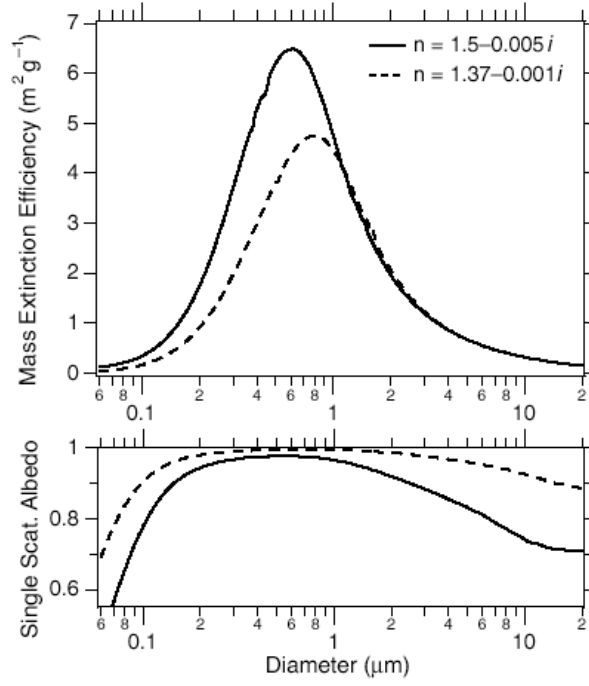


Figure 2.1: L'efficacité d'extinction (par unité de masse d'aérosol total) et l'albédo de simple diffusion des aérosols. Les calculs sont intégrés sur un spectre solaire typique plutôt que sur une seule longueur d'onde. D'après [IPCC, 2001].

2.4 L'observation des aérosols

2.4.1 L'observation par satellite

2.4.1.1 Le principe, l'histoire et les projets futurs

Les satellites sont devenus un outil indispensable à l'étude des aérosols car ils permettent une observation globale et journalière du contenu en aérosol de l'atmosphère. Ils sont particulièrement bien adaptés pour suivre l'évolution des sources d'aérosols et leur transport. La radiométrie passive mesure une luminance énergétique (en $\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{sr}^{-1}$). Il s'agit du flux énergétique émis ou réfléchi par unité de surface (perpendiculairement à la direction d'observation) et par unité d'angle solide, généralement mesuré dans certains canaux spectraux bien choisis. L'énergie radiative réfléchie et émise par la Terre porte en elle une signature des propriétés de la surface et de l'atmosphère traversée. La contribution de l'atmosphère peut être interprétée comme la somme de la contribution des molécules et des aérosols, si bien que le signal reçu par l'instrument spatial peut se décomposer au premier ordre suivant ces trois termes :

$$L_{\text{sat}} = L_{\text{surf}} + L_{\text{mol}} + L_{\text{aer}} \quad \text{Équation 2.2}$$

$$\text{avec } L_{\text{aer}} \propto \frac{\tau P(\theta)}{\mu}$$

où L_{surf} , L_{mol} , L_{aer} sont les luminances de la surface, des molécules atmosphériques et des aérosols respectivement, τ représente l'épaisseur optique¹ des aérosols, P la fonction de phase² des particules, θ l'angle de diffusion et μ le cosinus de l'angle solaire zénithal.

L'épaisseur optique des aérosols (AOT) correspond à l'atténuation de la lumière du soleil par la couche d'aérosol présente dans la colonne d'atmosphère sondée. L'inversion du signal vise à isoler cette grandeur car elle est reliée à la masse d'aérosols intégrée sur la verticale. L'autre intérêt d'isoler l'AOT est qu'elle peut être facilement validée par comparaison avec les mesures directes et fiables des photomètres au sol. Pour obtenir l'AOT, il faut préalablement isoler la luminance des aérosols, ce qui signifie trouver les conditions pour lesquelles la luminance de la surface soit faible (on parle de surface « noire ») et corriger le signal restant de la contribution moléculaire. Le choix des conditions d'observation (domaine spectral) requiert des techniques très différentes au-dessus des océans et des continents. Au-dessus des océans, le domaine du proche infra-rouge est favorable à la mesure des aérosols car l'océan n'y réfléchit pratiquement pas le rayonnement solaire ($L_{\text{surf}} \approx 0$). Au-dessus des continents, la mesure est plus complexe car les signaux diffusés par les aérosols et la surface sont difficiles à distinguer. Les différents instruments développés au cours des années 90 ont permis de répondre à ce problème. Nous les présenterons au paragraphe suivant. Enfin, pour isoler l'AOT à partir de la luminance des aérosols, il est nécessaire de faire des hypothèses sur la distribution en taille des particules pour connaître la fonction de phase P . Il est donc nécessaire d'apporter une information a priori pour passer de la mesure directe du satellite aux quantités relatives aux aérosols. L'information apportée est plus ou moins bien contrainte en fonction des instruments spatiaux. Ainsi, un instrument qui peut coupler l'information provenant de la mesure dans plusieurs canaux et/ou à des angles de visée différents permettra de contraindre davantage l'inversion du signal (P) et donc de réduire l'incertitude sur le produit final.

La Figure 2.2, adaptée de [King et al., 1999] dresse une liste des différents instruments qui depuis la fin des années 70 nous permettent d'avoir accès aux mesures d'aérosols depuis l'espace. Les premiers instruments comme AVHRR (Advanced Very High Resolution Radiometer), METEOSAT ou GOES (Geostationary Operational Environmental Satellite) n'ont pas été développés spécifiquement pour l'observation des aérosols. Leurs mesures dans une longueur d'onde unique et avec un angle d'observation unique ont pu être traité a posteriori pour obtenir l'AOT au-dessus des océans [Stowe et al., 1992; Husar et al., 1997]. TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer), qui vole depuis 1978, possède deux canaux d'observation dans l'ultraviolet qui ont été utilisés dans le cadre des aérosols [Herman et al., 1997]. Ces longueurs d'onde ne permettent pas de sonder l'atmosphère jusqu'à la surface. Néanmoins, les données TOMS, qui renseignent sur la présence d'aérosols dans les couches élevées, sont disponibles sur plus de 20 ans. Cela permet d'étudier les variations interannuelles.

¹ Soit un volume traversé par un flux de lumière, I_0 étant le flux entrant et I le flux sortant. Alors $I = I_0 \times e^{-\tau}$ où $e^{-\tau}$ correspond au facteur de transmission et τ à l'épaisseur optique.

² Les particules diffusent la lumière avec une distribution angulaire qui varie suivant leur forme et leur taille. Cette information est contenue dans la fonction de phase qui dépend de l'angle entre les directions d'incidence et de diffusion.

Le premier instrument désigné spécifiquement à l'observation des aérosols est POLDER (Polarization and Directionality of the Earth's Reflectances) [Deschamps *et al.*, 1994] lancé en 1996. POLDER utilise une combinaison de la mesure dans plusieurs canaux ($0.44 - 0.86 \mu\text{m}$) sous différents angles de visée (jusqu'à 14) et la mesure en lumière polarisée pour contraindre l'inversion du signal. Il utilise un concept original pour isoler le signal des aérosols au-dessus des continents, qui sera détaillé au paragraphe suivant. [Myhre *et al.*, 2004] présentent une étude comparative des AOT inversées au-dessus des océans à partir de ces instruments. Ils montrent d'une part que les valeurs inversées peuvent différer d'un facteur 2 et d'autre part que les techniques adaptées de POLDER ont permis de réduire considérablement les incertitudes (figure 9).

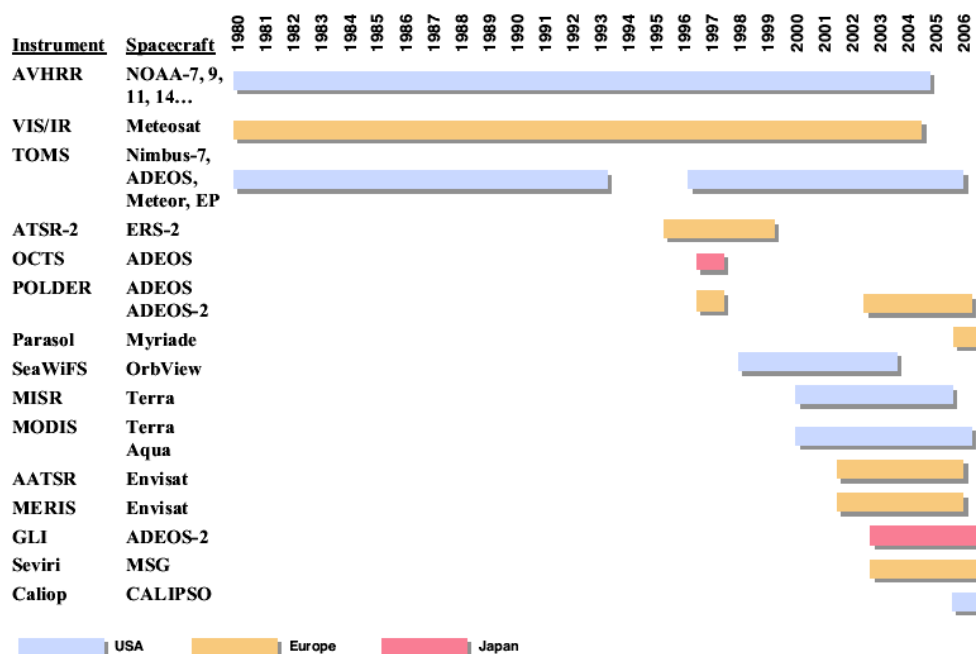


Figure 2.2 Les missions spatiales passées, présentes et futures utilisées pour l'étude des aérosols. Adaptée de [King *et al.*, 1999]

Depuis 2000, MODIS (Moderate-resolution Imaging Spectroradiometer) et MISR (Multi-angle Imaging Spectroradiometer) ont été lancés. Deux instruments MODIS acquièrent actuellement des données. Ils sont placés sur deux plate-formes (Terra et Aqua) qui ont des heures de passage différentes (10h30 et 13h30 en heure locale). Au-dessus des océans, MODIS utilise la signature spectrale des aérosols dans le domaine ($0.47 - 2.1 \mu\text{m}$) [Tanré *et al.*, 1997; Remer *et al.*, 2002]. L'AOT, le rayon efficace et la fraction d'AOT dans le mode fin sont inversés. Au-dessus des continents [Kaufman *et al.*, 1997; Chu *et al.*, 2002], MODIS estime la contribution du signal de la surface par la mesure dans l'infrarouge (peu affectée par les contributions moléculaires et des aérosols). La réflectance de la surface dans le visible est alors estimée à partir de cette mesure dans l'infrarouge. La différence avec la mesure effective en haut de l'atmosphère permet d'obtenir l'AOT. Cette technique ne permet toutefois pas de mesure au-dessus des déserts. L'approche utilisée par MISR au-dessus des continents est l'observation à plusieurs angles de vues différents à l'intérieur d'un domaine spectral plus faible que celui de MODIS ($0.44 - 0.86 \mu\text{m}$) [Diner *et al.*, 1998]. La lumière qui sort en haut de l'atmosphère est affectée par

l'angle auquel elle a été réfléchi par la surface ou par l'atmosphère. Une mesure à plusieurs angles de visée permet ainsi de contraindre l'inversion. MIRS vole sur Terra uniquement. Enfin, ATSR (Along Track Scanning Radiometer) utilise une approche mixte avec une mesure dans un domaine spectral plus large que MISR (0.55 - 1.65 μm) et avec 2 angles de vue.

La mission CALIPSO (Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations) dont le lancement est prévu en 2005 est développée en collaboration entre la NASA et le CNES ; plusieurs laboratoires de l'IPSL - dont le LSCE - y participent. CALIPSO embarque, entre autres, un lidar spatial qui permettra pour la première fois d'avoir accès à la distribution verticale des aérosols depuis l'espace. CALIPSO sera inséré dans l'ensemble spatial « A-train », qui correspond à une combinaison d'instruments qui voleront ensemble autour de la plate-forme AQUA pour permettre une observation coïncidente de la Terre à partir des différents instruments (EOS Aqua, CloudSat, CALIPSO, PARASOL, EOS Aura, and OCO).

2.4.1.2 L'exemple de POLDER

L'instrument POLDER (Polarization and Directionality of the Earth's Reflectances) est issu d'une collaboration franco-japonaise. C'est le premier polarimètre imageur spatial à observer simultanément les propriétés de polarisation et de directionnalité du rayonnement solaire réfléchi par le système Terre-atmosphère [Deschamps *et al.*, 1994]. Il y a eu deux missions (sur ADEOS I et II) qui ont permis d'acquérir quinze mois de données entre novembre 1996 et juin 1997 et entre avril et octobre 2003. L'instrument est composé de trois principaux éléments : une matrice de détecteurs CCD, une composante optique à grand champ de vue et une roue portant plusieurs filtres et polariseurs. Il possède huit bandes spectrales dont trois sont associées à des filtres polarisés. Ses caractéristiques techniques offrent un principe original d'observation de la Terre qui permet une couverture quotidienne quasi complète de la surface du globe. Une séquence d'image est réalisée toutes les vingt secondes, temps pendant lequel le satellite s'est déplacé de 140 kilomètres environ. Ainsi, un point quelconque à la surface de la Terre reste généralement visible par POLDER pendant plusieurs séquences de prise de vue successives, typiquement douze lors d'un seul passage du satellite. D'un jour à l'autre, ses traces au sol sont décalées si bien que le point est observé sous de nouvelles géométries. Au bout de quatre jours, les conditions d'observation redeviennent voisines de celles du premier jour. La résolution instrumentale est de 6 km $\times$ 7 km au nadir, elle augmente avec l'angle d'incidence à cause de la courbure de la Terre. Son champ de vue correspond à une fauchée de 2400 kilomètres.

Au-dessus des océans, le principe du schéma d'inversion est classique [Deuzé *et al.*, 2000]. Les mesures directionnelles apportent une information supplémentaire qui permet de mieux contraindre le type d'aérosol observé. De plus, lorsque la gamme d'angle de diffusion est suffisante, l'utilisation de la polarisation permet de connaître l'indice de réfraction et apporte des informations sur la sphéricité [Herman *et al.*, 2004]. Au-dessus des continents, POLDER utilise ses capacités de mesure en lumière polarisée [Deuzé *et al.*, 2001]. En effet, le signal diffusé par les aérosols est fortement polarisé alors que celui de la surface ne l'est que faiblement. Seule la fraction submicronique des particules polarise la lumière et est par conséquent visible par POLDER au-dessus des continents. La mesure est proportionnelle au produit de l'AOT et du coefficient d'Angström, α (qui renseigne sur la taille des particules). Ce produit a été défini comme l'indice aérosol POLDER (AI_{polder}). Les

valeurs de α varient typiquement entre 0 (pour les particules du mode grossier) et 2 (1.5 est la valeur mesurée en Afrique pour les aérosols carbonés issus des feux de biomasse [Lioussse *et al.*, 1995]). L' AI_{polder} peut en fait être interprété comme l'épaisseur optique des particules de taille submicronique. Utiliser cet indice au-dessus des océans représente une perte d'information par rapport à l'AOT qui est connue, mais permet d'obtenir les premières distributions continues (terre-mer) d'aérosols.

2.4.1.3 Quels sont les prochains défis de l'observation spatiale ?

L'observation spatiale des aérosols fournit à présent l'AOT au-dessus des océans en ciel clair avec une très bonne précision ($\pm 0.03 \pm 0.05 AOT$ avec MODIS). Néanmoins, il reste des informations essentielles à la caractérisation des aérosols qui ne sont pas encore mesurées et vers lesquelles les efforts futurs vont s'orienter. Tout d'abord, les inversions d'AOT et de taille des particules au-dessus des continents restent de qualité insuffisante ($\pm 0.05 \pm 0.20 AOT$ avec MODIS) pour valider ou contraindre les modèles. De plus, la distribution verticale des aérosols est inaccessible à partir des mesures passives actuelles (CALIPSO sera lancé en 2005). Enfin, la mesure spatiale ne permet pas encore de distinguer les différents types d'aérosols bien que l'arrivée d'instruments adaptés ait permis la distinction entre fraction anthropique et naturelle. Pour cet objectif, la mesure de l'absorption des aérosols depuis l'espace permettrait d'apporter des éléments de réponse. Elle est de plus très importante pour l'effet direct et semi-direct. Enfin, les observations spatiales ont déjà été utilisées pour fournir une estimation de la perturbation radiative des aérosols [Bellouin *et al.*, 2003; Boucher and Tanré, 2000] au-dessus des océans. Le prochain grand défi sera de fournir une mesure de l'effet indirect.

2.4.2 Les mesures depuis le sol

Les mesures au sol constituent une source d'information fiable et indispensable pour valider les mesures satellitaires et les modèles. Elles seront utilisées à plusieurs reprises dans ces travaux pour évaluer les performances du modèle et les observations spatiales. Depuis le milieu des années 90, un réseau mondial de mesure des propriétés optiques des aérosols et d'archivage des données en temps quasi-réel a été mis en place. Il s'agit du réseau AERONET (AErosol RObotic NETwork) mis en place par NASA's Earth Observing System et étendu à de nombreux autres instituts dans le monde. La Figure 2.3 présente la répartition des stations AERONET sur le globe. Il y en a désormais plus de 400 dont 160 sont permanentes.

Les instruments de mesure sont des radiomètres spectraux automatiques détenus par les universités et les agences nationales. Les données collectées permettent une mesure de l'AOT à différentes longueurs d'onde et de la distribution en taille sous différents régimes d'aérosols. Les radiomètres procèdent à une mesure soit en visée directe vers le soleil soit en visée vers le ciel [Holben *et al.*, 1998]. Les mesures en visée directe vers le soleil sont réalisées dans 8 bandes spectrales (340, 380, 440, 500, 670, 870, 940, 1020 nm) en 10 secondes. L'AOT est calculée à partir de l'extinction du flux radiatif direct dans chaque longueur d'onde et basée sur la loi de Beer-Lambert-Bouguer. L'atténuation due à la diffusion Rayleigh, à l'absorption par l'ozone (obtenu par interpolation à partir d'une climatologie d'ozone) est estimée et ôtée pour isoler l'AOT. Pour chaque longueur d'onde, une séquence de 3 mesures à 30 secondes d'intervalle est réalisée, créant ainsi un triplet d'observations. L'opération est répétée à intervalles de 15 minutes. La variabilité temporelle des

nuages étant typiquement plus importante que celle des aérosols, les variations observées à l'intérieur d'un triplet d'observation sont utilisées pour éliminer les observations contaminées par les nuages. L'intervalle de 15 minutes entre chaque triplet constitue un test supplémentaire sur la contamination nuageuse. Les mesures en visée vers le ciel sont effectuées à 4 longueurs d'ondes différentes et sont utilisées pour obtenir la distribution en taille des particules et l'indice de réfraction. L'incertitude totale sur les données provient de la précision de l'instrument (qui est négligeable) et de l'étalonnage. L'incertitude totale sur l'AOT mesurée en ciel clair (à partir d'un instrument récemment étalonné) est estimée typiquement inférieure à ± 0.01 pour des longueurs d'onde inférieures à 440 nm et inférieure à ± 0.02 pour des longueurs d'ondes plus courtes.

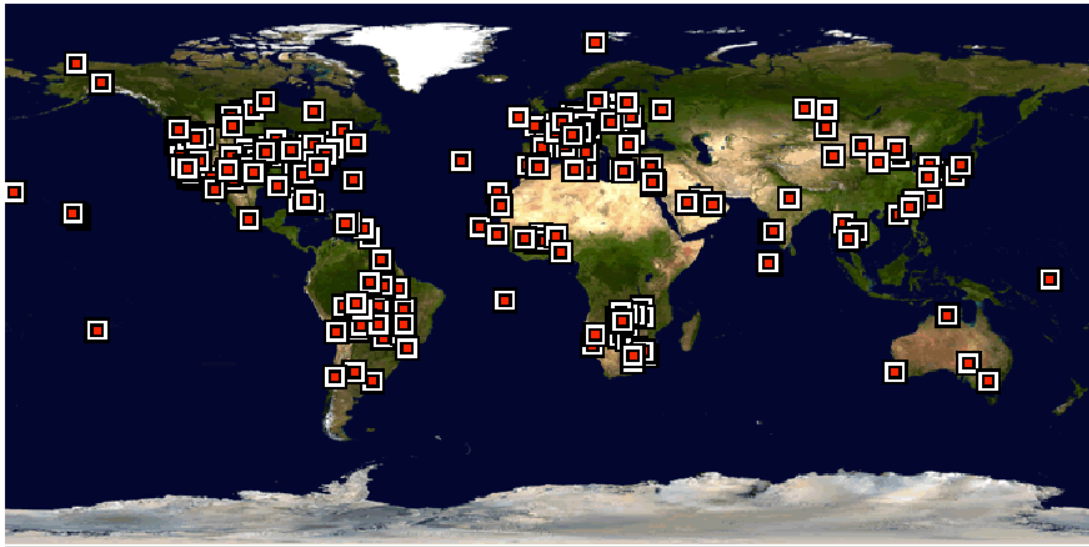


Figure 2.3 Les stations AERONET. Les données sont toutes accessibles à partir du site internet (<http://aeronet.gsfc.nasa.gov/>)

2.5 La modélisation des aérosols

2.5.1 Les modèles d'aérosols

Les modèles de climat ont commencé à décrire la distribution géographique et les différents types d'aérosols en utilisant des climatologies prescrites [Tanré et al., 1984; D'Almeida, 1991]. Les propriétés optiques sont alors calculées indépendamment du modèle en utilisant la théorie de Mie et en fixant la taille des particules uniformes, la densité et la composition des particules [Shettle and Fenn, 1976; Krekov, 1993]. Aujourd'hui, la plupart des modèles de circulation générale (MCG) intègrent des modules d'aérosols qui calculent en ligne la masse d'aérosols. Ces MCG sont souvent contraints par les champs météorologiques observés des grands centres tels que CEPMMT (Centre Européen de Prévision Météorologique à Moyen Terme) ou NCEP (National Center for Environmental Prevision). Il est ainsi possible de tenir compte des processus complexes d'interactions entre les aérosols, les nuages, la chimie hétérogène et de paramétrer le dépôt humide. Nous en verrons un exemple au paragraphe 2.5.2.

La modélisation des aérosols primaires repose sur la connaissance des sources et des processus principaux de croissance de la taille des particules (hygroscopicité), du transport et du dépôt. Des modèles représentant la concentration du nombre de particules ont été développés pour les poussières désertiques [Tegen and Lacis, 1996; Schulz *et al.*, 1998] et pour les sels marins [Gong *et al.*, 1998]. En revanche, la description des sulfates est plus complexe car ce sont des aérosols secondaires dont la représentation dans un modèle nécessite la prise en compte correct des éléments précurseurs. [Chin *et al.*, 2000; Boucher *et al.*, 2002] par exemple, décrivent des modèles représentant le cycle du soufre.

L'AOT correspond à la variable la plus communément utilisée pour lier les modèles aux observations. Elle correspond à un produit standard délivré par les inversions satellites et est généralement mesurée dans les campagnes de mesure. Cependant les modèles décrivent la masse et/ou le nombre des particules. Il est donc nécessaire de calculer les propriétés optiques des aérosols à partir de la masse simulée. Nous détaillerons le calcul de l'épaisseur optique dans les modèles au chapitre 5.

2.5.2 L'exemple du LMDz-INCA

Le modèle de circulation générale du Laboratoire de Météorologie dynamique, LMDz, a été initialement décrit par [Sadourny and Laval, 1984]. Il se compose d'une partie qui traite les processus dynamiques à grande échelle (partie dynamique) et d'une partie qui décrit les processus adiabatiques (partie physique). Dans la partie dynamique, les équations primitives sont résolues numériquement. Elles décrivent le mouvement des vents horizontaux, l'évolution de la température (équation thermodynamique) et permettent de relier la température et la pression (approximation hydrostatique) ainsi que les vents verticaux aux vents horizontaux (par le biais de l'équation de continuité). Cette partie a été utilisée non seulement pour étudier l'atmosphère terrestre mais également celle d'autres planètes [Hourdin *et al.*, 1993]. Le LMDz simule de manière interactive le transport atmosphérique des différentes espèces. L'advection à grande échelle est calculée selon un schéma de transport à volume fini développé par [Van Leer, 1977]; la convection profonde est décrite selon la paramétrisation de [Tiedtke, 1989]. Le modèle peut être utilisé en mode climatologique ou en mode contraint par les réanalyses des champs météorologiques (vents, température) du CEPMMT. Dans la suite de ce travail, le modèle sera utilisé dans sa version appelée sur les champs météorologiques observés (vents horizontaux). La version utilisée dans cette étude (référéncée 3.3) possède une résolution horizontale de 3.75° en longitude et 2.5° en latitude. Sur la verticale, l'atmosphère est décomposée en 19 couches entre la surface et environ 3 hPa, les coordonnées σ -p sont utilisées. Cette résolution verticale correspond à 300-500 m dans la couche limite et à environ 2 km à la tropopause. Les équations primitives sont résolues à un intervalle de temps de 3 minutes, le transport à grande échelle des différentes espèces est calculées toutes les 15 minutes et les processus physiques sont résolus toutes les 30 minutes.

Le modèle INCA (Interaction With Chemistry and Aerosols) a été couplé récemment au LMDz [Hauglustaine *et al.*, 2004]. C'est un modèle de chimie et d'aérosols qui est appelé toutes les 30 minutes par le MCG. Il prépare les émissions, calcule les taux de dépôt sec et humide et calcule de manière interactive les concentrations des différentes espèces qui vont intervenir dans les réactions de photochimie de l'atmosphère. Dans cette première version du modèle, le schéma chimique utilisé inclut la description des espèces CH_4 - NO_x - CO - O_3 représentatives de la chimie de

base de l'atmosphère. Le modèle calcule la distribution de l'ozone troposphérique et de ses précurseurs ainsi que des principaux gaz à effet de serre et de différents traceurs inertes qui permettent d'évaluer les processus de transport et physiques.

La partie qui traite des aérosols dans le modèle INCA est en cours de développement au LSCE ; c'est une première version de ce module que j'ai utilisé pour mes travaux de thèse. Le modèle décrit séparément les émissions, le dépôt et la chimie des aérosols désertiques, marins, carbonés (BC, POM) et sulfatés. Les distributions en taille de chaque type d'aérosols sont représentées par des distributions log-normales qui sont décrites par deux paramètres. Le premier est le diamètre médian en masse (mmd) qui correspond au diamètre pour lequel la moitié des particules de la distribution ont un diamètre inférieur et l'autre moitié supérieur. Il est défini pour chaque espèce. L'autre paramètre, σ , représente l'écart-type géométrique qui renseigne sur la largeur de la distribution. Il est défini par mode. Les valeurs utilisées pour ces deux paramètres sont indiquées dans le Tableau 2.1. Ce tableau présente les modes utilisés pour décrire chaque type d'aérosols. Cinq modes sont actuellement considérés. Les trois modes d'accumulation, grossier et « super grossier » permettent de distinguer la description des aérosols en fonction de leur classe d'appartenance en taille. Les deux premiers modes sont divisés en deux modes pour tenir compte du caractère soluble ou insoluble des particules. Les poussières désertiques ne sont prises en compte que dans le mode grossier insoluble. Les aérosols carbonés sont représentés dans le mode d'accumulation et leur caractère hydrophobe/hydrophile est pris en compte par la séparation en fraction insoluble et soluble. Au moment de l'émission 50% des OC sont considérés hydrophiles (donc solubles) et 50% hydrophobes (insoluble). Ces rapports sont respectivement de 20% et 80% pour les BC. Puis au cours de leur transport une partie des aérosols carbonés hydrophobes évolue vers un comportement hydrophile. Ce phénomène a un impact sur la concentration des aérosols carbonés. Il est représenté dans le modèle selon une loi exponentielle en $-t/\tau$ où le temps caractéristique τ a été estimé à 1,2 jour. Les sulfates sont décrits solubles et de taille submicronique. Enfin, les sels marins sont représentés comme des particules solubles et la grande variété de leur taille est prise en compte par leur représentation dans les 3 modes de taille.

	CI	CS	AI	AS	SS	mmd (μm)
Dust	X					2.5
Sea Salt		X		X	X	variable
BC			X	X		0.14
POM			X	X		0.34
Sulfate				X		0.3 (aérosols primaires)
σ	2.	2.	1.59	1.59	2.	

Tableau 2.1 : Les colonnes représentent les 5 modes d'aérosols utilisés à présent dans INCA. L'appellation utilisée dans le modèle est conservée par souci de clarté. CI : Coarse Insoluble mode ; CS : Coarse Soluble ; AI : Accumulation Insoluble ; AS : Accumulation Soluble ; SS : Super (Coarse) Soluble. Les lignes représentent les espèces d'aérosols prises en compte à présent dans le modèle (dust : poussières désertiques). Les croix indiquent les modes pris en compte pour chaque espèce d'aérosols. La dernière colonne indique le diamètre médian moyen pris en compte pour décrire chaque mode.

2.5.3 Les sources d'incertitude et les prochains défis

Les sources d'erreurs sur les AOT simulées peuvent provenir des différentes étapes qui interviennent dans la modélisation des aérosols. D'une part, les processus dynamiques et adiabatiques qui régissent la circulation générale sont une source d'erreur. D'autre part, les hypothèses propres au modèle d'aérosols (en particulier la description des sources et puits, les réactions chimiques) engendrent des incertitudes. Enfin, les erreurs liées au calcul des propriétés optiques sont importantes. Des études de comparaison entre les différents modèles d'aérosols ont été réalisées, notamment dans le cadre du rapport [IPCC, 2001] ou plus récemment par [Kinne *et al.*, 2003]. Dans le cadre de cette étude, les moyennes mensuelles et régionales des masses d'aérosols et d'AOT simulées par 7 modèles globaux d'aérosols ont été comparées. Les différences entre les modèles sont importantes quel que soit le type d'aérosol considéré. Les plus grandes différences ont été trouvées près des sources de feux de biomasse et de poussières désertiques. Les gradients en masse observés en s'éloignant des sources révèlent des différences importantes dans les processus de transport et de dépôt décrits par les différents modèles. La comparaison des rapports entre l'AOT et la masse permet de montrer qu'il existe de larges différences dans les coefficients d'extinction spécifique utilisés. Les comparaisons avec les observations du réseau AERONET suggèrent une forte sous-estimation des sources d'aérosols carbonés issus des feux et des poussières désertiques dans la plupart des modèles. Les comparaisons avec des données satellitaires montrent que dans les régions éloignées des sources, les modèles ont tendance à sous-estimer les concentrations en aérosols.

Cette étude montre la difficulté des comparaisons entre les modèles et avec les observations liés aux différentes hypothèses choisies. La mise au point récente du projet AEROCOM d'inter-comparaison de modèles d'aérosols, mené par M. Schulz du Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement et S. Kinne du Max Planck Institute für Meteorologie montre l'effort qui est investi par l'ensemble de la communauté pour réduire les incertitudes liées à la modélisation. L'autre grand défi de la modélisation des aérosols est de décrire l'effet indirect et de pouvoir fournir des estimations du forçage radiatif lié à cet effet. La difficulté réside ici dans une description plus réaliste des nuages dans les modèles et des différentes interactions avec les aérosols. Des études pour prendre en compte l'effet indirect dans les modèles ont déjà été réalisées [Menon *et al.*, 2002; Quaas *et al.*, 2004].

2.6 Conclusion

Les émissions d'aérosols sont d'une extrême variabilité spatiale et temporelle. Leur composition, leurs interactions avec le climat et leur durée de vie sont différentes d'un type à un autre, voire au sein d'un même type, rendant leur étude particulièrement complexe. En masse émise, ce sont les émissions d'aérosols naturelles qui dominent. Cependant, les aérosols d'origine anthropique affectent un mode particulièrement actif du point de vue des interactions avec le climat et peu alimenté par les émissions naturelles.

Les aérosols perturbent l'équilibre radiatif de la planète directement par la réflexion et l'absorption des rayonnements solaire et tellurique et indirectement via leurs impacts sur la microphysique et la dynamique des nuages. L'estimation quantitative

de ces forçages radiatifs reste soumise à de fortes incertitudes. En particulier, le forçage radiatif dû à l'effet indirect reste actuellement très incertain.

L'arrivée dans le milieu des années 90 des missions spatiales dédiées spécifiquement à l'observation des aérosols a permis un apport d'information global et quasi-continu. Les instruments spatiaux sont en effet particulièrement bien adaptés au suivi des sources et des panaches de ces particules. L'observation au-dessus des océans est devenue très fiable. Les efforts futurs vont porter sur la réduction des incertitudes de l'observation au-dessus des continents, la différenciation des types présents et la mesure de la distribution verticale. Le prochain grand défi sera de fournir une estimation du forçage radiatif dû à l'effet indirect.

Depuis le milieu des années 90, le réseau AERONET permet la mesure de plusieurs propriétés optiques des aérosols à partir de photomètres au sol. Plus d'une centaine de stations dans le monde sont permanentes. La mise à disposition des données via un site internet, la facilité d'accès aux données et la qualité de ces dernières permettent à la communauté scientifique de bénéficier d'une large quantité de données pour valider aussi bien les observations spatiales que les modèles d'aérosols.

La description des aérosols se fait désormais en ligne dans les modèles de circulation générale. Ces modèles décrivent les émissions, calculent les taux de dépôt sec et humide et les concentrations séparément pour les aérosols désertiques, marins, carbonés et sulfatés. Dans certains modèles, comme le LMDz-INCA développé au LSCE, la description se divise encore selon différents modes de distribution en taille (généralement mode d'accumulation et mode grossier). Les modèles calculent la masse des aérosols et non pas l'AOT qui est la variable la plus couramment utilisée pour les comparer aux observations. Ils doivent par conséquent inclure le calcul des propriétés optiques des particules qui requiert des hypothèses supplémentaires.

Chapitre 3

Les émissions dans LMDz-INCA

3.1	Introduction.....	38
3.2	Etude de la représentativité des émissions du modèle.....	39
3.2.1	Description des émissions.....	39
3.2.2	Analyse de la représentativité des émissions	40
3.2.2.1	Comparaisons aux observations.....	40
3.2.2.2	Conclusions	43
3.3	Émissions par les feux de biomasse : correction des inventaires par les observations spatiales	44
3.3.1	Présentation de la méthode	44
3.3.2	Validation de la méthode.....	46
3.3.2.1	Validation de la distribution temporelle	46
3.3.2.2	Validation de la distribution spatiale	48
3.3.2.3	Les sources d'incertitude.....	49
3.4	Présentation des résultats	50
3.4.1	Le cycle saisonnier	50
3.4.2	La variabilité interannuelle	52
3.4.3	À l'échelle planétaire.....	56
3.5	Comparaison aux autres méthodes	56
3.5.1	Présentation des autres méthodes	56
3.5.2	Comparaison des quantités émises	57
3.6	Vers la résolution journalière des émissions par les feux ? ...	60
3.7	Conclusion.....	62

3.1 Introduction

Dans ce chapitre, je m'intéresse aux émissions d'aérosols dans LMDz-INCA. La description des émissions est une étape majeure dans la modélisation de ces particules car elles vont déterminer les concentrations d'aérosols dans l'atmosphère. Dans les régions sources, c'est le paramètre principal qui contrôle les concentrations. Nous pourrions concevoir ce chapitre comme le premier volet d'une étude préliminaire à la mise en place de l'assimilation des données dont le but est d'évaluer la représentation des émissions des différents types d'aérosols.

La Figure 3.1 présente les principales régions d'émission. Certaines sont caractéristiques des émissions naturelles, essentiellement les régions désertiques (poussières), océaniques (aérosols marins) et boréales (aérosols carbonés). D'autres sont principalement liées aux activités humaines. C'est le cas des régions de grandes agglomérations comme l'Europe ou l'Amérique du Nord ou des régions de feux de biomasse comme l'Afrique ou l'Amérique du Sud. La région asiatique est beaucoup plus complexe car y sont émis différents types d'aérosols d'origine naturelle et anthropique.

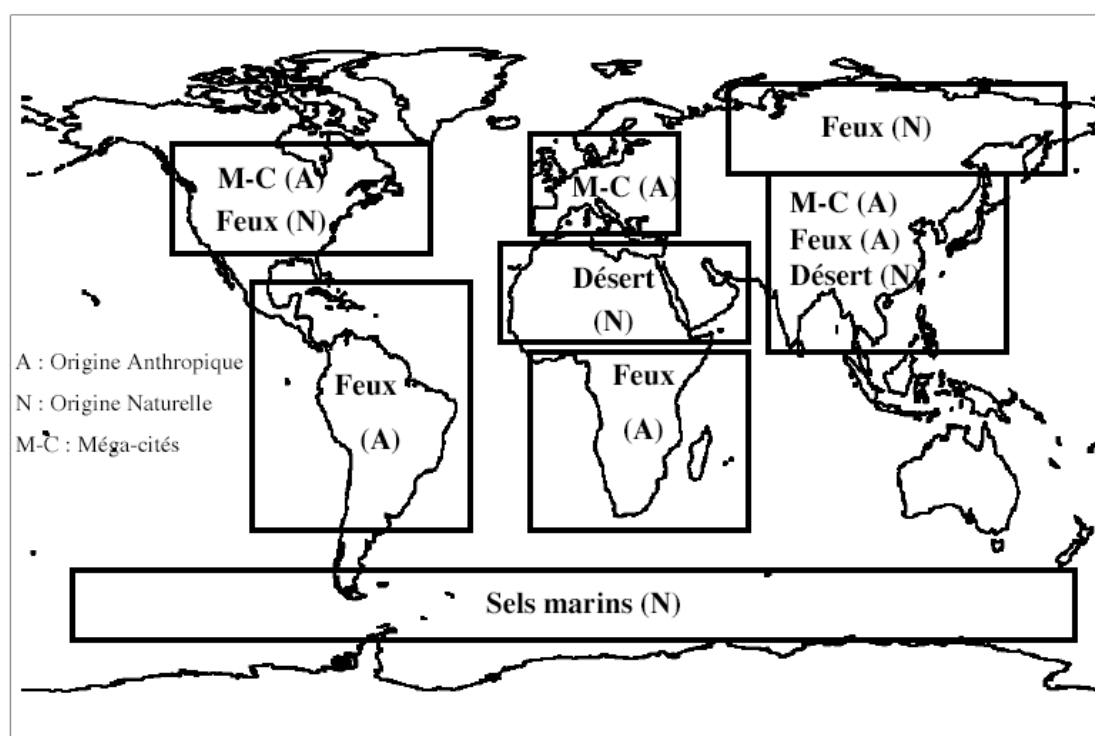


Figure 3.1: Principales régions d'émission d'aérosols

La description des émissions dans le modèle nécessite à la fois une représentation correcte des quantités émises et de leurs distributions spatiale et temporelle. La démarche suivie ici pour évaluer leur représentativité est la comparaison entre les moyennes mensuelles des champs d'AOT observées et simulées. Les comparaisons se limitent aux régions des sources. Je présenterai tout d'abord la description des émissions et l'étude de leur représentativité. Je me suis intéressée en particulier aux régions de feux de biomasse. Nous en comprendrons les raisons dans la première partie. J'ai développé une méthode qui introduit la variabilité intra et interannuelle observée par satellites dans les inventaires climatologiques existants. Je consacre la

suite du chapitre à la description de la méthode et à la présentation des validations et des résultats. Je compare ces travaux à ceux d'autres méthodes développées en parallèle. Enfin, je discute dans la partie 3.6, dans un contexte de modélisation des feux, des améliorations à apporter pour obtenir une représentation plus satisfaisante de leurs émissions.

3.2 Etude de la représentativité des émissions du modèle

3.2.1 Description des émissions

Les émissions de poussières désertiques et de sels marins sont fortement dépendantes des vents à la surface. Elles sont calculées en-ligne dans le modèle à partir des ré-analyses de vent fournies par le centre européen (CEPMMT). Les champs météorologiques sont intégrés toutes les six heures dans le modèle. Dans le cas des poussières désertiques, la paramétrisation des émissions reprend le travail de thèse de [Claquin, 1999]. Les deux paramètres qui régissent les émissions de poussières, le facteur d'émission (en $\text{g.s}^2.\text{cm}^{-2}$) et la vitesse seuil d'érosion, ont été décrits en tenant compte de leur variabilité géographique et donc des propriétés des sols dans toutes les régions désertiques du globe. Le facteur d'émission a été étalonné avec les données TOMS. Dans le cas des sels marins, les émissions utilisées découlent de l'étude de [Guelle et al., 2001] qui ont comparé trois paramétrisations. Les émissions sont ajustées à des fonctions empiriques décrites par [Monahan et al., 1986] pour les particules fines (inférieures à $4 \mu\text{m}$). Pour les grosses particules, c'est une combinaison de [Monahan et al., 1986] et de [Smith and Harrison, 1998] qui est plus appropriée.

Les émissions d'aérosols carbonés sont en revanche prescrites avec une résolution mensuelle. Elles sont représentées par l'inventaire climatologique réalisé par [Lioussse et al., 1996]. Les émissions des feux de biomasse incluent les feux liés aux pratiques agricoles, les feux de savane et des forêts tropicales. Les régions boréales ne sont pas considérées dans cet inventaire. Les émissions par les combustibles fossiles sont prises en compte ; elles sont estimées à partir de travaux antérieurs. Dans le cas des OC, les émissions naturelles dues à la conversion des terpènes en particules sont comptabilisées (par le biais d'un seuil de conversion fixe). Les bilans de masse d'aérosols carbonés émis dans une année sont présentés dans le Tableau 3.1.

Sources	OC $\times 10^9$ kg de matière/an	BC $\times 10^9$ kg C/an
Feux de biomasse	44,6	5,63
Savanne	15,5	2,17
Forêts tropicales	16,6	1,93
Agriculture	3,1	0,53
Feux domestiques	9,3	1
Combustible fossile	28,5	6,64
Sources naturelles	7,8	—
Total	81	12,3

Tableau 3.1 : Bilan des émissions d'aérosols carbonés dans LMDZ-INCA d'après l'inventaire de Lioussse et al., 1996. Ce tableau est extrait de l'article précité.

Les émissions de précurseurs de sulfates sont également prescrites avec une résolution mensuelle ; plusieurs sources sont considérées. La quantité annuelle injectée dans l'atmosphère s'élève à 95.9×10^9 kg de soufre par an (kg S/an). La conversion du SO_2 en aérosols est la principale source. Elle est représentée à partir des inventaires de la base de données EDGAR 3.2 qui ont été utilisés pour fixer la distribution et les quantités de SO_2 émises (72×10^9 kg S/an). Les réactions chimiques qui conditionnent la quantité d'aérosols à partir de la conversion du SO_2 sont celles décrites par [Boucher et al., 2002]. Le DMS est l'autre précurseur principal des sulfates. Les quantités de DMS émises (19.4×10^9 kg S/an) suivent les données de [Kettle and Andreae, 2000] selon une paramétrisation de [Nightingale et al., 2000]. Enfin, deux autres sources d'aérosols sulfatés sont considérées. D'une part, une émission directe sous forme de sulfates est prise en compte. Elle correspond à une fraction des émissions anthropiques de SO_2 (2.8×10^9 kg S/an). D'autre part, les émissions de H_2S sont des précurseurs des sulfates dans l'atmosphère. Elles correspondent dans le modèle à 1.7×10^9 kg S/an.

3.2.2 Analyse de la représentativité des émissions

3.2.2.1 Comparaisons aux observations

Afin d'évaluer la représentativité des émissions dans le modèle d'aérosols, les champs simulés sont comparés aux observations de l'instrument POLDER. Il est particulièrement bien adapté au suivi des sources d'aérosols car il permet l'observation au-dessus des continents (seuls les aérosols de taille submicronique sont détectés sur les continents). Seules les simulations incluant les émissions d'aérosols carbonés et de sulfates (qui constituent l'essentiel des particules submicroniques) sont présentées dans ce chapitre par cohérence avec les observations de POLDER. Les valeurs d'AOT ne sont pas calculées en ligne. Le passage des masses intégrées aux AOT à 865 nm s'est fait en fixant les valeurs du coefficient d'extinction spécifique ($\text{AOT} = Q_{\text{ext}} \times M$ où M est la masse intégrée sur la colonne, simulée par le modèle). Les constantes utilisées sont $3.5 \text{ m}^2 \times \text{g}^{-1}$ pour OC et $4.5 \text{ m}^2 \times \text{g}^{-1}$ pour BC (à 865 nm). À 550 nm, ces constantes sont d'un facteur 2 plus grandes que celles à 865 nm. Pour BC, le coefficient est du même ordre de grandeur que celui utilisé dans l'étude de [Reddy and Boucher, 2004] ($9.41 \text{ m}^2 \times \text{g}^{-1}$ à 550 nm) ; pour les OC il est plus grand d'un facteur 2 environ ($3.16 \text{ m}^2 \times \text{g}^{-1}$ à 550 nm dans l'étude précitée). Les AOT des trois composantes de l'aérosol considéré ici sont ensuite transformées en AI ($\text{AI}_{\text{pol}} = \alpha \times \text{AOT}_{865}$ où α est le coefficient d'Angström) en utilisant des coefficients d'Angström constants. Ils sont fixés à 1.5 pour les OC, 1.5 pour les BC et 1.9 pour les sulfates. Ces valeurs sont fournies par la littérature [Dubovik et al., 2002; Lioussse et al., 1995; Lioussse et al., 1996]. Les champs de sulfates sont fournis pour cette étude par O. Boucher [Boucher et al., 2002].

La Figure 3.2 montre la comparaison entre l' AI_{pol} (observé) et l' AI_{imd} (simulé). En Afrique subsaharienne, on observe un signal dû aux aérosols de taille submicronique de novembre à mars. Il s'agit de la saison des feux dans cette région. Ce sont par conséquent principalement des aérosols carbonés qui sont détectés. Le signal est correctement reproduit dans le modèle bien que les valeurs d'AI soient sous-estimées. En Afrique subéquatoriale, l' AI_{pol} présente un signal important à partir de mai. Là encore ce sont les feux de biomasse liés aux pratiques agricoles qui sont à l'origine des émissions. Dans le modèle, de fortes valeurs d'AI sont simulées à partir de juin, c'est-à-dire avec un mois de décalage par rapport aux observations. Les

émissions prescrites correspondent cependant à une climatologie, qui ne prend pas en compte les variations interannuelles et qui permettrait d'expliquer le décalage observé. Les valeurs d'AI simulées sont également plus faibles que les observations.

En Amérique du Sud, on note un faible AI simulé en mai. Il devient important en juin alors que POLDER ne détecte pas d'aérosols à cette période. Cela indique un décalage en temps d'au moins deux mois entre les observations et les simulations. Dans cette région du globe, la principale source provient des feux de biomasse liés à la déforestation et aux pratiques agricoles. Or POLDER est particulièrement performant dans la détection des aérosols émis par les feux. [Goloub and Arino, 2000; Tanré et al., 2001] l'ont montré à l'aide d'études concomitantes des données POLDER et ATSR-2 (Along Track Scanning Radiometer ; il détecte les feux actifs). De plus, la Figure 3.3 nous donne une indication du cycle annuel moyen des quantités d'aérosols dans l'atmosphère en Amérique du Sud. Elle a été obtenue en moyennant toutes les valeurs d'AOT mesurées entre 1993 et 2002 à 7 stations AERONET différentes situées entre 16°S et 9°S en latitude et 68°W et 56°W en longitude. Elle nous indique que le contenu de l'atmosphère en aérosols devient significatif à partir du mois d'août. De même, l'analyse des données AERONET sur la même période aux stations Abracos Hill et Alta Floresta (Figure 3.3, ligne du bas) montre que l'AOT devient significatif à partir d'août chaque année. Le début de la saison des feux apparaît stable dans cette région. Les variations interannuelles ne peuvent donc pas expliquer le décalage d'au moins deux mois dans le début de la saison des feux de cette région.

L'Europe, l'Amérique du Nord et le Sud-Est asiatique sont des régions où se mélangent les aérosols de pollution urbaine, essentiellement des sulfates, et les aérosols carbonés. Ces zones de mélange ne fournissent pas d'indications sur les émissions de chacun des types d'aérosols car les observations spatiales ne permettent pas de distinguer entre les espèces. Les tendances générales semblent néanmoins représentées dans le modèle. On note une surestimation de l'AI simulé au-dessus de l'Europe en mai et juin par rapport aux observations. L'étude de [Boucher et al., 2002] décrit des simulations du cycle du soufre ; des mesures spécifiques de sulfates obtenues lors de campagnes ou à des sites de mesure permanents sont utilisées pour évaluer le modèle. Cette étude est particulièrement cohérente avec l'évaluation des émissions dans LMDZ-INCA car le modèle de circulation générale et le cycle du soufre sont identiques. Je me propose de me baser sur ces conclusions. Dans les régions océaniques éloignées de l'hémisphère Sud, la présence de sulfates est régie principalement par l'oxydation du DMS. Les variations saisonnières de DMS à la surface aux stations d'Amsterdam (37.83° S ; 77.50°E) et de Cape Grim (40.68°S ; 144.68°E) sont correctement représentées dans le modèle. Dans les régions océaniques, les variations saisonnières sont correctement représentées mais, dans certains cas, les valeurs de sulfates sont sous-estimées (par exemple à Fanning Island 3.92°N, 159.33°W). Les mesures de sulfates dans les régions continentales polluées sont plus nombreuses, notamment en Europe et aux Etats-Unis. Les comparaisons modèle-mesures montrent qu'en général le cycle saisonnier des sulfates y est bien représenté dans le modèle (par exemple à Warwick 42.65°N, 72.30°W ou à Montelibretti 42.10°N, 12.63°W). En revanche, les concentrations de sulfates sont sous-estimées en Europe l'hiver à certains sites (par exemple à Montelibretti).

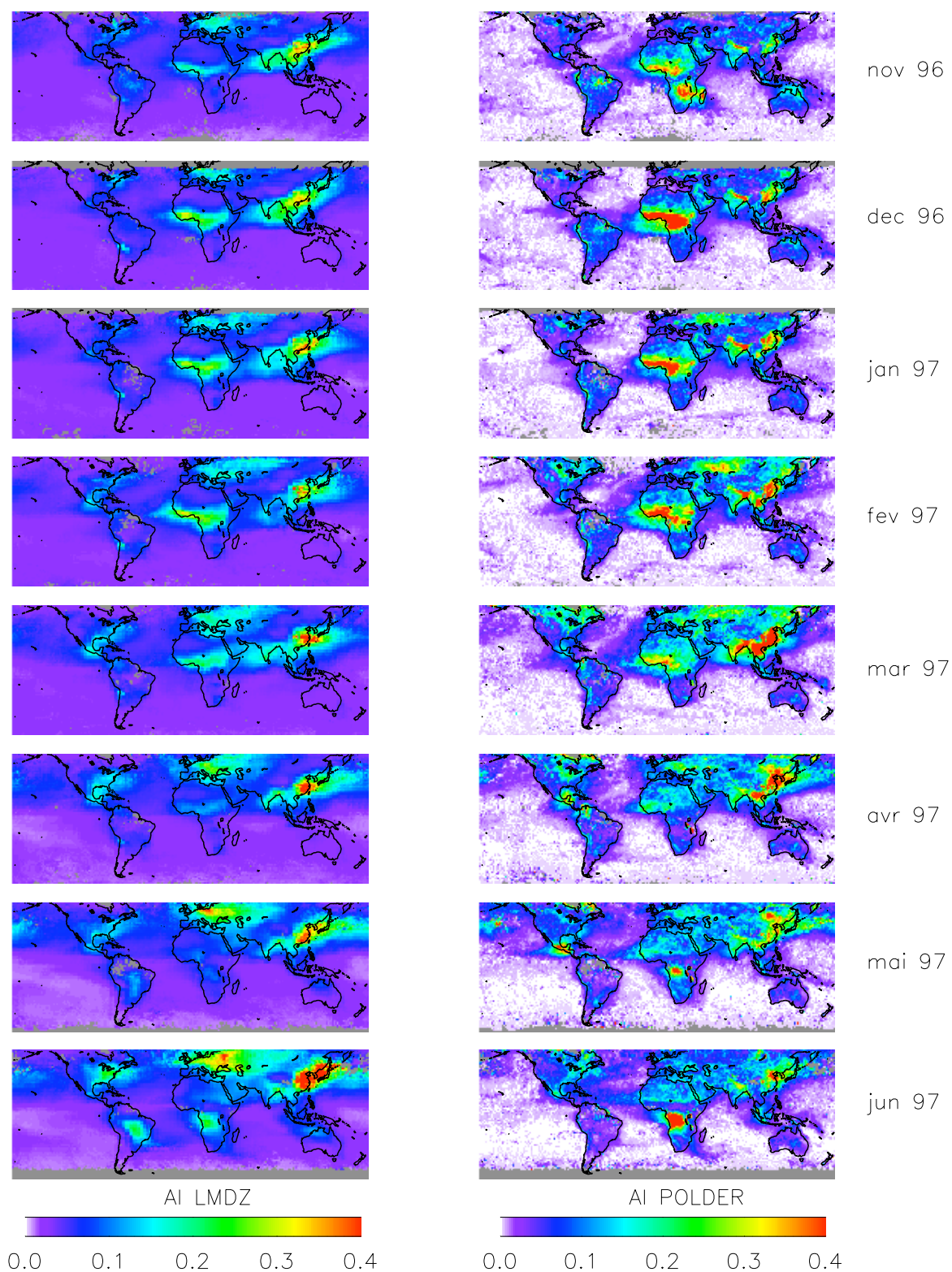


Figure 3.2: Indice Aerosol mesuré par POLDER (à droite) et simulé par le LMDZ-INCA (à gauche) entre novembre 1996 et juin 1997.

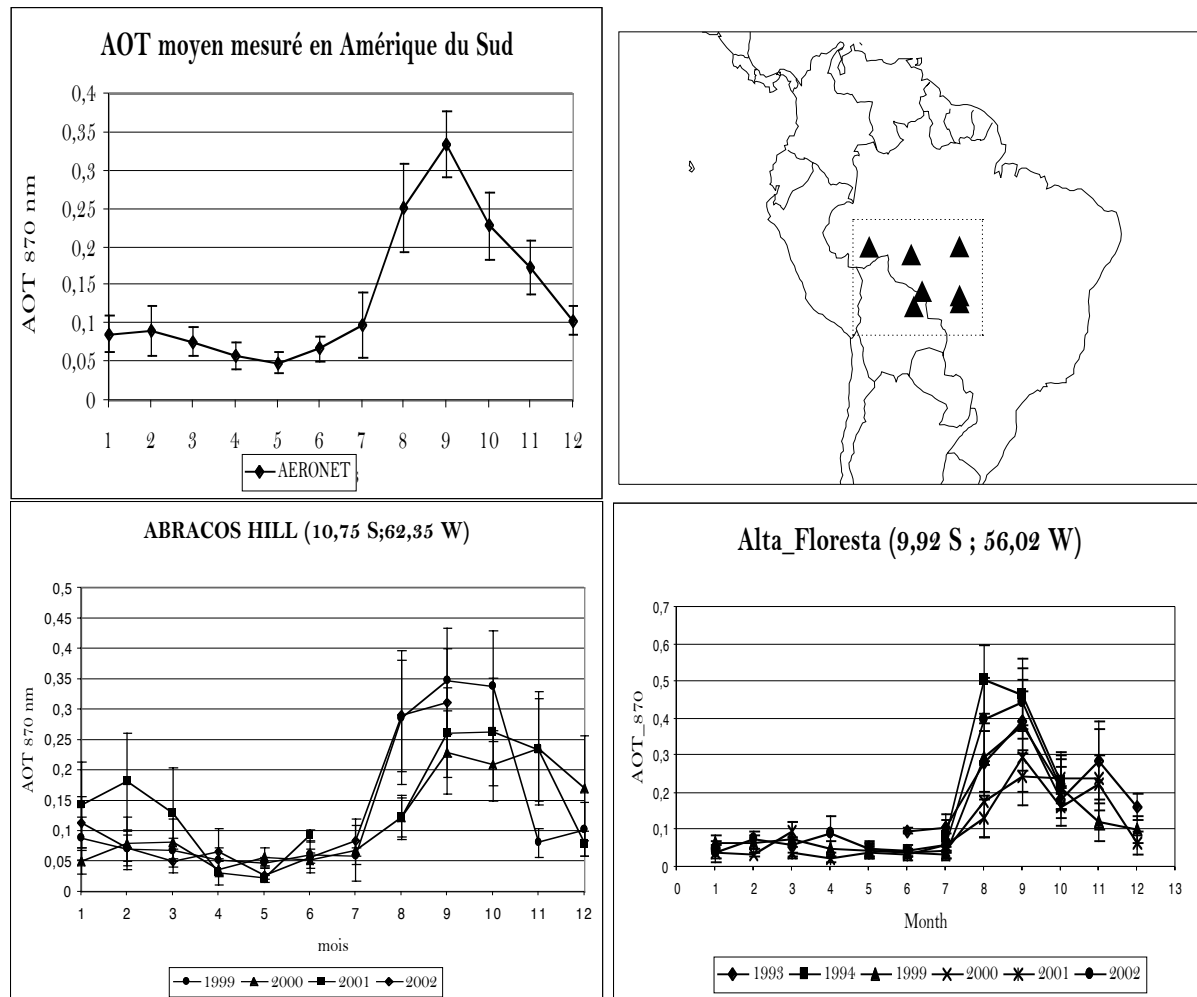


Figure 3.3. En haut : moyennes mensuelles des AOT à 870 nm (gauche) mesurées en Amérique du Sud dans 7 stations AERONET représentées par des triangles sur la figure de droite. Chaque point correspond à la moyenne de toutes les données disponibles entre 1993 et 2002 aux sept stations choisies. Aucune mesure n'est disponible à ces stations pour 1996 et 1997. En bas : Moyennes mensuelles mesurées par AERONET chaque année à Abracos Hill (gauche) et Alta Floresta (droite). Les barres d'erreur correspondent à l'écart-type.

3.2.2.2 Conclusions

Les observations spatiales ou par photomètre de l'épaisseur optique des aérosols ne permettent pas de quantifier directement les sources d'aérosols. Cependant, les comparaisons ont permis de fournir des indications pertinentes quant à la représentation des variations saisonnières.

Les émissions de poussières désertiques n'ont pas été traitées car POLDER ne détecte pas les particules du mode grossier au-dessus des continents. De même, le cas des sels marins n'a pas été analysé car il est difficile d'isoler le signal correspondant à ces particules dans les observations. Cependant, dans ces deux cas, la temporalité des émissions est directement fixée par les vents qui sont fournis par les ré-analyses (toutes les 6h) du centre européen (CEPMMT). Nous supposons donc ici qu'elle est correcte.

Dans le cas des sulfates, les comparaisons avec des mesures in-situ menées dans l'étude de [Boucher et al., 2002] montrent que, de manière générale, les variations saisonnières sont correctement représentées.

Dans les régions qui sont essentiellement soumises à un régime d'aérosols carbonés issus des feux de biomasse, les comparaisons aux observations POLDER ont permis de montrer que le cycle saisonnier simulé n'est pas en phase avec celui qui est observé. Ce désaccord rend la mise en place de l'assimilation des données plus difficile. En effet, il serait possible de conserver le modèle tel qu'il est et de corriger les variations saisonnières par l'assimilation. Dans ce cas, il faudrait fournir au système d'assimilation une caractérisation des erreurs liées aux émissions par les feux (par exemple pour accorder un poids nul au modèle lorsque la distribution spatiale ou temporelle est mal représentée). Ceci signifie qu'il faudrait fournir une information sur les erreurs qui varie dans le temps et dans l'espace. Une voie d'application serait de fournir au système d'assimilation la position des feux détectés par satellites pour caractériser les différences. C'est une solution difficile à appliquer. L'approche la plus simple est de corriger les inventaires d'émissions avant d'utiliser le modèle pour l'assimilation. J'ai ainsi été amenée à développer une méthode qui permet de corriger les désaccords observés. L'étude correspondante est présentée dans la suite de ce chapitre.

3.3 Émissions par les feux de biomasse : correction des inventaires par les observations spatiales

Les parties 3.3 et 3.4 reprennent l'article [Generoso et al., 2003] publié dans la revue *Atmospheric Chemistry and Physics* et présenté en annexe B de ce manuscrit.

3.3.1 Présentation de la méthode

L'hypothèse de base de la méthode est que les estimations d'émissions de l'inventaire d'origine sont correctes mais, que leurs distributions spatiales et temporelles peuvent être corrigées en utilisant les observations de feux actifs par satellites. Les estimations annuelles proviennent ainsi de l'étude de [Liousse et al., 1996]. J'ai utilisé le travail de [Lavoué et al., 2000] pour compléter les émissions aux latitudes boréales et tempérées.

La première étape a consisté à diviser le globe en larges régions grossièrement homogènes en termes de végétation et de saison des feux. Elles ont été choisies d'après les cartes de végétation fournies par l'observation de l'instrument spatial MODIS (<http://modis-land.gsfc.nasa.gov/>). Les régions utilisées sont présentées sur la Figure 3.4. Les boîtes en rouge correspondent aux régions pour lesquelles les estimations d'émissions proviennent de l'étude de [Liousse et al., 1996] ; les boîtes bleues de l'étude de [Lavoué et al., 2000]. Pour chaque boîte, la quantité annuelle d'aérosols carbonés émis est calculée ; les estimations de BC et OC sont traitées séparément. Dans le cas des boîtes bleues, les estimations d'émissions sont obtenues à partir de données moyennes sur la période 1960-1997 (surfaces brûlées, biomasse consumée) fournies par l'étude de [Lavoué et al., 2000].

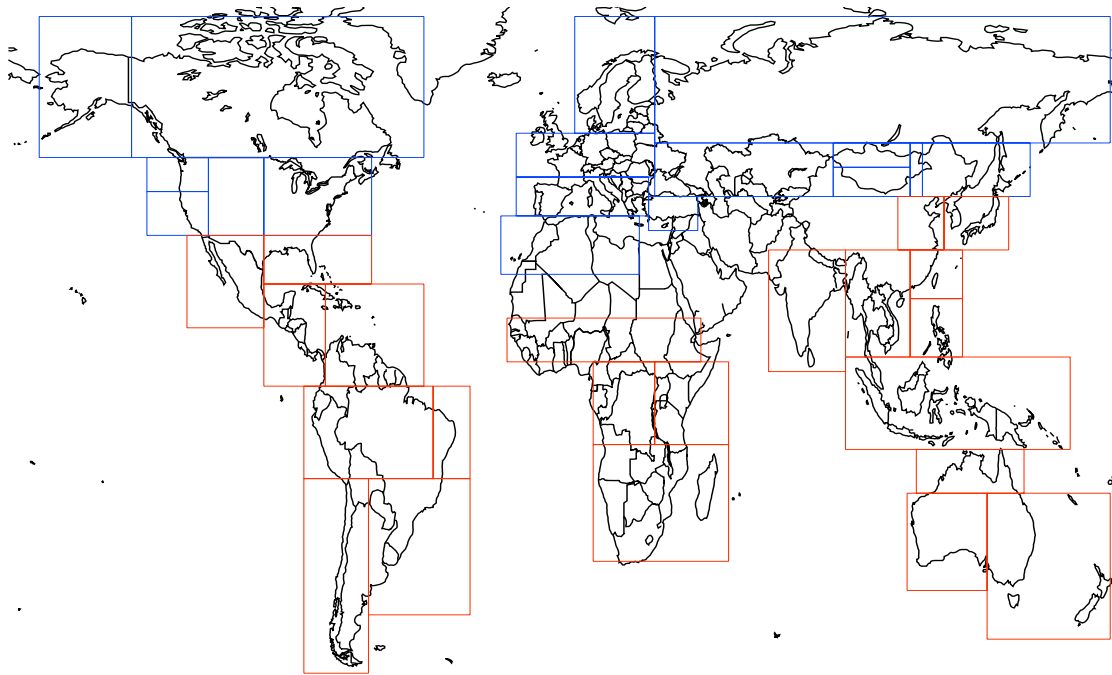


Figure 3.4 : Régions utilisées dans la méthode développée pour corriger la distribution spatiale et temporelle des inventaires climatologiques d'origine.

Dans chaque boîte, le nombre total de feux détectés par l'instrument spatial ATSR-2 (Along Track Scanning Radiometer-2) est également calculé. L'algorithme de détection de cet instrument repose sur un principe simple de seuil en température (317 K dans le canal à $3.7 \mu\text{m}$) sur les observations nocturnes [Arino and Melinotte, 1995]. Le produit ATSR est bien adapté à cette étude car sa résolution spatiale est inférieure à un pixel de $1 \times 1 \text{ km}^2$, ce qui permet la détection des feux de faible ampleur. De plus, la plateforme spatiale qui porte l'instrument n'a pas subi de décalage de son orbite, ce qui rend possible les études de variabilités inter-annuelles. En revanche, des problèmes connus existent avec cet instrument. Nous en discuterons dans la partie 3.3.2.

J'ai appliqué des corrections aux données ATSR. Tout d'abord, le nombre total de feux est calculé sur la période [janvier 1997-mai 1997] $\cup$ [juin 1998-décembre 2001]. L'année entre juin 1997 et mai 1998 a été ôtée car un événement El Niño de grande ampleur a entraîné une activité anormale des feux pendant cette période. De plus, le principe de mesure d'ATSR permet de détecter les feux qui couvrent une toute petite partie du pixel, à tel point que les torchères liés à l'activité pétrolière sont observées. Or ils ne doivent pas intervenir comme des feux de végétation dans notre étude. Les feux qui sont détectés à la même position (au sein d'un rayon de 3 km) pendant plusieurs mois (au moins 7) sont donc retirés des données. J'ai également appliqué un seuil sur le nombre de feux détectés pour que l'on ne considère que les zones d'activité significative et non les zones où des feux peuvent se produire de manière occasionnelle. J'ai choisi ce seuil en procédant comme suit :

- j'ai regroupé les feux ATSR détectés sur l'ensemble de la période d'observations (1997 à 2001) dans une grille de $1^\circ \times 1^\circ$
- j'ai fait varier le seuil de la valeur 1 à la valeur 9 (seules les boîtes ayant 9 feux ou plus sont conservées).
- j'ai constaté qu'avec un seuil de 3, je retire des feux qui se produisent dans des régions où je sais qu'il n'y a pas de feux (par exemple, le Nord-est des E.U. ou le

Nord-Ouest de la Russie et le Nord de l'Europe). En revanche avec un seuil égal à 6, je commence à retirer des feux des zones d'activité majeure (par exemple, le sud-est des E.U., le Nord de l'Amérique latine). Le seuil doit donc être compris entre les valeurs 3 et 6. J'ai choisi un seuil égal à 4.

Enfin, la présence de nuages empêche la détection des feux. J'ai attribué un poids qui dépend de la couverture nuageuse à chaque feu détecté pour en tenir compte. Ce poids s'écrit sous la forme $(1-C)^{-1}$ où C est le pourcentage de couverture nuageuse fourni par la climatologie mensuelle de [New et al., 1999].

Le rapport entre les quantités émises dans l'année (Q) et le nombre de feux détectés dans l'année (obtenu après avoir appliqué toutes les corrections sur les données) (N) est ensuite calculé pour chaque boîte. Cette Constante d'Emission (EC) est une estimation statistique de la masse émise par feu détecté. Elle varie pour chaque boîte, mais est supposée constante en fonction du temps à l'intérieur d'une boîte donnée.

En appliquant EC à la distribution mensuelle des feux détectés par ATSR, à la résolution choisie, on obtient des estimations d'émissions pour tous les mois d'observation (de juillet 1996 à janvier 2002 au moment de l'étude). Pour cette étude, la résolution a été choisie en fonction de celle du modèle LMDz-INCA (3.75×2.5 degrés en longitude et latitude respectivement) bien que la même procédure puisse s'appliquer à des résolutions plus fines. De manière à fournir des cartes d'émission pour les années précédant le lancement d'ATSR, j'ai créé un inventaire « climatologique ». Pour cela, la constante EC est appliquée à une distribution moyenne des feux détectés un mois donné.

3.3.2 Validation de la méthode

La méthode décrite ci-dessus permet de corriger simplement les variations spatiales et temporelles d'inventaires climatologiques existants par l'observation des satellites. Elle repose cependant sur des hypothèses fortes qu'il est indispensable de vérifier. En particulier, la variabilité des inventaires repose désormais sur la détection nocturne de l'instrument ATSR. L'observation de nuit n'a pas d'influence sur les émissions moyennes d'une région car le calcul de la constante EC en tient compte implicitement. En revanche, si le rapport entre le nombre de feux de jour et de nuit varie significativement au sein d'une région, pendant l'année ou entre les différents pixels, alors la méthode développée ne sera pas valide. La question qui se pose ici est donc de savoir si la détection nocturne peut introduire un biais dans les corrections apportées.

3.3.2.1 Validation de la distribution temporelle

Pour évaluer la représentativité de la distribution temporelle d'ATSR, je l'ai comparé à d'autres instruments pour lesquels l'observation des feux est journalière. J'ai utilisé pour cela les produits de feux actifs des instruments AVHRR (World Fire Web du Joint Research Center, institut de la Commission Européenne, disponible via le site internet <http://www.gvm.jrc.it/tem/wfw/wfw.htm>) et TRMM pour lequel deux produits sont disponibles (développé d'une part par [Ji and Stocker, 2002] et d'autre part par [Giglio et al., 2003]). Pour ces deux instruments, le principe de détection est similaire à celui d'ATSR, mais il s'agit de produits jour+nuits. J'ai également utilisé les deux produits de surfaces brûlées récemment développés, GBA2000 [Grégoire et al., 2003] et GLOBSCAR [Simon et al., 2003]. Le principe de détection est totalement indépendant de celui de la détection des feux actifs. Il repose sur deux principes physiques. D'une part, la réflectance d'une surface brûlée est beaucoup plus

faible dans le proche infra-rouge que celle de tout autre surface. D'autre part, la température au-dessus d'une surface brûlée augmente considérablement pendant la journée. Ceci s'explique en raison de l'absorption du rayonnement solaire par ces surfaces noires et de l'absence d'évapotranspiration qui transfère normalement de l'énergie à l'atmosphère sous forme de chaleur latente. La détection repose donc sur une combinaison des mesures de réflectance (canal solaire) et de température (canal infra-rouge). Tous les produits choisis sont disponibles pour l'année 2000. Pour chacune des régions, j'ai tracé le nombre de feux détectés pour ATSR, TRMM et AVHRR et le nombre de surfaces brûlées détectées pour GBA2000 et GLOBSCAR en fonction du temps pour 9 régions (Figure 3.5¹). Notons que le nombre de feux n'est pas homogène au nombre de surfaces brûlées. Cependant les courbes tracées sont normalisées chacune par rapport au nombre total d'occurrences (par région et par année). Ce sont donc les distributions temporelles relatives qui nous intéressent.

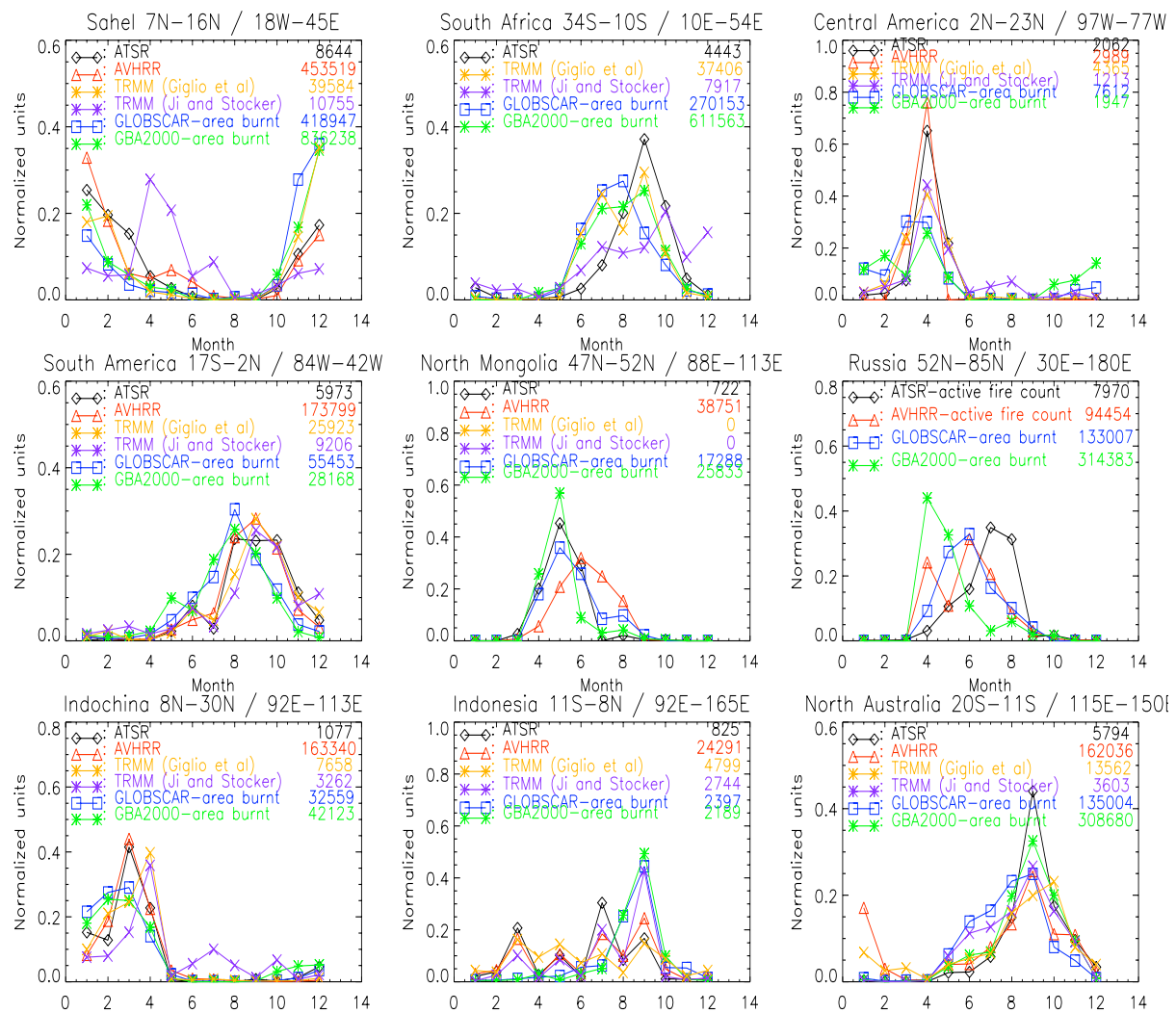


Figure 3.5: Comparaison de 6 produits globaux issus de l'observation spatiale des feux pour 9 régions sélectionnées. Le nombre de feux pour ATSR, TRMM, AVHRR et le nombre de surfaces brûlées (en unités arbitraires) sont tracés en fonction du temps pour l'année 2000. Le nombre indiqué en face du nom du produit correspond au nombre total d'occurrence détectées pendant l'année dans la région.

¹ La Figure 3.5 a été modifiée par rapport à la figure 3 de l'article (Generoso et al, 2003) où seul un des deux produits TRMM a été utilisé. Notons que la référence du produit citée alors (Giglio et al, 2003) ne se réfère pas au produit effectivement utilisé (Ji and Stocker, 2002). Nous pouvons nous référer au commentaire de (Giglio and Kendall, 2004).

De manière générale, on note un bon accord (à l'échelle du mois) entre les différentes données, y compris entre les deux grands types de produits (feux actifs/surfaces brûlées). Ces résultats se vérifient en particulier au Sahel (excepté pour le produit TRMM de [Ji and Stocker, 2002]), en Amérique du Sud et Centrale, en Mongolie, dans la Péninsule Indochinoise ou en Australie (excepté pour GLOBSCAR). Certaines régions présentent des différences significatives entre les produits. Parfois, le nombre de surfaces brûlées détectées présente un maximum qui est en avance par rapport aux feux actifs. Ceci est particulièrement visible en Afrique subéquatoriale (« Afrique du Sud » sur la figure). La restriction due à l'observation de nuit ne semble pas être significative et ne peut pas expliquer à elle seule les différences observées. L'Indonésie est également une région où l'on note de forts désaccords. L'observation des surfaces brûlées permet d'y distinguer nettement une saison des feux alors que l'observation des feux actifs fournit un signal sans cycle saisonnier net. Là encore, ces différences ne peuvent pas s'expliquer par la détection de nuit d'ATSR car les trois autres produits de feux actifs présentent les mêmes fluctuations temporelles

3.3.2.2 Validation de la distribution spatiale

La Figure 3.6 présente trois exemples de correction spatiale apportée par la méthode développée. Les trois régions considérées sont parmi les plus importantes en termes d'activité de feux de biomasse. Il s'agit de l'Amérique du Sud, de l'Afrique et de l'Australie. Pour chacune de ces régions, la figure présente les estimations de l'inventaire d'origine (climatologie), de l'inventaire corrigé par les données ATSR pour les années 1998 et 2000 ainsi qu'un indicateur des surfaces brûlées mesuré par satellite (moyenne des produits GBA2000 et GLOBSCAR) en 2000.

En Amérique du Sud, selon l'inventaire climatologique, les maxima d'émissions sont situés en Colombie et en Equateur. En revanche, les inventaires corrigés pour 1998 et 2000 les situent au Venezuela, c'est-à-dire décalés vers le Nord-Est par rapport à l'inventaire d'origine. Or la distribution spatiale des inventaires corrigés pour 2000 – donc des produits ATSR- est cohérente avec celle des surfaces brûlées. Comme leur technique de détection est indépendante des feux actifs, cela fournit une indication forte de l'impact positif des corrections spatiales appliquées. Les exemples de l'Afrique et de l'Australie conduisent aux mêmes conclusions. Ces déplacements indiquent que les localisations spatiales des feux au sein d'une région sont également soumises aux variabilités inter-annuelles et qu'il est par conséquent important de les représenter correctement dans les modèles.

Notons que les corrections spatiales se font à l'échelle des grandes régions sélectionnées, ce qui permet le déplacement des maxima d'émissions au sein de nos boîtes. C'est une des spécificités de ce travail par rapport à des méthodes dont le principe est similaire [Schultz, 2002; Duncan et al., 2003] mais qui sont appliquées sur des grilles régulières de résolution $1^\circ \times 1^\circ$. Si la redistribution des quantités émises selon les inventaires se fait à l'intérieur de régions dont la dimension est faible devant la taille caractéristique des régions de feux alors les corrections spatiales éventuellement appliquées ne seront pas significatives.

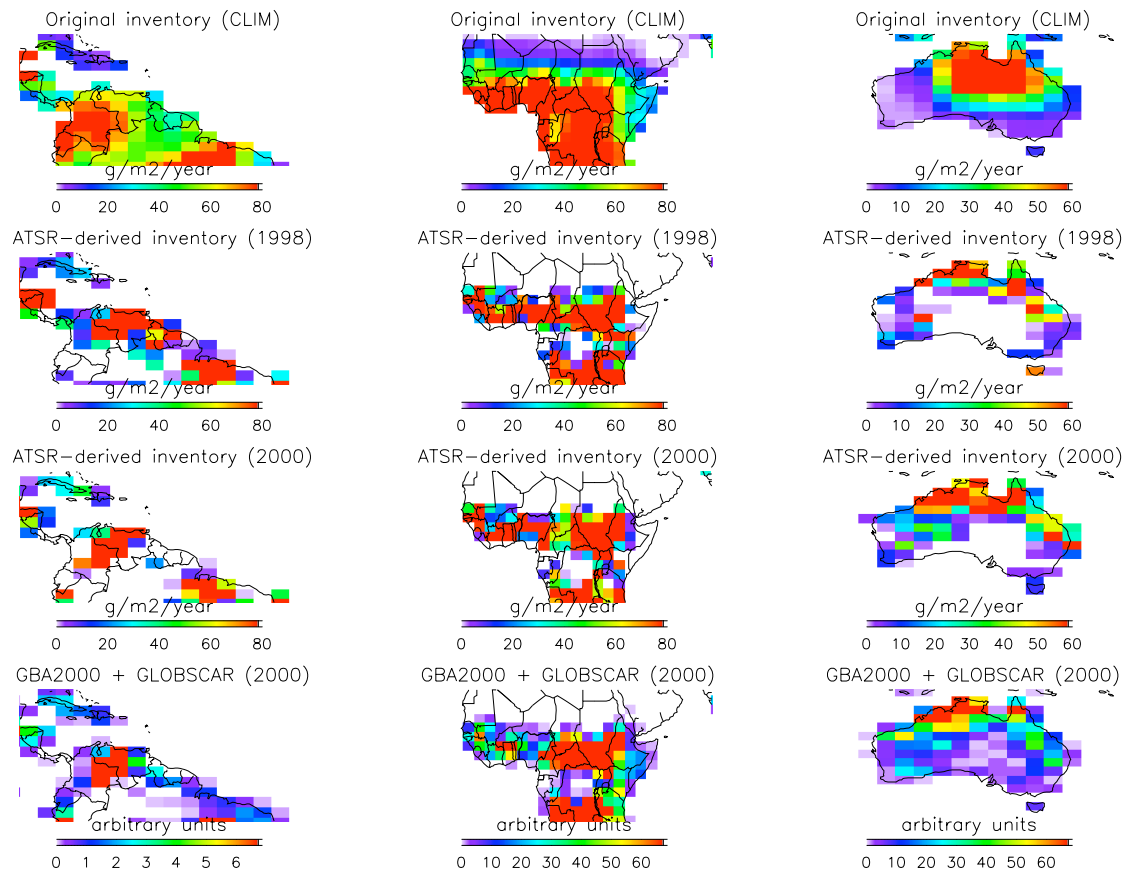


Figure 3.6 : Différents indicateurs de l'activité des feux en Amérique Centrale et du Sud (colonne de gauche), en Afrique (colonne du milieu) et en Australie (colonne de droite). Les émissions d'aérosols carbonés sont présentées selon l'inventaire d'origine (1^{re} ligne), selon les inventaires corrigés par les données ATSR pour 1998 (2^e ligne) et 2000 (3^e ligne). La dernière ligne correspond aux estimations de surfaces brûlées (moyenne des produits GBA2000 et GLOBSCAR) pour l'année 2000.

3.3.2.3 Les sources d'incertitude

Des sources d'incertitudes liées principalement à l'observation d'ATSR existent. D'une part, la couverture nuageuse perturbe la détection des feux à la surface. Les données ATSR ont été corrigées dans ce sens. Cependant, les données climatologiques de couverture nuageuse utilisée ne reflètent pas forcément les variations inter-annuelles. En outre, elles sont basées sur une observation journalière qui ne reflète pas forcément les conditions de nuit. De plus, si la couverture nuageuse est très importante, la correction devient moins précise à cause de l'échantillonnage insuffisant.

Un autre problème potentiel résulte de la couverture du satellite qui augmente avec la latitude (un point à haute latitude est sondé plus fréquemment qu'à basse latitude), ce qui accroît la probabilité de détection d'un feu. Cependant, l'extension en latitude des régions est suffisamment faible pour que la fréquence de passage du satellite soit la même pour tous les points d'une même région. C'est ainsi pris en compte implicitement par la méthode.

De plus, la précision de géo-localisation de l'instrument ATSR a été affectée de manière significative au cours de l'année 2001, ce qui a pu entraîner des erreurs de positionnement des feux détectés. L'erreur peut atteindre 40 km, ce qui est faible par

rapport à la taille des régions utilisées et aux tailles caractéristiques des régions de feux de biomasse. Par conséquent, ce problème ne devrait pas avoir de conséquences importantes sur les résultats. Cependant, ces imprécisions pourraient affecter l'algorithme d'identification des torchères car il est basé sur la présence d'un signal persistant à l'intérieur d'un rayon de 3 km.

Enfin, l'hypothèse a été faite qu'à l'intérieur de chaque région utilisée, l'efficacité d'émissions de chaque feu (EC) est constante. C'est une hypothèse forte car, pour un type de végétation donné, les quantités émises lors des feux dépendent de plusieurs paramètres dont l'humidité du sol, l'état de la végétation ou encore le passé du sol en termes de feu, qui varient d'une saison à l'autre.

3.4 Présentation des résultats

Le modèle LMDz-INCA a été contraint successivement avec les inventaires d'origine et corrigés. Les AOT obtenues à partir des simulations des masses d'aérosols (et des coefficients d'extinction spécifique du paragraphe 3.2.2.1) sont comparées aux mesures des photomètres du réseau AERONET. L'objectif est d'étudier l'impact de la correction apportée à la représentation du cycle saisonnier des feux. D'autre part, les observations de l'instrument TOMS durant un événement exceptionnel de feux sont utilisées pour juger de la prise en compte des variations inter-annuelles par la méthode développée.

3.4.1 Le cycle saisonnier

Pour évaluer l'apport de la correction apportée par les données des satellites, six stations AERONET ont été choisies en Amérique du Sud, en Afrique subéquatoriale et subsaharienne et dans le Nord de l'Australie. À l'exception d'Ilorin, proche du Sahara, elles sont toutes influencées principalement par les aérosols émis par les feux de biomasse. L'autre critère de sélection a été la longueur des séries temporelles disponibles. [Chin *et al.*, 2002] ont utilisé ce type de comparaisons pour évaluer les AOT simulées par le modèle GOCART contraint, pour les feux, par les émissions développées par [Duncan *et al.*, 2003]. Leur étude porte sur l'analyse de toutes les composantes de l'aérosol. C'est pourquoi 20 sites de mesures AERONET sont utilisés. Cinq de ces sites sont sous influence principale des feux. Dans leur étude, seul le cycle saisonnier moyenné sur plusieurs années est analysé. Cependant, la variabilité spatiale et temporelle spécifique des feux nécessite une analyse année par année. C'est pourquoi je m'intéresse ici à la comparaison des moyennes mensuelles année par année.

La Figure 3.7 présente les moyennes mensuelles d'AOT à 870 nm mesurées dans les différentes stations AERONET (en bleu), déduites des simulations du modèle contraint avec les inventaires d'origine (en vert) et corrigés (en rouge). Deux types d'information sont contenus dans ces graphes. D'une part, l'information sur le phasage de la saison des feux dans l'année est donnée par le décalage entre les courbes des simulations (rouges et vertes) et celles des mesures (bleu). D'autre part, l'information sur la quantité d'aérosols présents dans l'atmosphère est donnée par l'amplitude des courbes. Aucune amélioration n'est attendue sur l'intégrale des courbes car, par construction même de la méthode, les estimations climatologiques sont conservées et seule leur répartition spatiale et temporelle est modifiée en fonction des variations interannuelles.

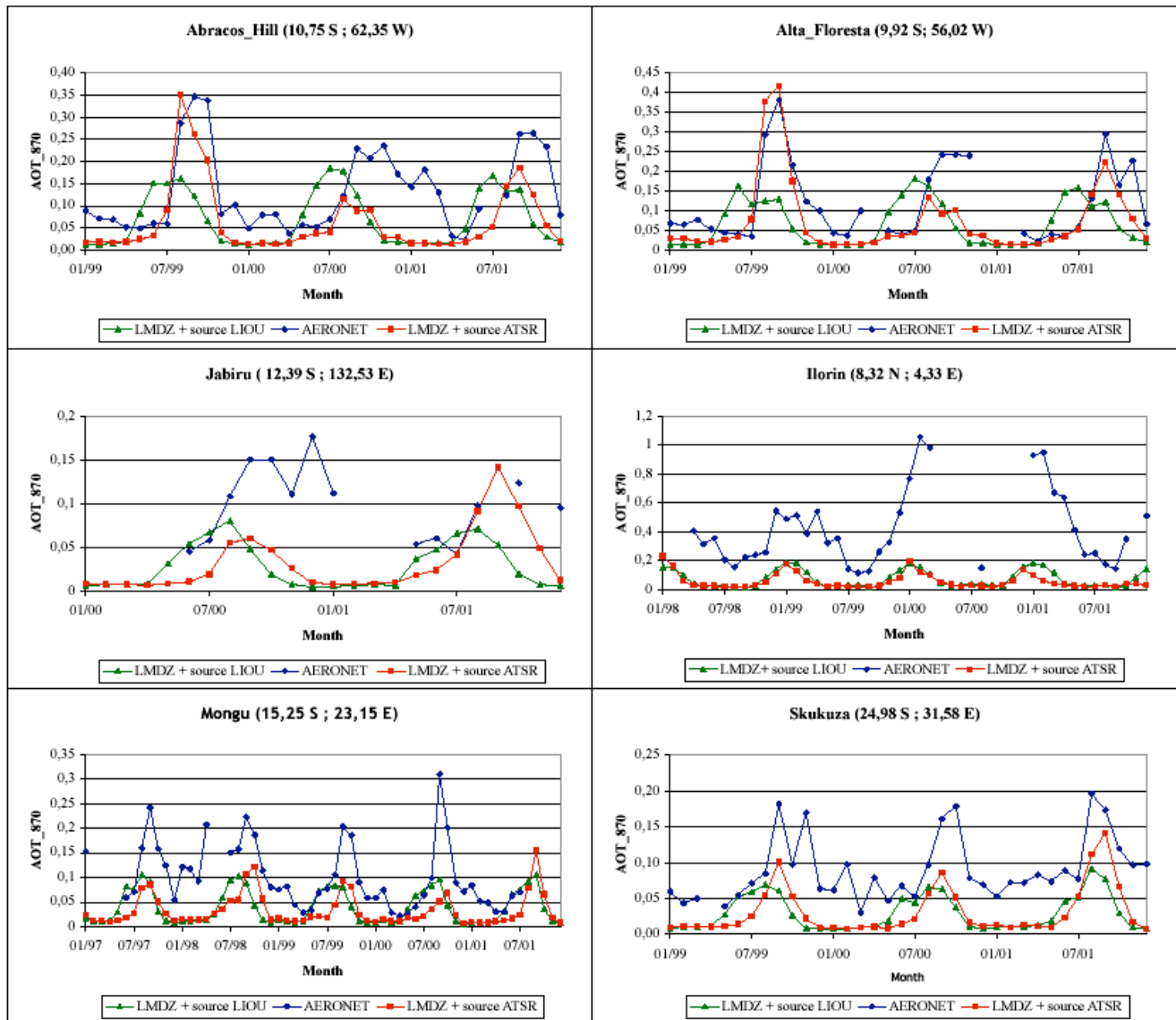


Figure 3.7 : Moyennes mensuelles d'AOT à 870 nm mesurées par AERONET (en bleu), simulées par LMDz-INCA avec l'inventaire d'origine (en vert) et corrigé (en rouge) pour 6 sites influencés principalement par les feux de biomasse. Deux sites sont situés en Amérique du Sud (Abracos Hill et Alta Floresta), un en Australie (Jabiru), un en Afrique subsaharienne (Ilorin) et deux en Afrique subéquatoriale (Mongu et Skukuza).

En Amérique du Sud, les stations d'Abracos Hill (10°S, 62°W) et Alta Floresta (9°S, 56°W) ont été choisies. Les données AERONET entre 1999 et 2001 montrent l'impact des feux de biomasse sur les quantités d'aérosols entre août et novembre avec un maximum généralement en septembre. La correction apportée par les mesures des satellites permet de décaler la période de forte concentration en aérosols de typiquement deux mois. Ces courbes montrent ainsi clairement les améliorations apportées dans cette région. Les désaccords restent importants entre les contenus en aérosols simulés et mesurés, notamment en fin de saison des feux. Les origines peuvent être diverses (une sous-estimation des émissions bien sûr, mais également les coefficients constants utilisés pour convertir les masses simulées en AOT). Par ailleurs, le cycle des AOT mesurées en 2000 est manifestement différent de celui des autres années. Il n'est pas reproduit par les simulations. Nous pourrions penser que

c'est le fait de l'instrument ATSR qui n'aurait pas détecté de feux en fin de cette année. Cependant, aucun des produits satellites analysés dans la partie 3.3.2.1 ne présente une quantité significative d'aérosols à cette période. Par conséquent, le choix d'un autre produit spatial n'aurait pas permis de reproduire le signal observé. La cause de ce signal n'est pas identifiée.

Jabiru (12°S, 132°E) est le seul site dans le Nord de l'Australie à posséder suffisamment de mesures pour fournir des indications sur la saison des feux. Bien que les deux années de mesures ne soient pas complètes, les courbes indiquent que les maxima d'AOT se situent en Septembre et Octobre. De plus, l'analyse des différents produits de feux dérivés de l'observation spatiale (Figure 3.5) indiquent que dans cette région, l'activité des feux débute en mai/juin et se termine en novembre. Les maxima sont mesurés entre août et octobre. Seul le produit GLOBSCAR montre une activité plus précoce avec un maximum détecté en juin/juillet. Les cartes d'émissions corrigées permettent un meilleur accord avec la saison des feux telle que décrite par les mesures AERONET et l'observation spatiale. Après correction, on observe encore une sous-estimation des AOT obtenues à l'aide du modèle.

En Afrique, deux grandes régions de feux peuvent être isolées. La première s'étend le long du 10^e méridien avec une activité principale entre novembre et février. La seconde concerne le territoire au Sud de l'équateur. L'activité des feux y débute en juin dans le Nord-Ouest de la zone, se déplace vers l'Est pendant la saison des feux et se termine à Madagascar en novembre. La Figure 3.7 présente les résultats dans les stations d'Ilorin (8°N, 4°E), Mongu (15°S, 23°E) et Skukuza (24°S, 31°E). Les comparaisons montrent que la saison des feux est correctement représentée dans les inventaires d'origine et que l'introduction des données des satellites conserve le bon accord. Les AOT sont particulièrement sous-estimées à Ilorin qui est situé dans la région subsaharienne. [Chin *et al.*, 2002] a montré que cette station est sous influence forte des poussières désertiques du Sahara, ce qui peut expliquer une partie des désaccords.

3.4.2 La variabilité interannuelle

Le Tableau 3.2 présente les quantités d'aérosols carbonés émis selon les inventaires corrigés pour chaque année d'observation ATSR. La méthode suppose que les estimations quantitatives de l'inventaire d'origine sont exactes. Ces valeurs ne sont pas modifiées mais redistribuées selon les années en fonction des variations observées par satellite. Dans l'inventaire de [Liousse *et al.*, 1996], les émissions de POM par les feux de biomasse représentent 35.2×10^9 kg de matière par an, celles de BC 4.63×10^9 kg de carbone par an. Les estimations des inventaires corrigés se comparent à ces chiffres pour l'année 1999. En revanche, pour les années 1997 et 1998, elles sont d'un facteur 1.5 à 1.7 plus grandes que les valeurs moyennes. L'explication plausible est l'augmentation exceptionnelle du nombre de feux en Indonésie provoquée par les sécheresses liées à l'événement El Niño. Les estimations pour les années 2000 et 2001 sont plus faibles (d'un facteur 0.65 à 0.75) que les valeurs moyennes. Cette étude permet donc de classer les années en fonction des quantités émises d'aérosols carbonés. Les résultats obtenus pendant la période d'observations ATSR sont en accord avec les résultats obtenus par d'autres méthodes [Schultz, 2002; Duncan *et al.*, 2003; Van der Werf *et al.*, 2003]. Je détaillerai les comparaisons avec ces différentes méthodes dans la partie 3.5.

	BC (bleu)	BC (rouge)	TOTAL BC	OC (bleu)	OC (rouge)	TOTAL OC
1997	0.10	7.00	7.10	1.37	59.41	60.78
1998	0.41	6.09	6.50	7.55	51.64	59.19
1999	0.15	3.79	3.94	2.47	31.26	33.73
2000	0.16	3.20	3.36	2.70	26.45	29.15
2001	0.11	3.09	3.20	1.97	25.48	27.45

Tableau 3.2 : Quantités d'aérosols carbonés émis par les feux (incluant les feux de savane, de forêt et d'origine agricole) selon les inventaires corrigés par l'observation ATSR. Les émissions de BC sont en 10^6 kg de carbone par an, les émissions de OC en 10^6 kg de matière par an. BC et OC « bleu » correspondent aux émissions des boîtes bleues de la Figure 3.4 [Lavoué et al., 2000], BC et OC « rouge » à celles des boîtes rouges [Lioussse et al., 1996].

L'épisode de feux en Indonésie à l'automne 1997 a été d'un caractère exceptionnel [Nakajima et al., 1999]. Il constitue l'un des meilleurs exemples de variabilité inter-annuelle durant la période d'observations ATSR. C'est pourquoi je l'utilise pour juger la représentativité des variations inter-annuelles dans les inventaires corrigés. L'instrument TOMS [Herman et al., 1997] à bord de la plate-forme Earth-Probe a acquis des données à cette période. La Figure 3.8 montre les comparaisons entre l'indice aérosol mesuré par TOMS et les valeurs d'AOT à 865 nm obtenues à partir des simulations du LMDz-INCA. Par soucis de cohérence avec les observations, les sorties du modèle sont tracées avec une échelle de couleur dont les valeurs maximales sont comparables à celles de TOMS. Les coefficients de proportionnalité entre les deux proxies sont issus de l'étude de [Chiapello et al., 2000]. Cette étude compare les produits TOMS et POLDER au-dessus des océans. Je considère ici que le rapport entre les valeurs LMDz-INCA et TOMS est identique à celui entre POLDER et TOMS de l'étude précitée. Le type d'information restitué par le modèle est en effet cohérent avec ce qui est fourni par POLDER. Les mesures TOMS indiquent que le contenu en aérosols de l'atmosphère est très important en septembre et octobre 1997. Les conséquences de cette activité anormale n'est pas reproduite par les simulations utilisant les inventaires d'origine, ce qui est prévisible puisqu'ils sont basés sur une climatologie. En revanche, l'utilisation des inventaires corrigés permet d'obtenir un signal significatif par rapport aux années sans El Niño (par exemple octobre 1998 sur la figure).

Bien que les comparaisons quantitatives soient difficiles, la Figure 3.8 permet de fournir des indications de l'impact positif de la correction apportée. En effet, la distribution spatiale du panache d'aérosols qui résulte des émissions corrigées se comparent bien avec ce qui est observé par TOMS. De plus, [Nakajima et al., 1999] ont estimé, à partir des données AVHRR, que la région affectée par des AOT à 500 nm supérieures à 0.5 atteint les côtes Indiennes et Australiennes et couvrent une surface d'environ 2000×5000 km². De telles AOT ont été observées entre septembre et novembre 1997. Par conséquent, la distribution spatiale reproduite par le modèle semble cohérente avec les observations de cette étude. Cependant les AOT apparaissent surestimées. J'ai noté une valeur très grande du facteur statistique EC pour cette région. Une explication plausible est la couverture nuageuse intense de l'Indonésie tout au long de l'année (65% à 85%) qui rend difficile l'observation des feux. Cela pourrait expliquer qu'ATSR ne détecte pas une partie des feux. Une telle sous-estimation se traduit par une surestimation du facteur EC.

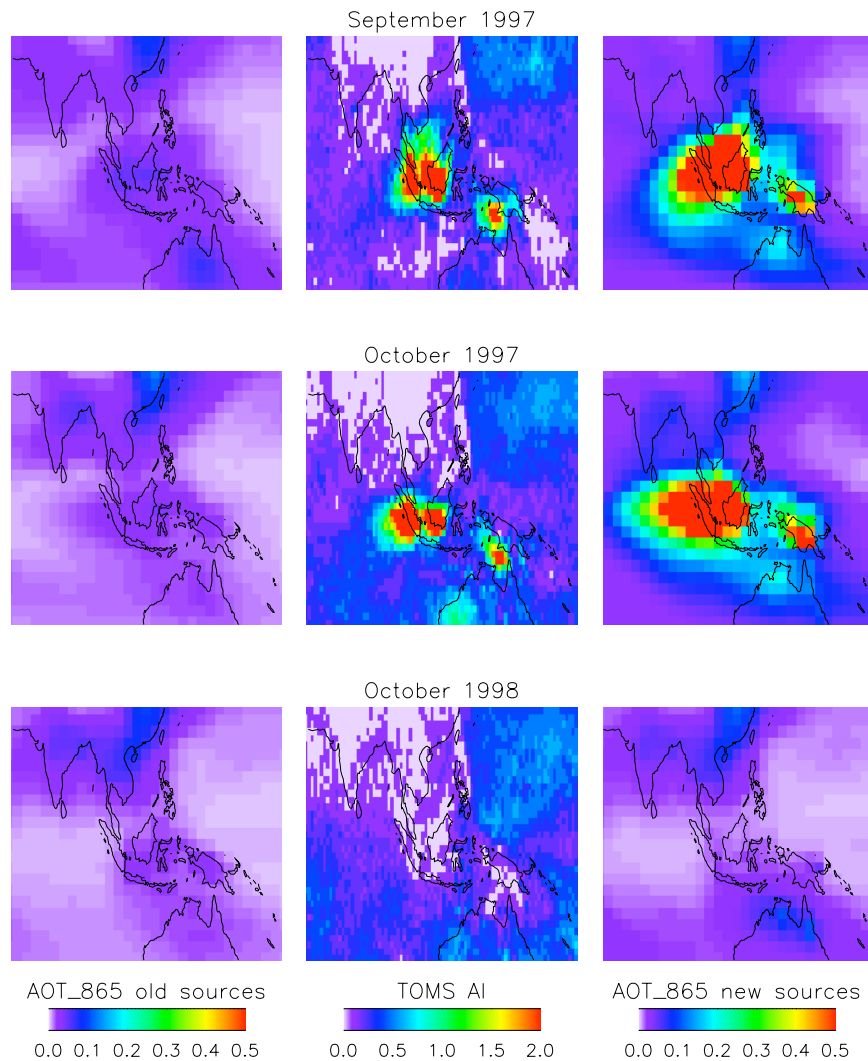


Figure 3.8 : Comparaison de l'indice aerosol TAMS (colonne du milieu) avec l'AOT à 865 nm simulé par LMDz-INCA à partir de l'inventaire d'origine (colonne de gauche) et corrigé (colonne de droite). Les sorties du modèle ont été tracées avec une échelle de couleur dont les valeurs maximales sont comparables à celles des produits TAMS. L'étude [Chiapello et al., 2000] a permis de fixer ces valeurs (cf texte).

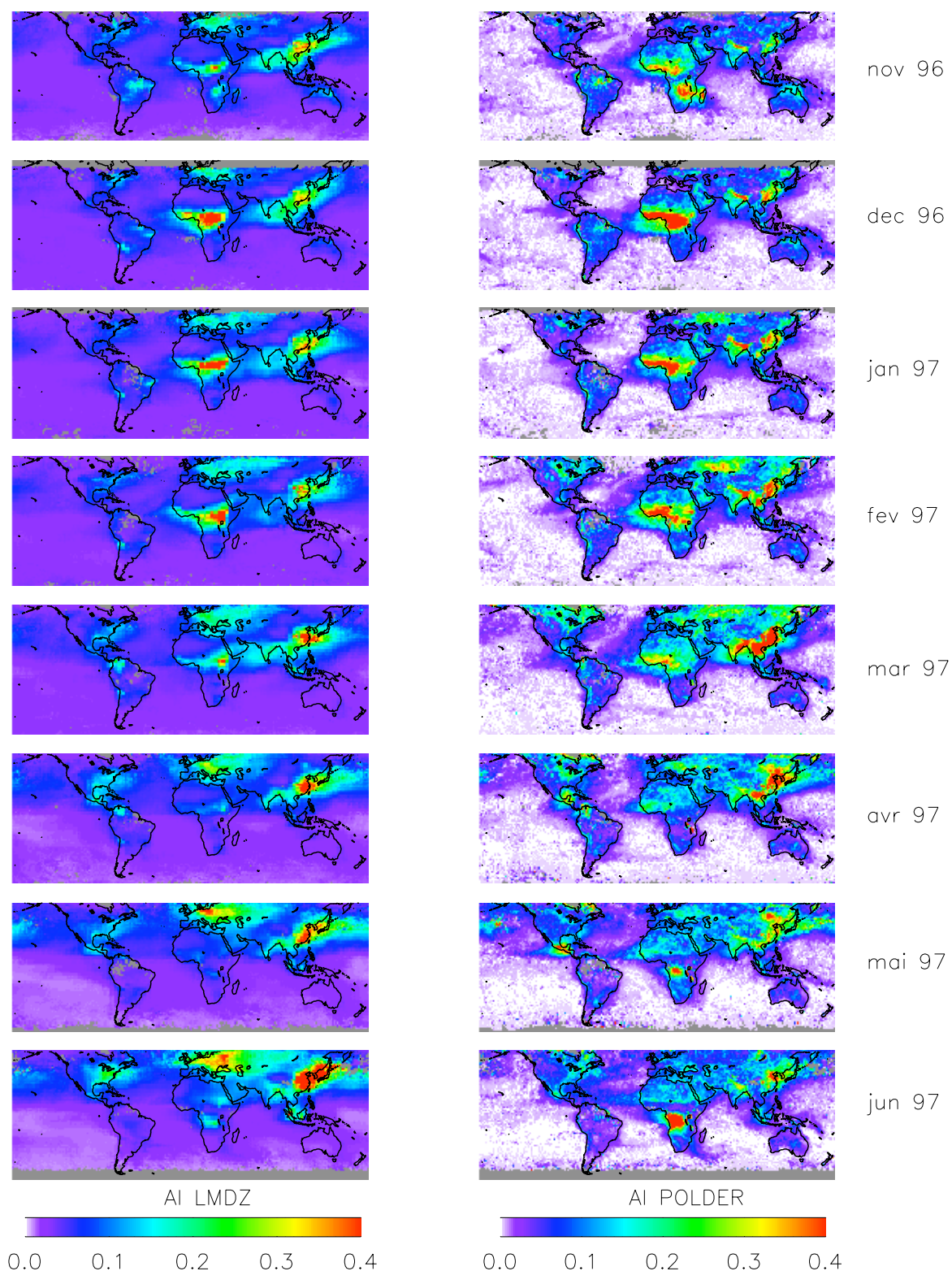


Figure 3.9 : Indice Aerosol mesuré par POLDER (à droite) et simulé par le LMDz-INCA (à gauche) entre novembre 1996 et juin 1997. Le modèle est contraint avec les émissions corrigées d'aérosols carbonés.

3.4.3 À l'échelle planétaire

Les comparaisons entre l' AI_{pol} et l' AI_{lmd} obtenu à partir des sources corrigées sont présentées sur la Figure 3.9. Ces cartes sont à mettre en parallèle avec celles présentées sur la Figure 3.2 pour lesquelles le modèle est contraint avec les sources d'origine. Les différences visibles à l'échelle globale concernent l'Amérique du Sud et l'Afrique.

En Amérique du Sud, en novembre, la fin de la saison des feux de l'année 1996 se traduit par un panache d'aérosols visible sur les cartes corrigées (très faiblement apparent sur la Figure 3.2) et en très bon accord avec les observations POLDER. En mai et juin 1997, le résultat des simulations avec les sources corrigées est en accord avec les observations ; le signal qui marquait le début de la saison des feux dans les simulations d'origine (Figure 3.2) n'est plus présent. En Afrique subsaharienne, la phase du cycle saisonnier était déjà correctement représentée dans les simulations d'origine (Figure 3.2). Cependant, on note que les valeurs d'AOT corrigées sont plus importantes, ce qui est probablement lié à une redistribution inter-annuelle des quantités émises à l'origine (rappelons que l'année 1997 considérée ici est l'une des plus importantes parmi les quatre années d'observations ATSR en termes de quantités émises, voir paragraphe 3.4.2). En Afrique subéquatoriale, on note une meilleure description de la fin de la saison des feux de l'année 1996.

3.5 Comparaison aux autres méthodes

D'autres méthodes qui utilisent les données des satellites pour estimer les émissions des feux ont été développées récemment. Elles se distinguent des inventaires climatologiques car elles permettent de tenir compte des variations intra et inter-annuelles. Je présente ici les différentes approches et compare leurs résultats à ceux de la méthode que j'ai développée.

3.5.1 Présentation des autres méthodes

Pour utiliser l'information sur la variabilité des feux contenue dans les observations par satellites, l'approche la plus simple est d'utiliser un inventaire climatologique existant et de modifier sa distribution spatiale et/ou temporelle en fonction des données des satellites. C'est l'approche que j'ai utilisée. Deux autres études utilisant le même principe ont été publiées récemment. D'une part, l'étude de [Schultz, 2002] utilise les données ATSR pour corriger un inventaire d'émissions de monoxyde de carbone. Sa méthode est appliquée sur une grille régulière de $1^\circ \times 1^\circ$, ce qui permet les redistributions temporelles, mais est insuffisant pour modifier la distribution spatiale de l'inventaire d'origine (voir Figure 3.6). D'autre part, [Duncan et al., 2003] ont couplé les observations des instruments ATSR et AVHRR et un inventaire de biomasse brûlée totale annuelle. De plus, ils ont utilisé les observations TOMS sur les vingt dernières années pour évaluer les variations inter-annuelles sur une longue période et les introduire dans les inventaires. La différence principale avec la méthode développée dans ce chapitre concerne la redistribution spatiale des émissions. La principale limitation de ce type d'approche (utilisées dans les trois méthodes décrites ci-dessus) est sa dépendance vis-à-vis des estimations des inventaires d'origine.

Pour éviter cette dépendance, une autre approche consiste à estimer la quantité de biomasse brûlée à partir des observations des satellites. C'est la méthode développée

par [Van der Werf et al., 2003] qui utilisent les données des instruments TRMM (disponibles depuis 1998 entre 38°N et 38°S [Giglio et al., 2003] et ATSR (pour les hautes latitudes). Les quantités de biomasses brûlées sont estimées à partir des surfaces brûlées. Une relation entre surface brûlée et feu actif détecté a été choisie en comparant les produits MODIS (surfaces brûlées) et TRMM (feux actifs) (la comparaison porte sur les régions où la couverture par les arbres est inférieure à 40%). La relation utilisée dépend linéairement du pourcentage d'arbres à la surface ; la surface brûlée par feu détecté décroît avec un pourcentage croissant d'arbres. Une des explications possibles qui est proposée par les auteurs est que, dans les prairies, la vitesse de propagation des feux est plus grande et ils durent moins longtemps. Ceci se traduit par une plus faible probabilité de détection de feux actifs et par conséquent une plus grande surface brûlée par feu détecté. L'autre explication proposée est que, la chute de l'indice de végétation des prairies pendant un feu peut être plus importante que dans le cas des forêts. En effet, les arbres qui contribuent majoritairement à l'indice de végétation des forêts ne sont pas forcément affectés par le feu. Enfin, à partir des estimations de biomasses brûlées, les facteurs d'émissions (g de masse émise par kg de matière sèche brûlée) d'une espèce donnée permettent d'obtenir les quantités émises pour l'espèce considérée (pour les aérosols carbonés, ce sont les facteurs de l'étude [Andreae and Merlet, 2001] qui sont utilisés). Cette méthode possède l'avantage d'être directement applicable aux émissions des autres gaz ou particules.

La troisième approche se base entièrement sur l'observation par satellite. Les quantités émises découlent directement des surfaces brûlées observées. C'est l'approche décrite par [Hoelzemann et al., 2004]. Les estimations d'émissions sont obtenues à partir d'un modèle d'émission de feux (Global Wildfire Emission Model GWEM) qui utilise les produits de surfaces brûlées en entrée. Dans le cadre de cette étude, ce sont les produits GLOBSCAR qui ont été utilisés. Cette approche est celle qui nécessite le moins d'hypothèse. Pour l'instant seules les données de l'année 2000 sont disponibles, ce qui ne permet pas encore des études interannuelles. Les résultats de cette méthode dépendent de la détection de toutes les surfaces brûlées. En effet, si des surfaces effectivement brûlées ne sont pas détectées, alors cela se traduit directement par une sous-estimation des quantités émises. Les auteurs de cette étude ont été confrontés à ce type de problèmes dans des régions majeures de feux de biomasse comme l'Amérique du Sud. Nous en discuterons au paragraphe suivant.

3.5.2 Comparaison des quantités émises

Les figures 3.10 et 3.11 présentent les estimations de POM et BC émis pour l'année 2000 selon les approches de [Hoelzemann et al., 2004; Van der Werf et al., 2003] et celle présentée dans ce chapitre. Les estimations sont indiquées pour le globe et pour les principales régions de feux (identiques à celles de la Figure 3.4).

On constate que les estimations globales annuelles des approches 1 [Generoso et al., 2003] et 3 [Van der Werf et al., 2003] sont proches (à un facteur 1.2 près pour les émissions de POM et 1.1 près pour celles de BC). Rappelons que les estimations de l'approche 1 ne sont pas intrinsèques à cette méthode mais découlent des inventaires d'origine utilisés (ici [Lioussé et al., 1996] pour les régions tropicales et subtropicales et [Lavoué et al., 2000] pour les régions tempérées et boréales). De plus, les distributions des émissions par région sont similaires pour ces deux approches. Elles utilisent toutes deux des produits de détection de feux actifs par satellite (ATSR pour l'approche 1 et TRMM pour l'approche 3) pour fixer les variations spatiales et

temporelles, ce qui explique la cohérence de la distribution spatiale entre ces deux méthodes.

En revanche, l'approche 2 [Hoelzemann *et al.*, 2004], qui utilise les produits GLOBSCAR pour les estimations de quantités émises et pour les variations spatiales et temporelles, présente des valeurs plus faibles d'émissions. Les estimations globales selon cette approche sont plus faibles de 36% par rapport à celles de l'approche 3 pour les POM et de 40% pour les BC. De même, les différences avec l'approche 1 sont de 24% pour les POM et de 45% pour les BC. Si l'on s'intéresse à la distribution régionale des estimations, on note un désaccord encore plus important pour l'Amérique du Sud. Les émissions dans cette région représentent environ 7% du total de BC et POM estimé selon l'approche 2 alors que ce pourcentage dépasse 20% pour les deux autres approches. Les auteurs pensent que cette différence majeure est liée à une sous-détection des feux par le produit GLOBSCAR dans les régions où les feux sont de faibles ampleurs spatiales (la résolution spatiale de GLOBSCAR est moins fine que celle d'ATSR ou de TRMM). Le modèle GWEM peut être utilisé avec d'autres produits de surfaces brûlées. Cela a été fait récemment avec les produits GBA2000 et a conduit à un meilleur accord avec les deux autres approches (J. Hoelzemann, communication personnelle, 2004).

En revanche, la proportion des émissions distribuées dans les zones tempérées et boréales (illustrées ici par les régions « Europe » et « Amérique du Nord ») est plus grande avec l'approche 2 qu'avec les approches 1 et 3. En effet, les émissions de POM et BC dans la zone Europe, représentent 19% et 15% du total estimé par l'approche 2, alors que ces pourcentages sont de 6% (pour les POM) et 3% (pour les BC) environ pour les approches 1 et 3. Cette différence pourrait bien sûr être due au fait que l'approche 2 sous-estime de manière importante les émissions en Amérique du Sud, donnant ainsi un poids relatif plus important aux zones boréales et tempérées. Cependant, je pense que les émissions des hautes latitudes sont probablement sous-estimées dans la méthode que j'ai développée. En effet, la contribution des feux de ces régions aux émissions globales varie entre 1% et 10%. Or les données d'origine utilisées correspondent à une moyenne des quantités émises entre 1967 et 2000 alors que dans l'approche 2, les quantités émises dérivent des observations spécifiques de l'année 2000. Si cette année a été particulièrement importante en termes de feux dans les régions de hautes latitudes, alors l'approche 1 sous-estime les émissions.

Ces comparaisons ont été réalisées dans le cadre du projet AEROCOM, dirigé par M. Schulz et S. Kinne. Une des expériences en cours est de contraindre les différents modèles participants avec les mêmes émissions pour tous les types d'aérosols. Il sera intéressant, d'un point de vue de la compréhension des processus modélisés, de comprendre les différences dans les épaisseurs optiques simulées. Les émissions que nous avons choisies pour ce projet sont celles de l'approche intermédiaire de [Van der Werf *et al.*, 2003]. Les deux autres approches permettront de fixer le domaine d'incertitudes.

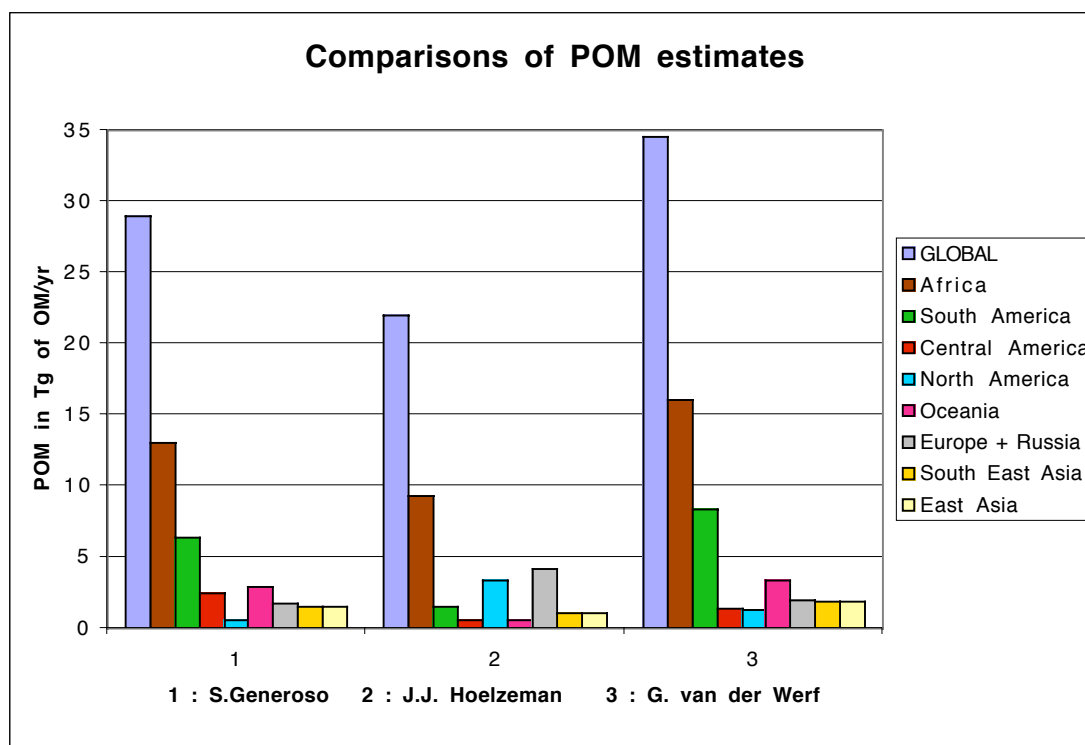


Figure 3.10 : comparaison des estimations de POM émis au cours de l'année 2000 par les différentes approches : [Generoso et al., 2003] (à gauche), [Hoelzemann et al., 2004] (au centre) et [Van der Werf et al., 2003] (à droite). Les estimations sont en Tg (10^9 kg) de matière par an.

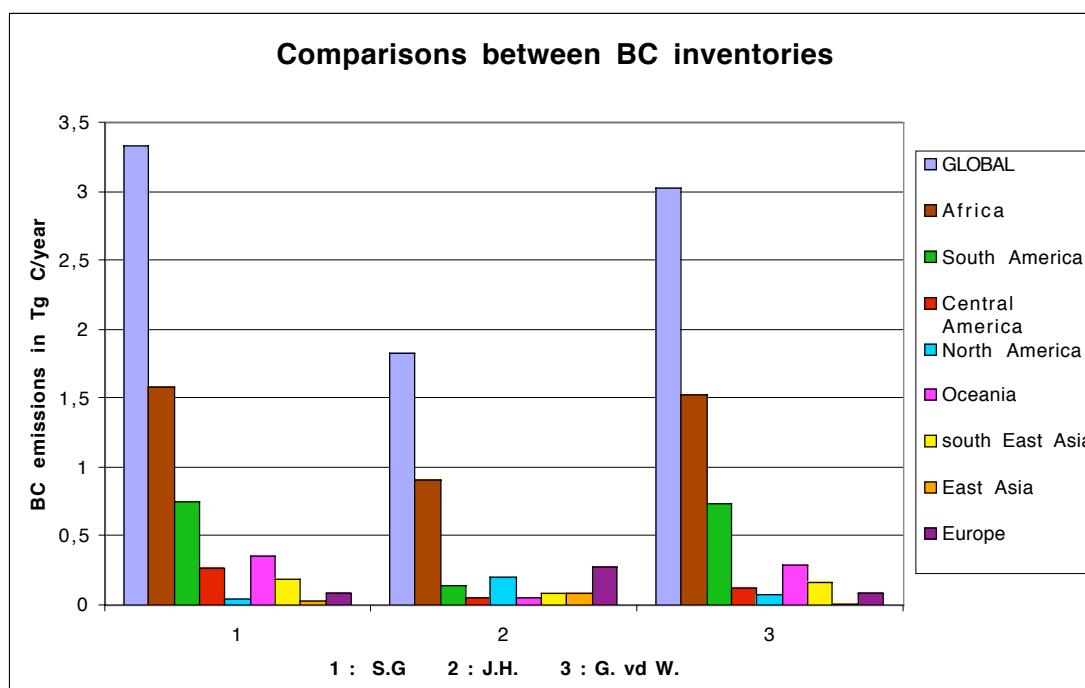


Figure 3.11 : comparaison des estimations de BC émis au cours de l'année 2000 par les différentes approches : [Generoso et al., 2003] (à gauche), [Hoelzemann et al., 2004] (au centre) et [Van der Werf et al., 2003] (à droite). Les estimations sont en Tg (10^9 kg) de carbone par an.

3.6 Vers la résolution journalière des émissions par les feux ?

L'arrivée de la détection des feux par satellites a permis d'ouvrir les perspectives d'étude à l'échelle globale en tenant compte des variations intra et interannuelles. Les applications qui en découlent concernent actuellement le développement d'inventaires mensuels. Dans le cas des feux, cette résolution n'est cependant pas satisfaisante car il s'agit de modéliser des événements dont la variabilité à l'intérieur du mois est importante. Une description journalière des distributions de feux constituerait un outil utile pour l'étude de leur impact. Or les satellites qui décrivent plusieurs orbites par jour autour de la planète ont le potentiel pour nous fournir une telle information. La question qui se pose est de savoir si cela est faisable avec les produits satellitaires dont nous disposons actuellement.

Tout d'abord, les techniques d'observation actuelles ne sont souvent pas adaptées à une étude des distributions journalières. En effet, les orbites des satellites ne couvrent pas la totalité du globe sur une journée, elles sont en général légèrement décalées d'un jour sur l'autre. La totalité de la surface du globe est en fait échantillonnée en quelques jours (cela dépend de l'instrument utilisé) après plusieurs passages du satellite au-dessus d'une même région. C'est le cas par exemple de l'instrument TRMM [Kummerow *et al.*, 1998], conçu initialement pour l'observation des précipitations. De plus, la présence de nuages augmente la proportion du territoire qui n'est pas observé. D'autre part, les algorithmes utilisés pour isoler les feux du signal reçu par le satellite sont souvent basés sur une composition des images acquises sur plusieurs jours. Par exemple dans le cas des produits GBA2000, les produits sont obtenus à partir des compositions de 10 jours d'observation [Grégoire *et al.*, 2003]. Cela n'a donc aucun sens actuellement pour ce produit de descendre à une résolution temporelle plus faible. Une étude récente s'est intéressée à cette question. Il s'agit de l'article de [Heald *et al.*, 2003] dont l'objectif a été de développer un inventaire journalier des distributions de feux à partir de l'observation de l'instrument AVHRR. L'inventaire développé a été implémenté à un modèle 3D global de manière à simuler les observations aéroportées de monoxyde de carbone durant la campagne TRACE-P (février - avril 2001). Différentes résolutions temporelles de l'inventaire ont été testées : journalière, mensuelle de 2001 et climatologique. Les résultats montrent que l'apport de la résolution mensuelle de 2001 apporte une amélioration significative de l'accord entre simulations et mesures aéroportées par rapport à l'utilisation de l'inventaire climatologique. En revanche, l'apport de la résolution journalière par rapport à la résolution mensuelle de 2001 n'est pas significatif. Les auteurs attribuent ce résultat d'une part à la moyenne spatiale et temporelle de l'influence des feux sur des masses d'air vieillissantes de la couche limite continentale. D'autre part, les incertitudes des modèles de transport limitent le gain qui pourrait être obtenu par l'utilisation d'une résolution temporelle fine. Les auteurs concluent que la résolution journalière n'est pas critique pour la modélisation globale des panaches exportés des continents vers les océans dans les régions tropicales. En revanche, cela pourrait avoir un impact sur la modélisation d'épisodes isolés importants de feux. L'ensemble de ces arguments m'amènent à penser qu'il n'est pas possible pour l'instant d'utiliser les produits satellites tels qu'ils sont fournis pour en déduire une information journalière sur la distribution des feux.

En revanche, je pense que de l'information pertinente est contenue à une échelle de temps inférieure, disons à l'échelle de dix jours. J'ai ainsi souhaité appliquer la méthode que j'ai développée à la distribution décadaire des feux détectés par ATSR.

Je n'ai apporté aucun traitement supplémentaire aux données ATSR. La Figure 3.12 présente les émissions qui en résultent pour la région Amazonie en 1998 et 2000. Il ne s'agit ici que d'un exemple à titre indicatif. Nous pouvons noter que pour l'année 1998, les émissions obtenues à la résolution de 10 jours permettent d'apporter de l'information qui semble cohérente. Cependant, le gain d'information par rapport à ce qui pourrait être apporté par une représentation par une fonction temporelle « lissée » basée sur des moyennes mensuelles n'est pas significatif. En revanche, les émissions pour l'année 2000 sont beaucoup plus bruitées. La question qui se pose est de savoir si ce signal contient de l'information qui correspond à la réalité des feux sur le terrain ou s'il reflète des problèmes de détection des feux. Il est difficile de trouver des moyens de réponse à l'échelle globale. Cet exemple permet d'illustrer le fait que descendre à une résolution temporelle plus fine est un exercice délicat. Il requiert à mon sens une expertise approfondie du produit satellite que l'on utilise de manière à appliquer des corrections aux données en fonction des spécificités de la détection de l'instrument utilisé.

L'autre point qu'il me paraît important d'étudier pour améliorer la modélisation des feux dans des modèles globaux concerne les hauteurs d'injection des particules. Pour l'instant dans le cas du LMDz-INCA, seule une information statistique qui découle de l'étude de [Lioussé *et al.*, 1996] est utilisée. Les émissions sont réparties dans les quatre premières couches du modèle (contenues dans la couche limite) suivant la répartition : 12.5%, 12.5%, 25% et 50%. Or [Lavoué, 2000] montre que les hauteurs d'injection particulières peuvent dépasser 5000m pour certains types de forêt. Nous disposons actuellement de peu de données pour dresser un inventaire « 3D » des émissions. La mission CALIPSO (qui embarquera un lidar spatial) nous permettra peut-être de connaître cette information à l'échelle globale.

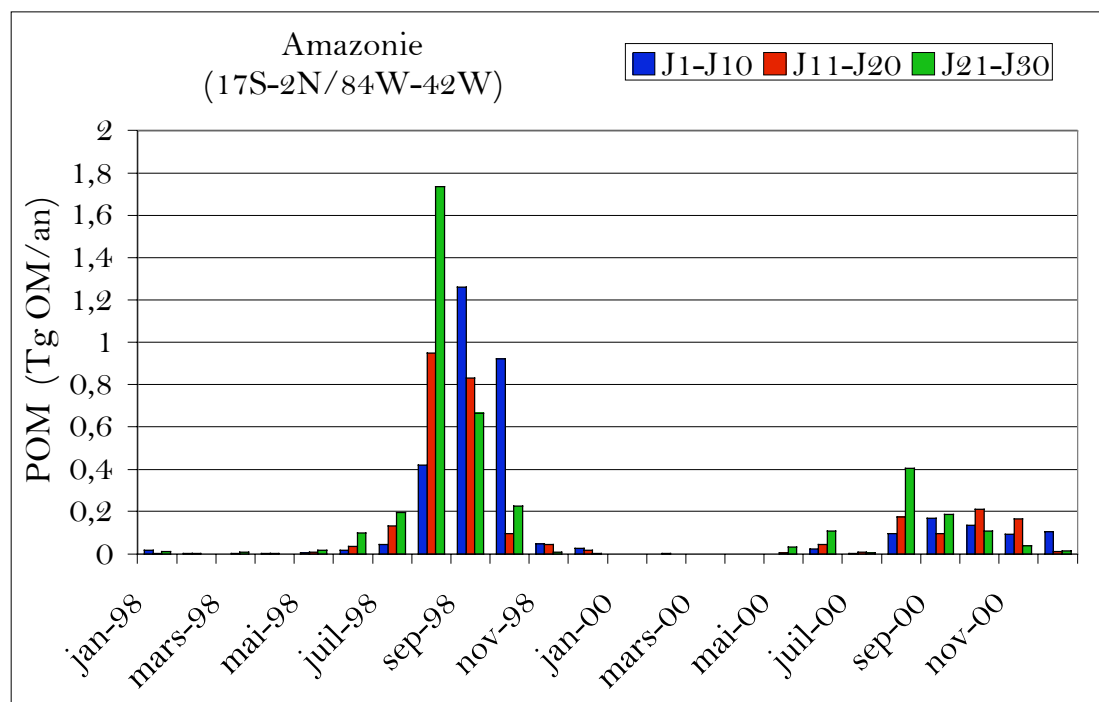


Figure 3.12 : exemple des émissions décadaire obtenue pour la région Amazonie pour 1998 et 2000

3.7 Conclusion

Les comparaisons de moyennes mensuelles d'AOT simulées et observées par satellite dans les régions d'émissions ont mis en avant un déphasage significatif des distributions d'aérosols carbonés émis par les feux de végétation. Ce désaccord rend la mise en place de l'assimilation des données plus difficile. L'approche la plus simple est de corriger les inventaires d'émissions avant d'utiliser le modèle pour l'assimilation. J'ai ainsi été amenée à développer une méthode qui permet de corriger les désaccords observés.

La méthode que je propose pour améliorer la représentation des variations spatiales et temporelles des émissions par les feux est de coupler l'information quantitative contenue dans les inventaires à l'information spatiale et temporelle contenue dans les observations des satellites. Nous avons utilisé les données de l'instrument ATSR. La méthode développée permet ainsi de fournir une estimation statistique de la masse émise par feu détecté. Cette constante d'émission peut ensuite être appliquée à l'ensemble des distributions mensuelles des observations ATSR. Cela a permis de fournir des inventaires corrigés pour la période de juillet 1996 à décembre 2001. Une telle méthode peut se généraliser aux inventaires d'émission d'autres particules ou gaz émis par les feux et être utilisé avec les produits d'autres instruments. La comparaison des produits ATSR avec les principaux autres produits disponibles ont permis de montrer que ses caractéristiques spécifiques, en particulier sa détection nocturne, n'ont pas engendré de biais sur les variations intra et inter-annuelles introduites dans les inventaires.

Le modèle LMDz-INCA a été contraint successivement avec les inventaires d'origine et corrigés. La comparaison des valeurs d'AOT ainsi simulées avec les mesures depuis le sol du réseau AERONET a permis de valider le cycle saisonnier introduit. Les améliorations par rapport à l'inventaire d'origine ont été particulièrement notables en Amérique du Sud. Le manque de mesures AERONET dans des régions principales de feux de biomasse n'a pas permis de valider la méthode dans toutes les régions du globe, en particulier dans les zones boréales. L'exemple de la région Indonésie durant l'automne 1997, qui a été le siège d'une activité des feux exceptionnellement élevée, a permis d'analyser le comportement des émissions corrigées dans un cas de variabilité majeure. La méthode a permis au modèle de reproduire correctement la distribution spatiale du panache d'aérosols résultants, observé par l'instrument spatial TOMS. En revanche, les quantités émises lors de cet épisode sont probablement surestimées.

D'autres méthodes utilisant l'information des satellites ont été développées récemment pour contraindre les émissions. Outre l'approche que j'ai utilisée, deux autres approches ont été développées qui utilisent la connaissance des surfaces brûlées (déduites et observées par satellites) pour estimer quantitativement les émissions. D'une part, dans l'approche que j'appelle *intermédiaire*, les surfaces brûlées sont estimées via une relation de proportionnalité avec le nombre de feux détectés par satellite en fonction du type de végétation. C'est l'approche de [Van der Werf et al., 2003]. D'autre part, l'approche qui requiert le moins d'hypothèses est celle qui utilise les surfaces brûlées directement fournies par les satellites. Cette méthode a été développée par [Hoelzemann et al., 2004]. Les comparaisons de ces trois approches pour l'année 2000 ont permis de mettre en avant les avantages et inconvénients de chacune d'entre elles. Cela a également permis une validation de la méthode que j'ai développée sur une échelle régionale et globale.

La méthode décrite dans ce chapitre a permis de corriger les distributions spatiales et temporelles des émissions d'aérosols carbonés par les feux. Cependant, les émissions corrigées sont à une résolution mensuelle, ce qui est encore limitant en particulier dans le cas des feux de biomasse qui sont des événements extrêmement variables dans l'espace et dans le temps. Nous serons amenés au cours des chapitres suivants à traiter des exemples d'épisodes de feux et nous serons confrontés aux limites de l'utilisation de la résolution mensuelle des émissions.

Chapitre 4

Le transport de panaches d'aérosols à grande échelle

4.1	Introduction.....	68
4.2	Vers l'océan Atlantique.....	70
4.2.1	Les exports du continent africain.....	70
4.2.1.1	Dans l'hémisphère Nord.....	70
4.2.1.2	Dans l'hémisphère Sud	75
4.2.2	Les exports du continent américain	80
4.3	Vers l'océan Pacifique.....	82
4.3.1	Les exports du continent asiatique	82
4.3.2	Les exports du continent américain	87
4.4	Vers l'océan Indien	89
4.5	Conclusion	89

4.1 Introduction

Dans ce chapitre, j'analyse les capacités du modèle à reproduire un transport d'aérosols sur de grandes distances. Le terme de « transport » se réfère ici bien sûr à la représentation des champs météorologiques (vents, précipitations) qui régissent la dynamique dans le modèle. Il prend également en compte le dépôt et les propriétés intrinsèques des particules (caractère hydrophile par exemple) qui régissent le contenu en aérosols de l'atmosphère dans les régions éloignées des sources. Il n'est pas question ici d'évaluer quantitativement chacun de ces processus. Il serait en effet difficile, voire impossible, d'isoler la part de chacun d'entre eux dans un éventuel désaccord modèle/mesure. L'objectif est de s'assurer que le modèle que l'on souhaite utiliser pour bâtir l'assimilation représente de manière satisfaisante les distributions d'aérosols dans les régions éloignées des sources. Nous pouvons considérer ce chapitre comme le deuxième volet, après l'analyse des sources, d'une étude de faisabilité préalable au développement de la méthode d'assimilation.

La Figure 4.1 présente les principales directions d'export de matière des régions continentales (sources) vers les océans. L'océan Atlantique est soumis à l'Est aux exports du continent africain. Il est assez fréquent que des panaches de poussières désertiques du Sahara atteignent les côtes américaines au printemps. Dans l'hémisphère Sud, les feux de biomasse sont à l'origine des épisodes de pollution (export via le Golfe de Guinée de décembre à février ou le bassin d'Angola de juin à octobre). À l'Ouest, l'océan Atlantique Nord est influencé par les masses d'air qui sortent du continent nord-américain. Les sources principales sont les activités industrielles et domestiques, ainsi que les feux de forêt du Canada. C'est principalement l'été que l'on assiste à des exports de matière en raison des conditions météorologiques. Pour ce qui est du Pacifique Nord, les sources qui proviennent d'Asie sont très diverses, i.e. activités industrielles, feux de brûlis ainsi que poussières issues du désert de Gobi. L'océan Indien est affecté, au Nord, par des sources anthropiques issues du sous-continent indien et de poussières désertiques issues de la péninsule arabique (en été). Pendant la saison des feux, de juin à octobre, l'Indonésie et le Nord de l'Australie sont des sources d'aérosols carbonés. Plus au sud, quelques événements sporadiques issus d'Afrique du Sud peuvent transporter des aérosols carbonés pendant plusieurs jours.

Je me suis intéressée pour cette étude à des épisodes particuliers car ils permettent d'analyser la capacité du modèle à bien représenter le transport des aérosols. Je décris ainsi plusieurs événements d'aérosols. J'ai sélectionné dans les observations POLDER et TOMS des panaches d'aérosols dont on peut suivre le transport sur plusieurs jours. Après avoir isolé le jour et la zone des émissions à l'origine du panache, j'ai vérifié que le modèle donnait une représentation correcte de la charge en aérosol pour ces conditions initiales à partir des comparaisons aux observations spatiales. Lorsque ce n'était pas le cas, j'ai modifié la source afin de forcer le modèle à des conditions initiales correctes. On peut ainsi découpler l'analyse du transport de celle des sources dans le modèle. Je compare alors l'évolution spatiale et temporelle des panaches simulés et observés. Cette analyse permet de fournir des indications sur la représentativité de la diffusion, de la direction et de la vitesse de déplacement des panaches dans le modèle. De plus, lorsque les données simulées et observées correspondent à la même grandeur physique (c'est le cas avec POLDER), alors des indications quantitatives permettent d'évaluer la qualité des estimations du dépôt. Trois termes de dépôt sont considérés dans le modèle : la sédimentation (due au

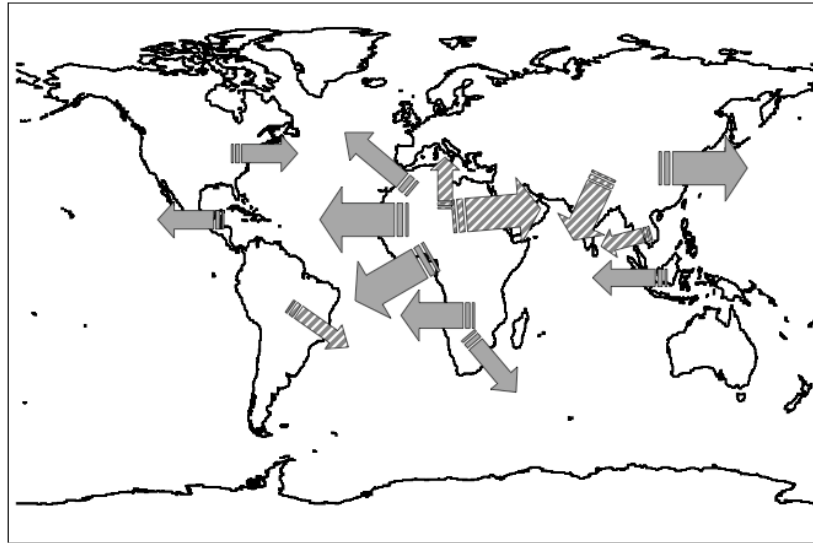


Figure 4.1 Principaux exports d'aérosols des régions sources vers les régions océaniques. Les flèches en gris indiquent les directions de transport qui seront étudiées dans ce chapitre.

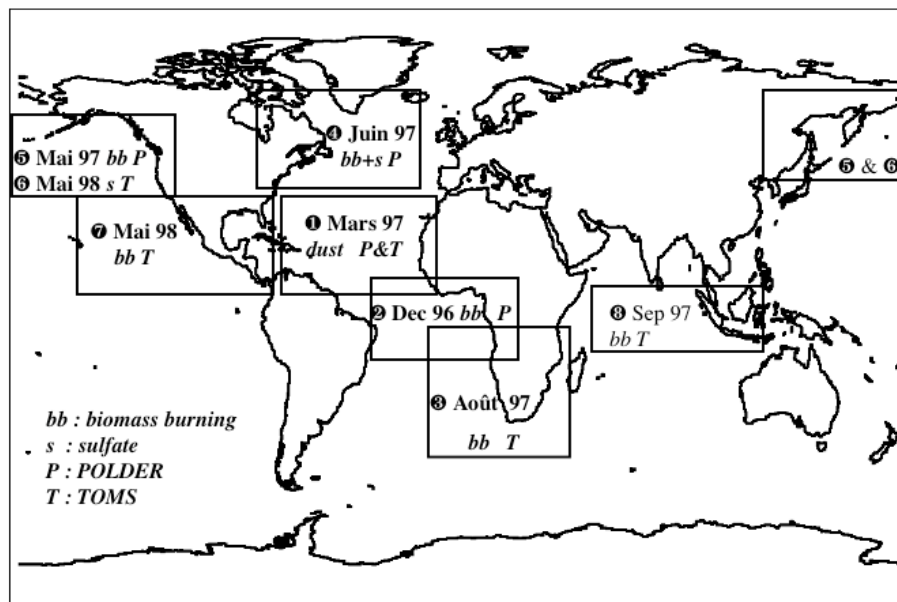


Figure 4.2 : Présentation des huit exemples de transport de panaches à grande échelle considérés dans cette étude.

poids des particules), le dépôt humide (lessivage par les précipitations) et le dépôt sec (lié au mouvement turbulent dans la couche limite et à l'interception des particules par les obstacles ou la surface).

J'ai conservé huit épisodes qui sont représentatifs d'une région donnée et d'un type de particules donné. Ils sont présentés sur la Figure 4.2. Quatre épisodes concernent le transport vers l'Atlantique à différentes latitudes ; trois vers le Pacifique et un vers l'Océan Indien. Les résultats sont présentés par région océanique. Notons que les AOT sont désormais calculées en ligne dans le modèle de manière cohérente avec l'information sur la taille, la nature de l'aérosol et de son hygroscopicité. Lorsque les observations POLDER sont disponibles, les AOT à 865 nm observées et simulées sont directement comparables. Au-dessus des continents, seul l'indice aérosol POLDER (AI) est disponible. Lorsque le modèle est comparé à l'AI POLDER, les AOT simulées sont converties suivant la relation : $AI_{polder} = \alpha \times AOT_{865}$ où $\alpha = 1.5$, typique pour ce type de particules, [Lioussse et al., 1995]. Enfin, dans les cas où les données POLDER ne sont pas disponibles, les données TOMS (AI) sont utilisées. Dans ces cas, seules des indications qualitatives sont possibles car d'une part TOMS ne détecte pas les aérosols dans les basses couches de l'atmosphère, et d'autre part car l'AI ne cherche pas à reproduire une épaisseur optique.

4.2 Vers l'océan Atlantique

4.2.1 Les exports du continent africain

4.2.1.1 Dans l'hémisphère Nord

Épisode ①

Les panaches d'aérosols qui sortent du Sahara sont les plus importants en termes de masses exportées. De plus, on a souvent pu observer des transports sur plusieurs milliers de kilomètres, jusqu'au Caraïbes ou en Amazonie. J'ai choisi d'étudier ici un épisode qui a eu lieu en mars 1997. Cet exemple est remarquable car on peut observer un panache qui s'étend dans plusieurs directions pendant plus de dix jours. Il atteint les côtes américaines et du nord de l'Europe. Les instruments TOMS et POLDER détectent tous deux l'événement. J'utilise ici TOMS pour le suivi journalier et POLDER pour une synthèse des dix jours (les données journalières sont peu exploitables du fait de la présence importante de nuages).

Les Figure 4.3 et Figure 4.4 présentent l'événement tel qu'il est observé par TOMS (AI) et simulé par le LMDZ-INCA (AOT_{865}). Notons que toutes les espèces d'aérosols sont incluses dans la simulation. Sur l'image TOMS du 2 mars, on distingue très nettement un panache d'aérosols qui s'étend sur la partie sud du Sahara, le Sahel ainsi qu'une très large zone de l'Atlantique. On peut suivre l'évolution du panache jusqu'au 11. Le bras qui remonte vers l'Europe atteint le nord de l'Espagne le 5 mars et le nord de la France le 7. Il disparaît à partir du 9, probablement suite à des processus de sédimentation et lessivage. Le panache qui se dirige vers l'Ouest progresse régulièrement et atteint le Venezuela le 8 mars. Enfin, un premier panache est visible dans le Golfe de Guinée le 2 mars ; il atteint le Brésil le 3 et disparaît à partir du 4 (il peut s'agir de la fin d'un épisode antérieur). Un second panache sort par le Golfe de Guinée le 4 mars. Il atteint la pointe à l'Est du Brésil le 8 mars puis disparaît.

La distribution spatiale des aérosols simulée pour le 2 mars est très similaire à ce qui est observé par TOMS, à l'exception des aérosols dans le Golfe de Guinée. Le panache qui est transporté vers le Nord-est présente une amplitude spatiale qui est

similaire aux observations, mais il semble atteindre le nord de l'Espagne plus rapidement. La résolution spatiale du modèle qui est beaucoup plus réduite que celle des observations peut expliquer cette différence. Le 7 mars, il atteint la Grande-Bretagne. À partir du 9, il disparaît. La vitesse de propagation et l'extension spatiale de ce panache est en accord avec les observations. Le 2 mars, le panache qui se dirige vers l'Ouest atteint la pointe du Brésil (longitude $\sim 35^\circ\text{E}$), ce qui est en accord avec les observations. Il atteint le Venezuela le 8 mars (longitude $\sim 60^\circ\text{E}$) et Cuba le 10 (longitude $\sim 80^\circ\text{E}$). La direction et la vitesse de déplacement du panache dans cette direction sont également en accord avec les observations. Notons qu'une bonne représentation de la vitesse de déplacement du panache est une indication que les aérosols qui se déplacent sont représentés à une altitude correcte dans le modèle (la vitesse des vents dépend de l'altitude). Il ne s'agit pas d'une validation directe. En revanche, le modèle ne représente pas les panaches qui sortent par le Golfe de Guinée. En dessous d'une ligne de latitude $\sim 5^\circ\text{N}$, le modèle n'indique pas la présence d'aérosols même en très faible quantité. Or les sources continentales autour du Golfe de Guinée sont cohérentes avec les observations. Il y a manifestement un déficit du modèle dans cette région.

Les données de l'instrument POLDER sont également disponibles pour cette période. Bien que fortement affectées par la présence de nuages, les mesures POLDER ont l'avantage de fournir une épaisseur optique, qui est donc quantitativement comparable aux sorties du modèle. La Figure 4.5 présente la moyenne des AOT_{865} observées et simulées entre le 2 et le 11 mars. Pour ne pas biaiser la moyenne et permettre une comparaison POLDER/modèle, la moyenne du modèle est basée uniquement sur les jours pour lesquels une mesure POLDER est disponible. L'AI POLDER est représenté à titre indicatif. Ses faibles valeurs indiquent que le panache étudié est composé de particules dans le mode grossier ; confirmant ainsi qu'il s'agit de poussières désertiques. Pour ce type d'aérosols, l'épaisseur optique sur terre est très sous-estimée par POLDER (qui ne donne que la fraction du mode fin). Par contre, sur mer, les épaisseurs optiques sont fiables. On note une distribution spatiale qui est en accord avec les mesures de TOMS, ce qui confirme que le modèle présente un déficit des distributions d'aérosols dans le Golfe de Guinée. De plus, la comparaison aux observations POLDER montre que les quantités d'aérosols simulées sont surestimées près des sources (océan au large de la Mauritanie) et sous-estimées près de l'Europe et de l'Amérique du Sud par rapport aux observations. Ceci semble indiquer que le dépôt des poussières désertiques est surestimé dans le modèle.

Afin d'avoir une indication des quantités déposées pendant cet épisode, je présente sur la Figure 4.6 la moyenne du dépôt journalier total (somme du dépôt sec, humide et dû à la sédimentation) sur la période de l'épisode. Les flux de dépôt simulés ont permis d'estimer les quantités déposées sur la période de l'épisode. Ces quantités ont été converties en AOT à 550 nm (il s'agirait de l'AOT du contenu en aérosols de l'atmosphère correspondant aux quantités qui sont déposées). La valeur du coefficient d'extinction spécifique utilisé est caractéristique des poussières désertiques ($0.79 \text{ m}^2 \times \text{g}^{-1}$ à 550 nm, [Moulin *et al.*, 1997]). Etant donné que les variations de l'AOT en fonction de la longueur d'onde sont faibles pour ces particules, on peut considérer que le dépôt tracé en « équivalent AOT_{550} » est comparable aux AOT_{865} mesurées par POLDER. On distingue nettement deux zones de dépôt sur la Figure 4.6. La région de dépôt la plus importante est au-dessus de la Mauritanie (ce qui est compréhensible car c'est dans cette région qu'il y a la majeure partie de la quantité d'aérosols simulés). Dans le modèle, le mode de dépôt

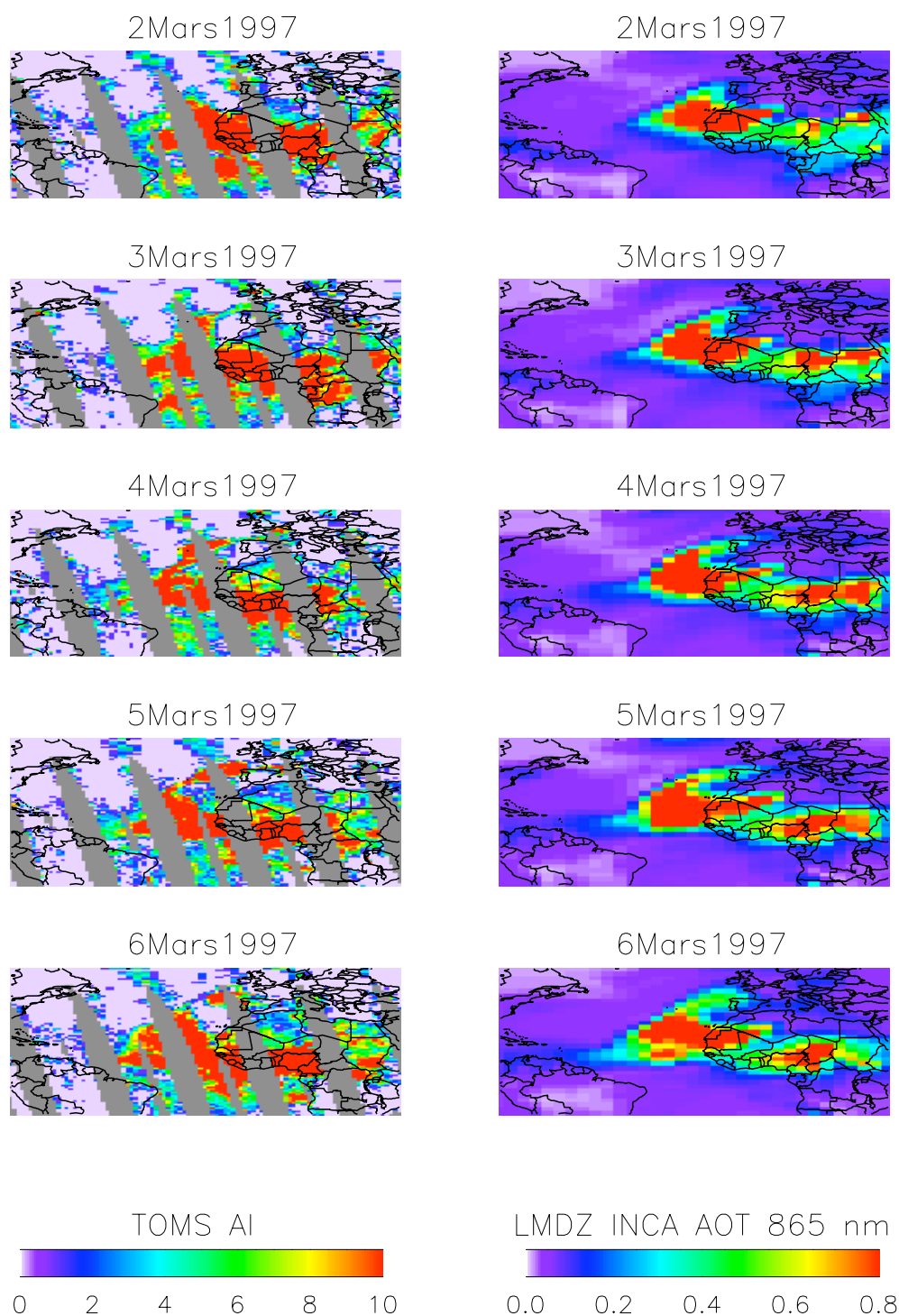


Figure 4.3 : *Épisode 1*. Comparaisons journalières de l'AI TOMS (à gauche) et de l'AOT₈₆₅ simulée par le LMDz-INCA entre le 2 et le 6 mars 1997. La simulation inclut toutes les espèces d'aérosols.

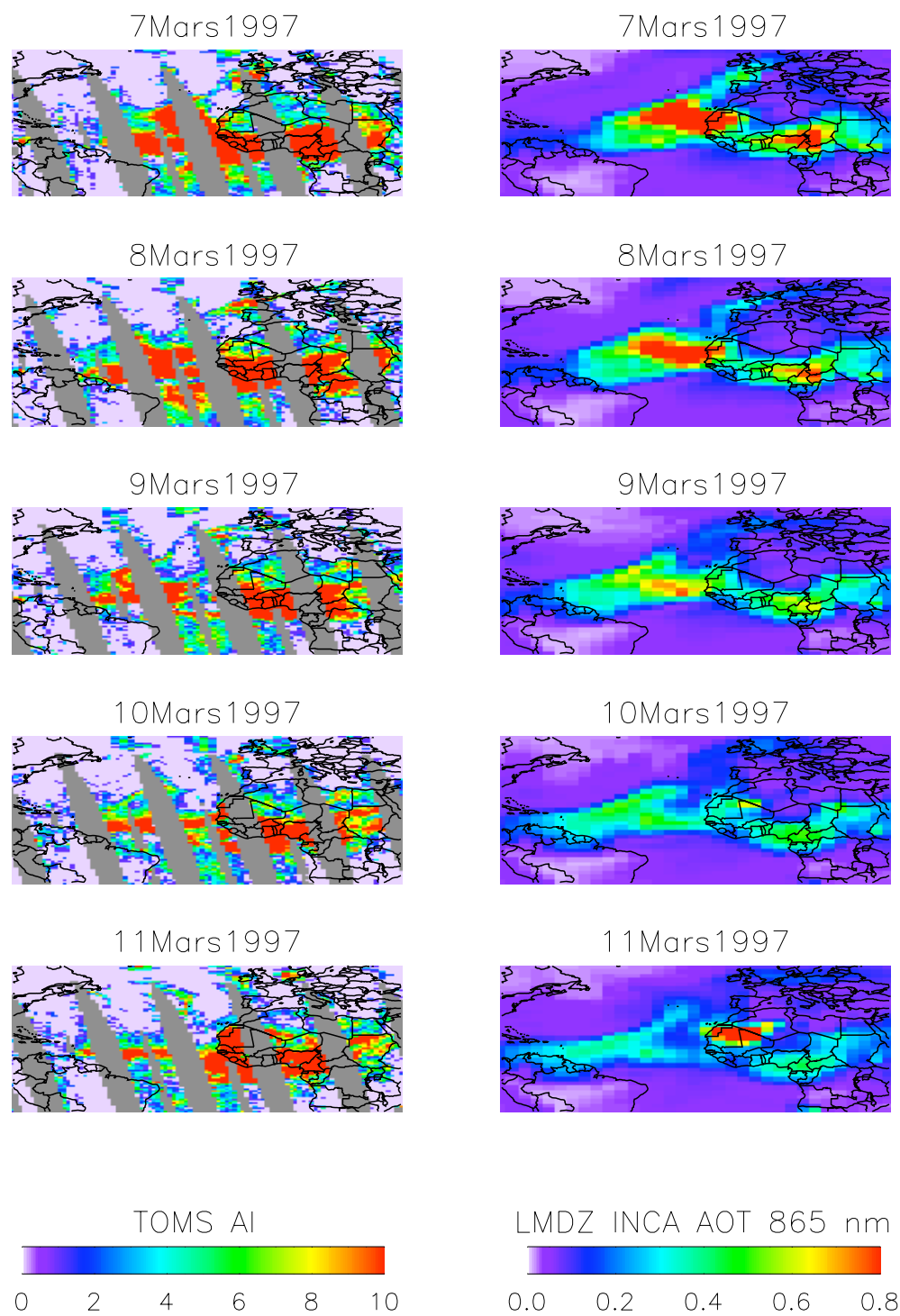


Figure 4.4: Épisode 1. Même figure que la précédente pour la période entre le 7 et le 11 Mars 1997.

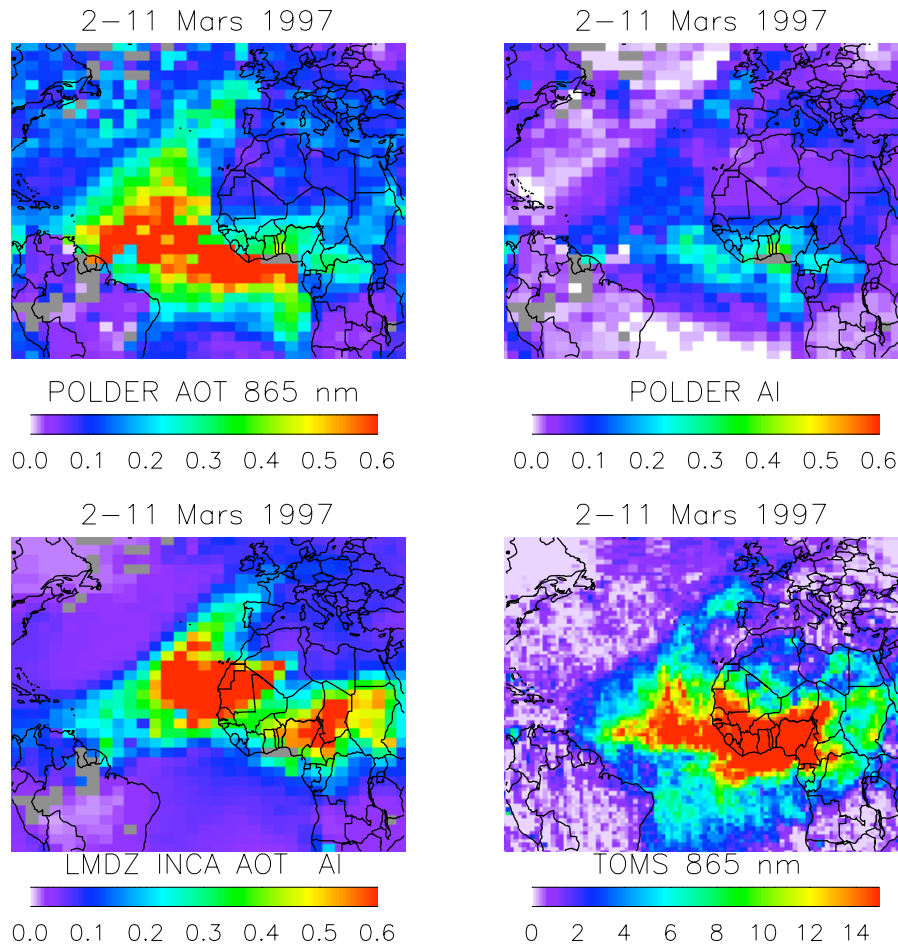
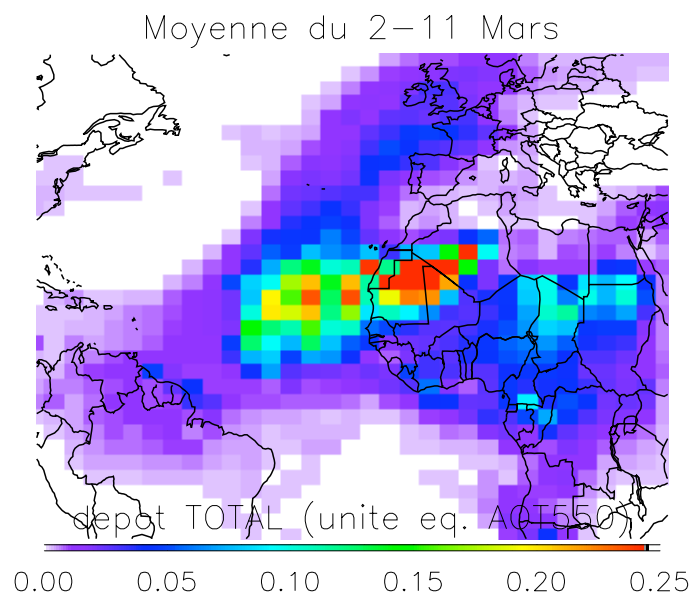


Figure 4.5 : Épisode 1. Moyenne sur les 10 jours de l'épisode (du 2 au 11 mars) des AOT_{865} mesurées par POLDER (en haut, à gauche), des AI POLDER (en haut, à droite) et TOMS (en bas, à droite) et simulées par le LMDZ-INCA (en bas, à gauche). Les moyennes pour le modèle et POLDER sont obtenues à partir des jours où il y a des observations POLDER.

Figure 4.6 : Épisode 1. Dépôt total dans le modèle (sec, humide et dû à la sédimentation). Les masses déposées ont été converties en AOT_{550} . Seuls le dépôt des poussières désertiques est considéré.



dominant au-dessus de cette région est le dépôt sec, ce qui est cohérent avec notre connaissance de ce type d'aérosols. La deuxième zone importante de dépôt est au-dessus de l'Atlantique. Dans le modèle, le dépôt qui domine dans cette région est le dépôt humide (les poussières désertiques ne sont pas hydrophiles mais elles peuvent être entraînées par les gouttes de pluie dans leur chute). En moyenne journalière au-dessus de cette zone, l'AOT correspondant au dépôt est de 0.15 à 0.20. Cette quantité est du bon ordre de grandeur pour expliquer la sous-estimation des quantités modélisées dans les régions les plus éloignées des sources (les plus proches du continent américain ou européen). Il y a donc de fortes indications que le modèle surestime le dépôt humide lors du transport sur l'Atlantique pour cet épisode.

4.2.1.2 Dans l'hémisphère Sud

Épisode ②

Entre décembre et février, ce sont des aérosols carbonés issus des feux de biomasse qui sont très souvent transportés vers l'océan Atlantique via le Golfe de Guinée. L'exemple présenté sur la Figure 4.7 est représentatif des exports d'aérosols dans cette région. Il se déroule sur 8 jours en décembre 1996. Le panache sort du continent africain le 6 décembre et progresse régulièrement jusqu'à atteindre les côtes brésiliennes le 10. Il est visible sur les images POLDER jusqu'au 13. Les valeurs d'AI POLDER sont fortes, ce qui confirme qu'il s'agit d'aérosols dans le mode fin (dans cette région, ce sont des aérosols émis par les feux de biomasse).

La Figure 4.7 présente les moyennes sur les huit jours des AI observés par POLDER et simulés par le LMDz-INCA. Seuls les aérosols carbonés sont pris en compte. La simulation représente de manière satisfaisante les sources continentales. En revanche, la présence des aérosols dans l'océan Atlantique n'est pas représentée par le modèle. Cet exemple confirme les conclusions obtenues au paragraphe précédent dans la région du Golfe de Guinée. De plus, l'analyse de chaque mois de la saison des feux de 1996 à 1998 (décembre, janvier et février) montre, à de rares exceptions près, un déficit important des quantités simulées par le modèle.

Une explication possible à ce déficit pourrait être une surestimation du dépôt dans le modèle. Je présente sur la Figure 4.8, la moyenne journalière du dépôt total sur la période de huit jours considérée. J'ai converti les masses déposées en équivalent AI POLDER (même principe que pour l'épisode ①). Seul le dépôt des aérosols carbonés est considéré. Bien que les conclusions quantitatives soient difficiles, cette figure permet de fournir une indication sur les ordres de grandeur du dépôt dans le cadre de cet épisode. Il s'avère qu'en moyenne journalière, une masse équivalente à un AI de 0.15 est déposée au-dessus des sources (ici Zaïre) alors que le contenu en aérosols est équivalent à un AI de 0.3 en moyenne dans le modèle. Ainsi, selon la simulation, la moitié des quantités émises est déposée dans les régions d'émission. Cette quantité est manifestement surestimée par rapport aux observations POLDER. Dans cet exemple, c'est le dépôt humide qui domine dans le modèle et qui apparaît ainsi surestimé

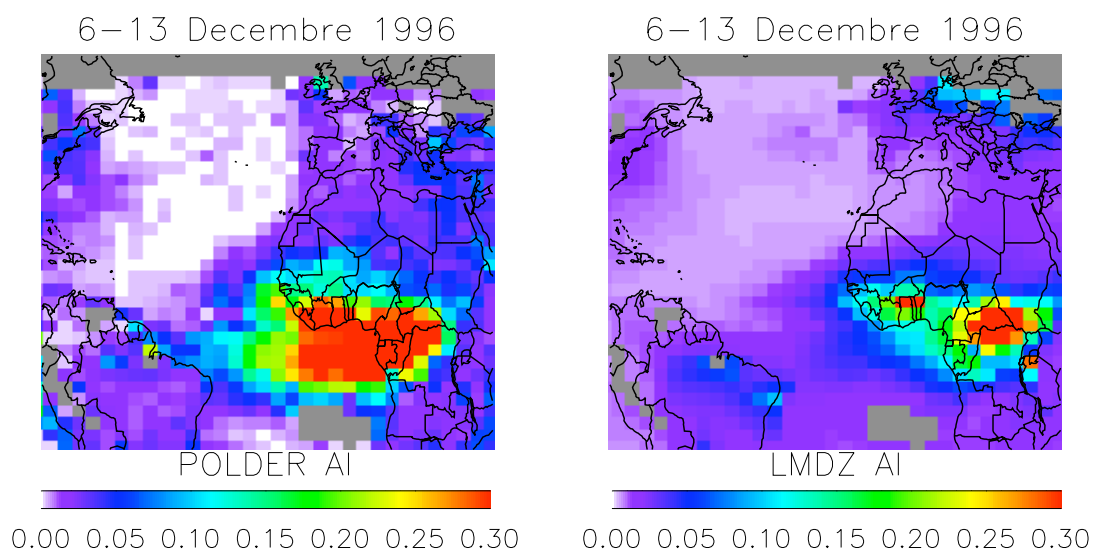


Figure 4.7 : Épisode 2. Moyenne sur les 8 jours de l'épisode (entre le 6 et le 13 décembre 1996) de l'AI POLDER (à gauche) et simulé par le LMDZ-INCA (à droite). Seuls les aérosols carbonés sont pris en compte.

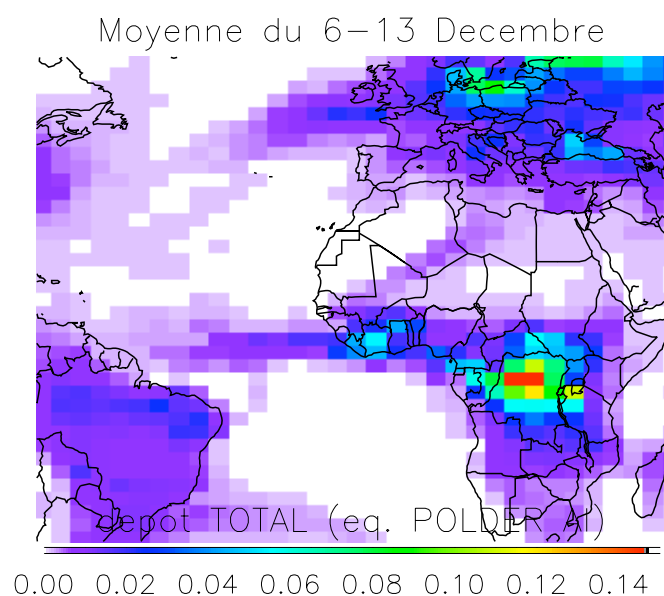


Figure 4.8 : Épisode 2. Dépôt total dans le modèle (sec, humide et dû à la sédimentation). Les masses déposées ont été converties en AI. Seuls le dépôt des aérosols carbonés est considéré.

Épisode ③

Plus au Sud, autour du bassin d'Angola se situe la deuxième région majeure de feux de biomasse en Afrique. La saison des feux y débute en juin. Les exports d'aérosols sont très fréquents. L'exemple que je présente ici a eu lieu en août 1997. Seules les données TOMS sont disponibles à cette période. L'épisode est remarquable car il présente un panache qui se dirige selon deux directions. Les Figure 4.9 et Figure 4.10 présentent les comparaisons entre TOMS et les simulations du LMDZ-INCA entre le 7 et le 20 août 1997. Les grandeurs présentées sur la figure ne sont pas comparables en termes quantitatifs. Seuls les aérosols carbonés sont pris en compte. Sur les images TOMS, on voit nettement le panache d'aérosols sortir au nord de l'Angola ; la source provient du Zaïre. Elle est continue pendant les 14 jours. Le panache se dirige vers l'Ouest, il atteint la longitude de 15°E (celle de la pointe occidentale de l'Afrique) le 12. À partir du 15, le panache se dirige vers le Sud-est. Il est transporté vers la pointe Sud de l'Afrique et atteint l'Océan Indien le 18.

Le modèle présente des conditions qui sont similaires à celles qui sont observées le premier jour de l'épisode : la source est localisée au Zaïre (elle est continue sur les 14 jours comme dans les observations) ; une partie des aérosols sort du continent via le bassin d'Angola. Le panache se développe de manière satisfaisante vers l'Ouest. Il atteint la longitude de 15°E le 13. Le panache simulé est plus diffus que celui qui est observé. Une cause probable de cette diffusion excessive est la résolution spatiale du modèle qui est plus grande que celle des observations. De plus, TOMS ne détecte pas les aérosols dans les basses couches de l'atmosphère, ce qui pourrait également expliquer la différence. La diffusion du panache dans le modèle rend difficile l'analyse du transport vers le sud-est. Cependant, on note que le 15 août, le modèle simule des aérosols dans l'Océan Indien, en avance par rapport aux observations. On constate qu'à la fin de l'épisode, les 19 et 20 août, la distribution finale du panache simulé est correctement représentée dans le modèle. Contrairement aux épisodes précédents, il n'est pas possible d'analyser le dépôt ou les comparaisons en termes quantitatifs car les données POLDER ne sont pas disponibles à cette date. L'étude montre que cet épisode est représenté de manière correcte dans le modèle.

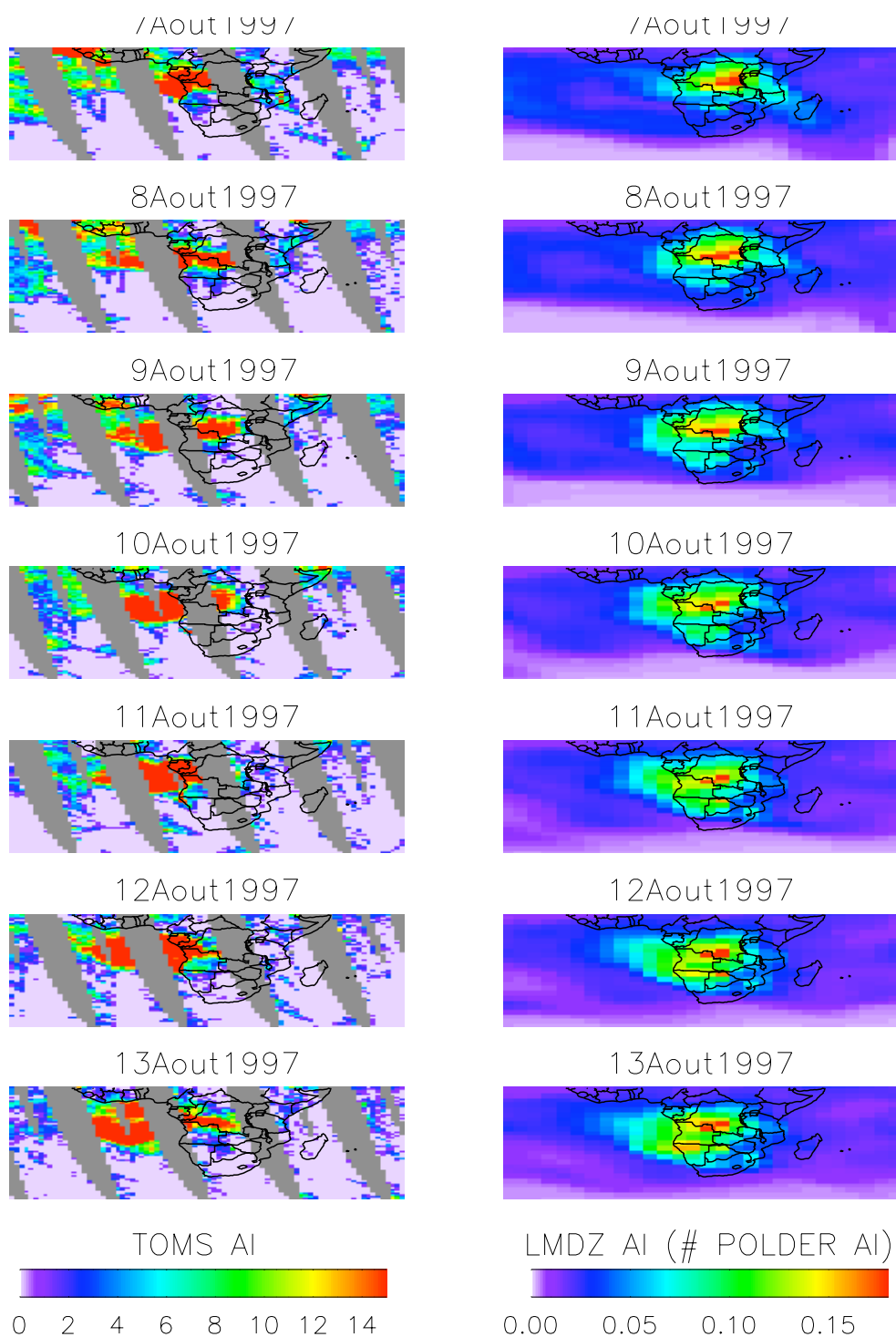


Figure 4.9 : Épisode ⑨. Comparaisons journalières de l'AI TAMS (à gauche) et de l'AI simulée par le LMDZ-INCA entre le 7 et le 13 août 1997. Les AI simulés sont équivalents aux AI mesurés par POLDER, que nous utilisons comme référence dans les régions de feux de biomasse. La simulation inclut uniquement les aérosols carbonés.

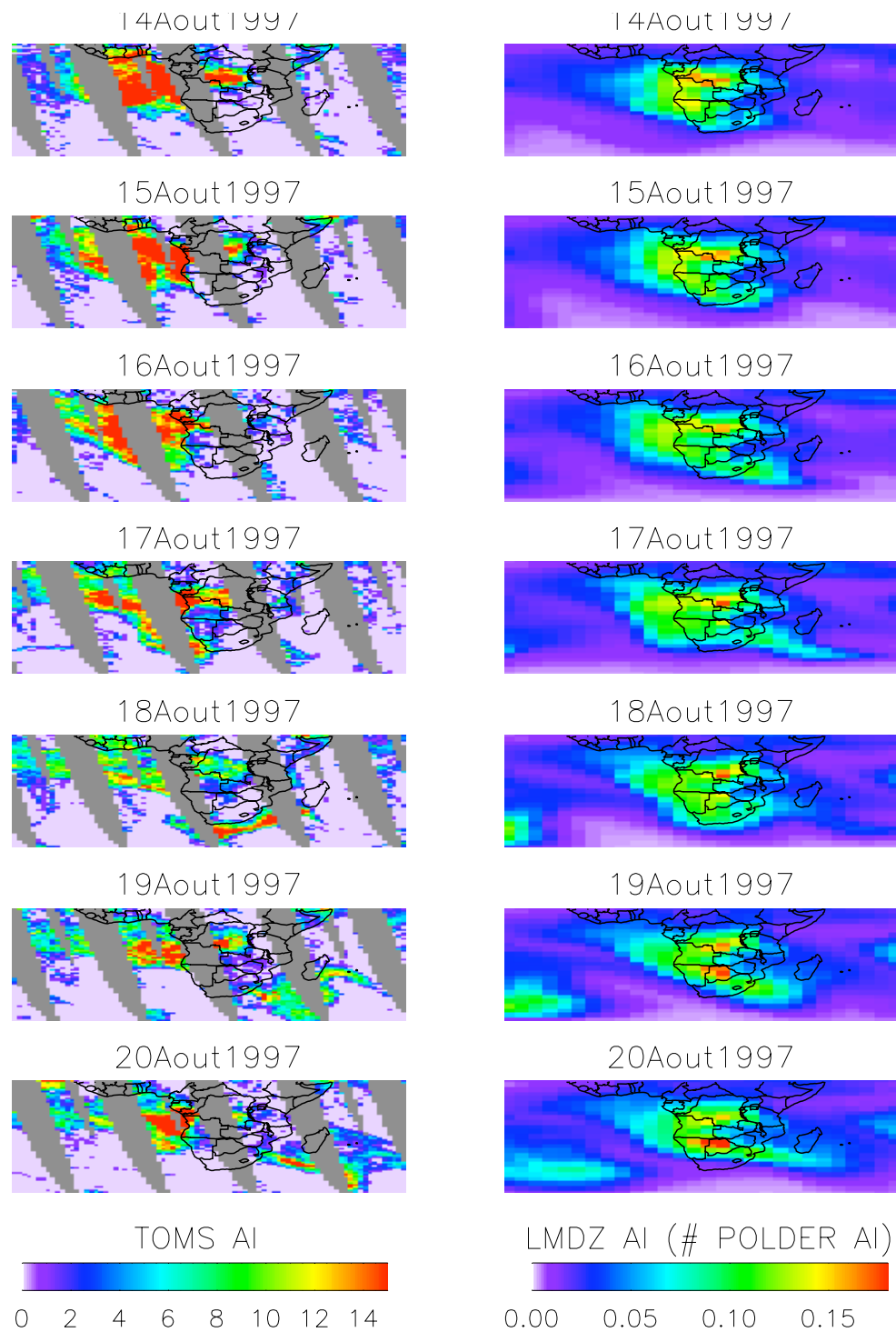


Figure 4.10 : Épisode ③. Même figure que la précédente pour le 14 au 20 août 1997.

4.2.2 Les exports du continent américain

Épisode ④

Des panaches d'aérosols sont parfois transportés dans l'Atlantique Nord du Nord-est des Etats-Unis ou du Canada vers l'Europe. POLDER en a détecté un exemple en juin 1997. Il est visible sur les observations pendant 8 jours. TOMS confirme la présence élevée d'aérosols qui sortent du continent à la même date mais ne détecte pas le panache tout au long de son trajet au-dessus de l'Atlantique. Une explication possible est que les aérosols sont à une altitude trop basse pour être visible par cet instrument. Il est difficile d'isoler la nature des aérosols transportés car la région d'émissions est à la fois très industrialisée (Mégapoles du Nord-est des Etats-Unis) et importante du point de vue des feux de forêt boréale. ATSR détecte des feux au Québec les 9 et 10 juin. Leur localisation spatiale est cohérente avec les panaches observés. Cependant, il est difficile de savoir s'ils peuvent expliquer à eux seuls le panache observé. Le modèle ne permet pas de fournir des éléments de réponse car il ne simule ni la présence d'aérosols carbonés ni sulfatés à cette date. Pour pouvoir tester la représentativité du transport du panache, j'ai supposé que l'épisode est dû uniquement à des feux de forêt et j'ai contraint le modèle avec une source d'aérosols carbonés. Cette source est créée spécifiquement pour cette expérience. Les quantités émises sont choisies représentatives des émissions par des feux boréaux de grande ampleur (les quantités sont celles qui sont choisies pour l'épisode ⑤, nous détaillerons ce choix dans la partie suivante). Du fait du passage du panache au-dessus des régions très urbanisées du Nord-est des Etats-Unis, il est probable que le panache contient aussi des sulfates. L'erreur faite en considérant que toutes les particules sont des aérosols carbonés ne devrait pas avoir d'impact significatif sur le transport car ces deux types de particules sont assez similaires en termes de distribution en taille.

Les résultats de l'expérience sont présentés sur les Figure 4.11 et Figure 4.12. Les images POLDER permettent de suivre le déplacement du panache vers l'Est. À partir du 10 juin, il sort du continent (longitude $\sim 70^\circ\text{E}$). Le 14 juin, il atteint la longitude d'environ 45°E et le 16 la longitude de 20°E , parcourant ainsi plus de 5000 kilomètres. Les estimations POLDER au-dessus des surfaces enneigées ne sont pas fiables et il ne faut donc pas tenir compte des valeurs sur le Groenland.

La distribution des AI simulée est similaire à ce qui est observé le 9 juin ; ce qui est prévisible puisque les sources ont été définies avec cet objectif. Les valeurs d'AI simulées sont cependant plus importantes que dans les observations, ce qui indique une surestimation des émissions. Le déplacement du panache simulé se fait d'abord vers le Nord-est les 10 et 11 juin, ce qui ne peut pas être confirmé par POLDER. Le déplacement du panache simulé vers l'Est est en accord avec les observations en termes de direction et de vitesse de propagation. On note cependant que, malgré la surestimation des AI simulés le premier jour près de la source, les quantités d'aérosols en fin d'épisode sont sous-estimées. Ce désaccord pourrait s'expliquer soit par un épisode qui est en fait alimenté par d'autres sources au cours de son déplacement, soit par un dépôt surestimé par le modèle.

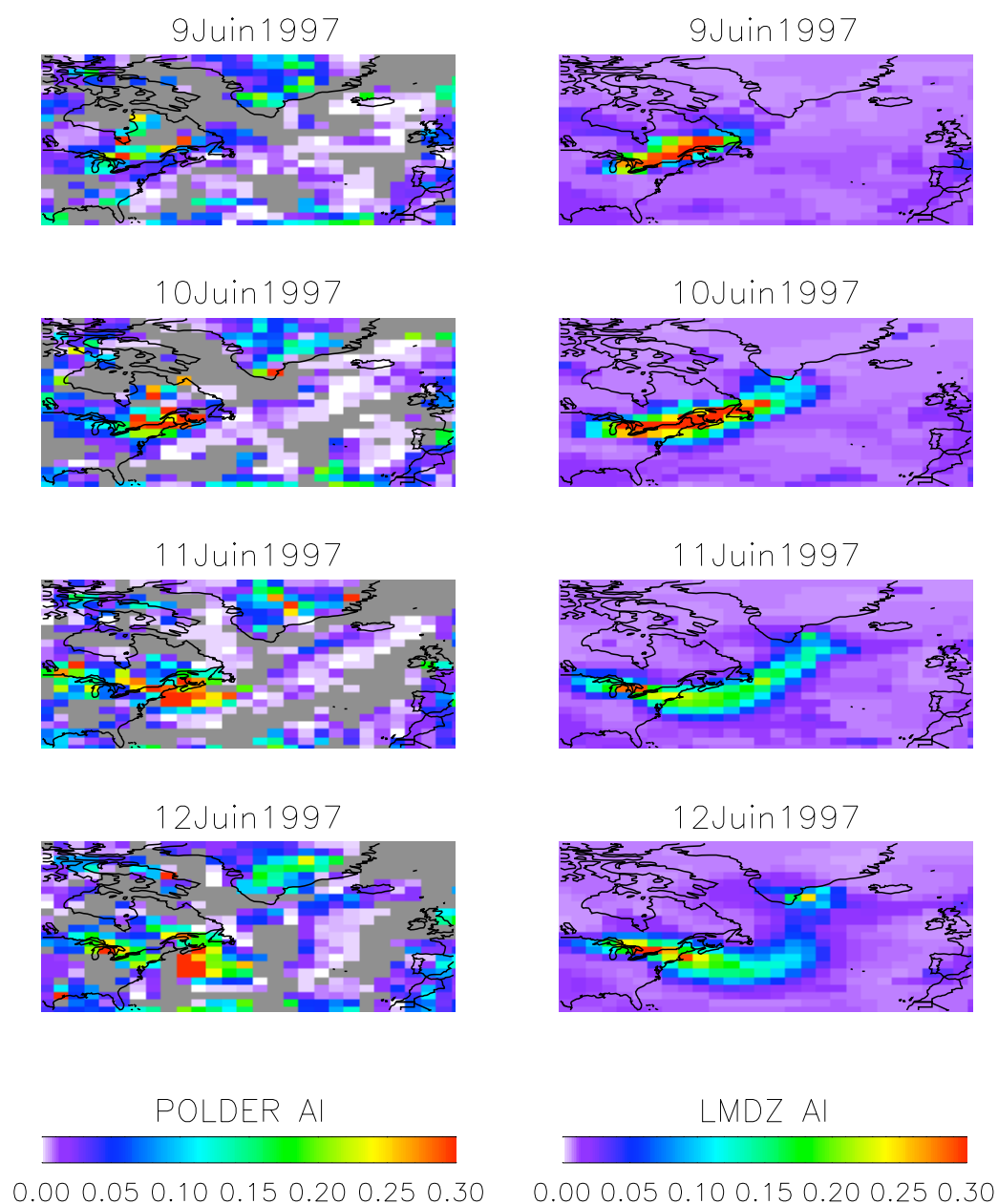


Figure 4.11: Épisode 4. Comparaisons journalières de l'AI POLDER (à gauche) et de l'AI simulée par le LMDz-INCA entre le 9 et le 12 juin 1997. Les AI simulés sont équivalents aux AI mesurés par POLDER. La simulation inclut uniquement les aérosols carbonés.

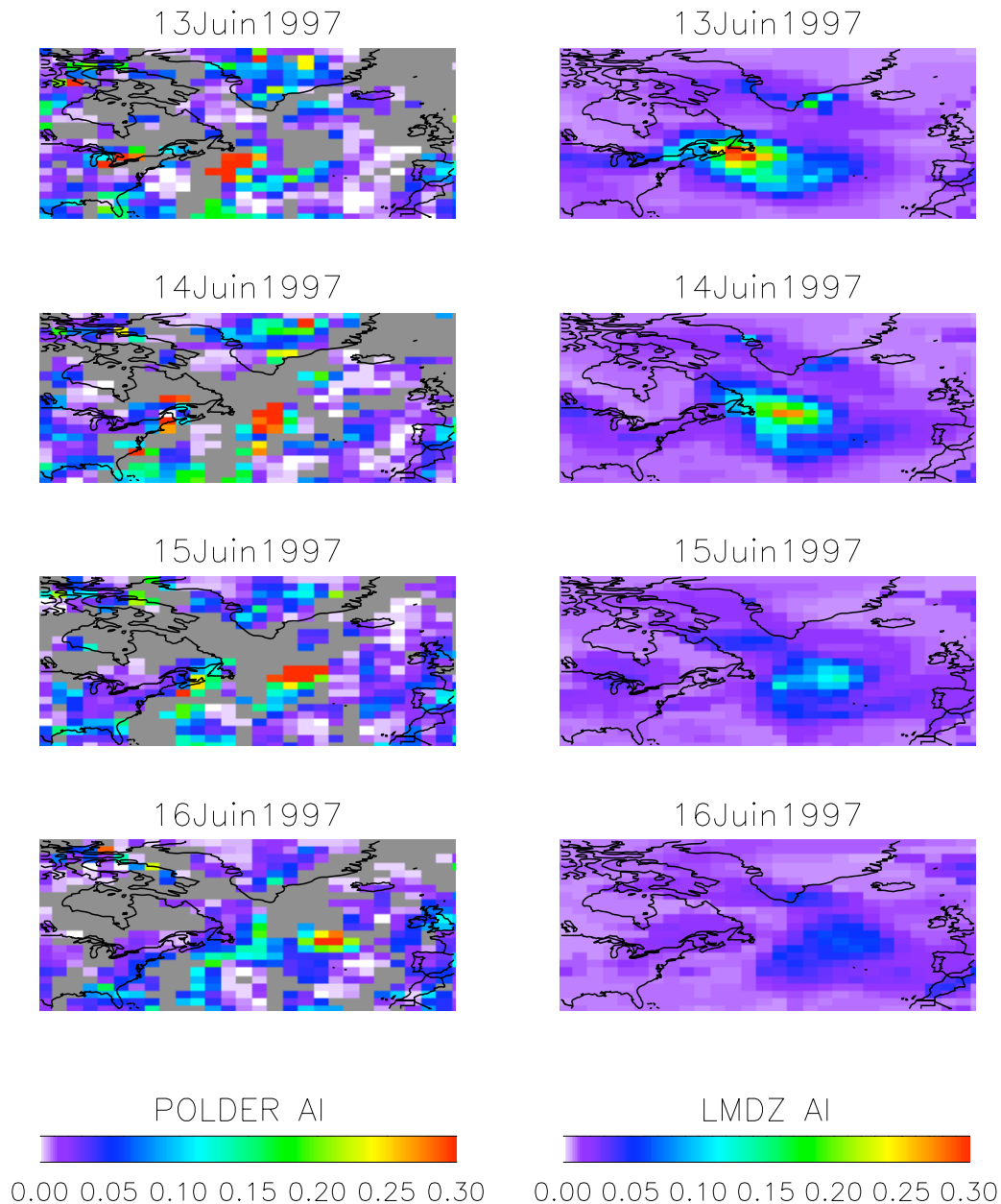


Figure 4.12 : Épisode 9. Même figure que précédemment pour la période du 13 au 16 juin 1997.

4.3 Vers l'océan Pacifique

4.3.1 Les exports du continent asiatique

Dans l'hémisphère Nord, l'Océan Pacifique est principalement influencé par les masses d'air qui sortent du continent asiatique. Les panaches d'aérosols sortants peuvent être composés d'aérosols carbonés et sulfatés (feux dans les régions boréales, pollution urbaine des grandes mégapoles comme Pékin), de poussières désertiques (désert de Gobi) ou encore d'un mélange de plusieurs de ces espèces. C'est une zone difficile à étudier en raison de la composition mixte des panaches.

Épisode ⑥

L'exemple que j'ai choisi est celui d'un épisode de feux qui a eu lieu en Mongolie en mai 1997. Cet épisode est remarquable car il traverse le Pacifique et atteint la côte ouest des Etats-Unis. De plus, il a été possible d'identifier très nettement la source de l'épisode. La Figure 4.13 présente l'image POLDER du 7 mai (passage à 10h30 en heure locale), le premier jour de l'événement, ainsi que les feux détectés par ATSR le 6 mai (passage à 22h00 en heure locale). L'accord spatial et temporel des feux détectés par ATSR et du panache d'aérosols vu par POLDER donne des indications fortes sur l'origine de l'événement. L'absence de nuages a facilité l'observation du début de l'épisode. Le modèle n'est pas capable de reproduire cet événement ponctuel car les émissions liées aux feux de biomasse sont décrites avec une résolution mensuelle. On montre ici la limite de cette description basée sur une distribution uniforme des quantités mensuelles chaque jour du mois. Pour pouvoir étudier le transport du panache, le modèle a été contraint avec une source créée spécifiquement pour représenter cet épisode. Pour cela, la méthode décrite au chapitre 3, qui a servit à construire les émissions mensuelles utilisées dans le modèle, a été appliquée à la distribution des feux ATSR du 7 mai. L'absence de nuages ce jour-là rend possible de clairement identifier les sources qui sont détectées par ATSR et donc d'utiliser une résolution journalière des émissions. Les données du satellite permettent ainsi de dater et localiser les émissions. Les quantités émises ont été choisies de manière à représenter le caractère exceptionnel de l'événement. Elles sont fixées à 2.6×10^8 kg de POM et 3×10^7 kg de BC. Ces valeurs sont basées sur les estimations d'émission des feux pour la Mongolie au printemps 1997, obtenues à partir des estimations de surfaces brûlées (D. Lavoué, communication personnelle). J'ai supposé ici que les émissions de mai 1997 sont dues à cet épisode uniquement. Les valeurs choisies sont cohérentes avec les quantités observées par POLDER.

Deux simulations ont été réalisées : la première en incluant le dépôt tel qu'il est décrit dans le modèle, et la seconde en ôtant le dépôt. Les résultats sont présentés sur la Figure 4.14. Les images POLDER montrent très nettement la progression du panache au-dessus du Pacifique jusqu'au 14 mai.

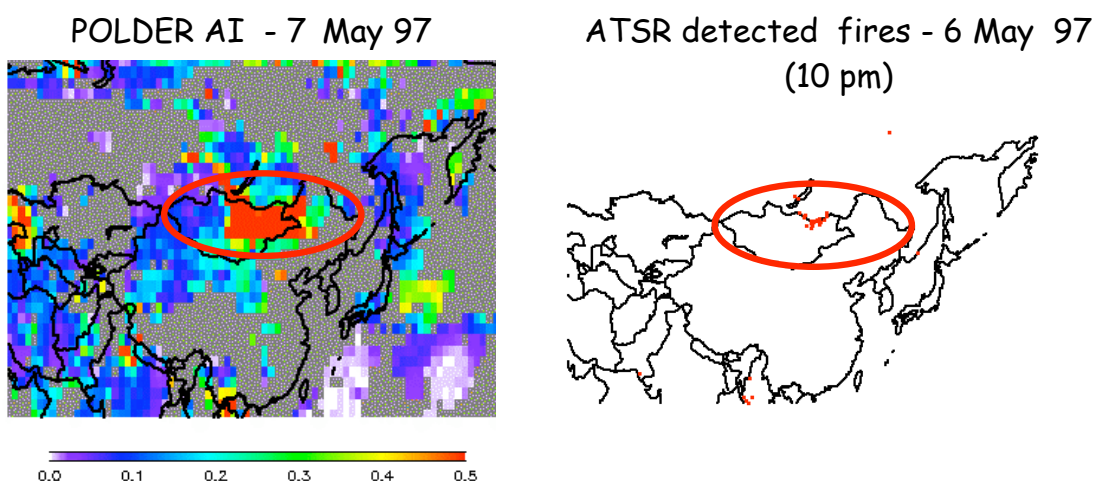


Figure 4.13 : Épisode ⑥. Détection des feux à l'origine de l'épisode le 6 Mai 1997 par ATSR (à droite) et du panache d'aérosols résultant observés par POLDER (à gauche). Le passage d'ATSR a précédé de 12h (le 6 à 22h, heure locale) le passage de POLDER (le 7 à 10h, heure locale). L'absence de nuages au-dessus de la zone a permis une identification précise du début de l'épisode étudié.

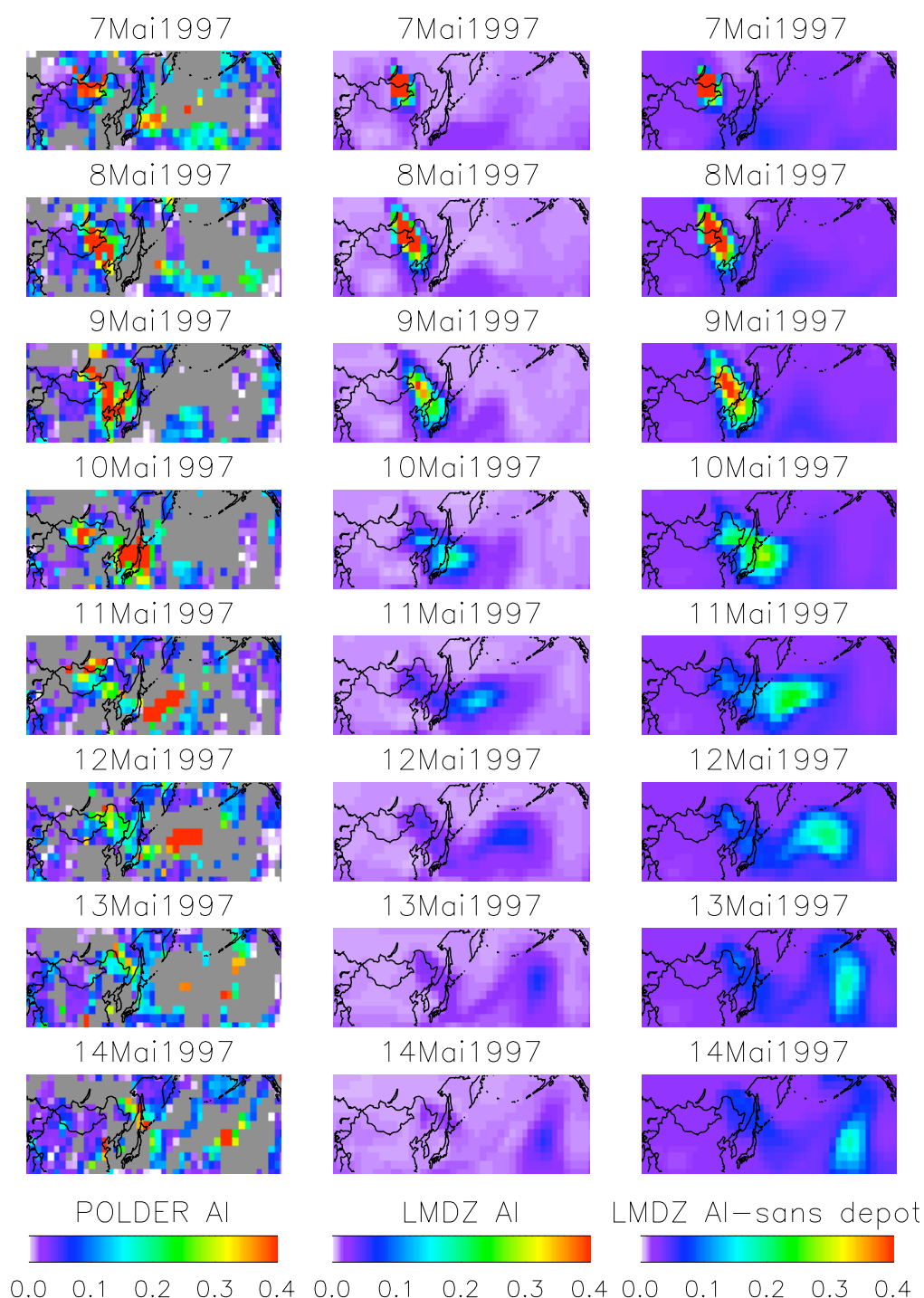


Figure 4.14 : Épisode 6. Comparaisons journalières de l'AI POLDER (à gauche) et de l'AI simulée par le LMDZ-INCA avec (au centre) et sans (à droite) dépôt entre le 7 et le 14 mai 1997. La simulation inclut uniquement les aérosols carbonés.

Concentrons nous tout d'abord sur la simulation avec dépôt. La progression du panache simulé est en accord avec les observations. La direction et la vitesse de transport sont ainsi correctement représentées dans le modèle. En revanche, on note qu'à partir du 9 mai, les quantités simulées deviennent inférieures aux observations alors que les quantités émises sont plutôt surestimées. La diminution des AI simulés au centre du panache entre le 8 et le 9 mai est d'un facteur 2 alors que rien n'indique

une perte aussi importante dans les observations. Les valeurs simulées continuent à décroître jusqu'à devenir négligeables à partir du 12. L'explication la plus probable est une surestimation du dépôt dans le modèle.

C'est pour tester cette hypothèse, que la simulation sans dépôt a été réalisée. Cette simulation inclut en fait toujours le dépôt sec, mais ôte les deux principales voies de dépôt, la sédimentation et le dépôt humide. Les résultats montrent que la perte de masse est significativement plus faible que dans la simulation incluant le dépôt. L'amélioration se note en particulier à proximité des sources. C'est une indication forte de la surestimation du dépôt (pour les aérosols carbonés principalement du dépôt humide) dans le modèle. On note cependant que les champs d'aérosols obtenus à partir de cette expérience semblent présenter un déficit en AI par rapport aux observations. Le dépôt sec qui est inclus dans cette simulation explique 1 à 2% de la perte de masse journalière. Mais cela ne semble pas justifier les différences observées. Il a été vérifié sur cette simulation en particulier que le modèle conserve bien la masse en global et à l'échelle de la fenêtre des cartes présentées. Le dépôt ne pouvant pas expliquer à lui seul les différences observées, une diffusion trop importante dans le modèle qui va avoir tendance à étaler la masse sur des distances plus étendues qu'elle ne l'est en réalité, permettrait d'expliquer une partie des différences.

Épisode ⑥

Le deuxième exemple que je présente pour le Pacifique se situe dans la même région. Sa spécificité par rapport à l'épisode ⑤ est que les aérosols transportés sont majoritairement des sulfates. C'est le seul épisode traité avec ce type de particules dans le chapitre ; d'où son intérêt. La Figure 4.15 présente les observations TOMS et les simulations du modèle à partir du 21 avril 1998 au-dessus de l'Asie. On note sur l'image TOMS un signal important localisé dans la région entre Shanghai et Pékin.

Le panache d'aérosols qui en résulte est visible plus de 10 jours sur les observations. Il se déplace d'abord vers le nord. À partir du 21, il sort du continent. Il se déplace vers l'Est régulièrement et atteint les côtes américaines le 24 avril, parcourant ainsi près de 12 000 km. Il est assez exceptionnel de pouvoir suivre par satellite un panache aussi intense sur de telles distances.

La zone d'émission du panache laisse peu de doute sur la nature des aérosols. Il s'agit probablement d'un épisode de pollution urbaine. Les activités urbaines génèrent des aérosols industriels et domestiques qui sont composés d'aérosols sulfatés et carbonés. La composition du panache simulé est en accord avec cela. Il indique la présence majoritaire d'aérosols sulfatés ainsi que d'aérosols carbonés en quantités plus faibles. Le déplacement du panache dans le modèle est en accord avec les observations. La direction, la vitesse de déplacement et les distances parcourues sont cohérentes avec les données. Les comparaisons quantitatives ne sont pas possibles sur cet exemple car les données POLDER ne sont pas disponibles. Cependant, on note que le gradient des données TOMS entre le 21 et le 23 avril est faible alors qu'il est important dans les valeurs simulées. C'est une indication forte que le panache simulé perd plus rapidement de la masse que ne le suggèrent les observations.

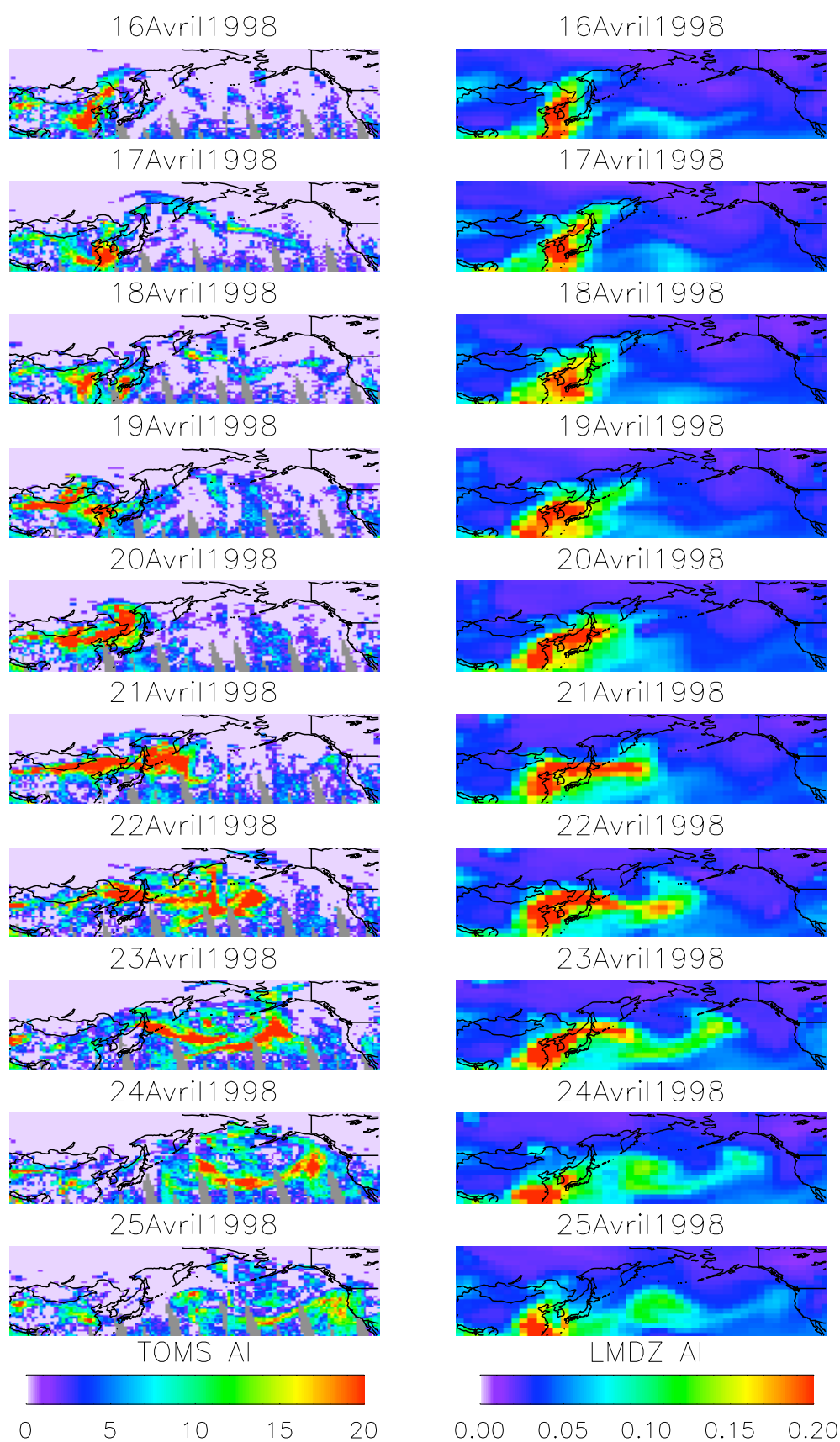


Figure 4.15 : Épisode 6. Comparaisons journalières de l'AI TOMS (à gauche) et simulée par le LMDz-INCA entre le 16 et le 25 avril 1998. Seuls les aérosols carbonés et sulfatés sont considérés.

4.3.2 Les exports du continent américain

Épisode 7

Les exports du continent américain vers le Pacifique proviennent en général d'Amérique Centrale. Une activité de feux particulièrement exceptionnelle a eu lieu en mai 1998. La majorité des feux ont été initiés par les agriculteurs qui nettoient ainsi leurs champs. Cependant, des sécheresses sévères supposées liées à l'événement El Niño de 1997/1998, ont favorisé l'activité des feux (Plusieurs instruments de la NASA ou de l'ESA ont détecté ces événements, <http://earthobservatory.nasa.gov> ou http://earth.esa.int/ew/fires/central_america_98). L'épisode présenté est remarquable car le panache est propagé à la fois vers l'océan Atlantique et vers le Pacifique.

La Figure 4.16 présente les comparaisons entre TOMS et LMDz-INCA. La première image est celle du 14 mai. Le panache s'est déjà propagé vers la mer des Caraïbes. Le 15 il atteint le nord-est des Etats-Unis. À partir du 16 mai, un panache se développe du Mexique vers l'océan Pacifique. Il progresse régulièrement et est visible sur les images TOMS jusqu'au 21 mai. Dans le modèle, la distribution des aérosols le premier jour est en accord avec les observations, ce qui nous permet de raisonner à partir de conditions initiales similaires. Le transport vers le Nord-est est correctement représenté dans le modèle en termes de direction et de vitesse de déplacement. Le panache qui se dirige vers l'océan Pacifique se développe à la même date et progresse de manière cohérente avec les observations. Le dernier jour, le panache simulé semble s'être propagé plus loin que dans les observations. Dans cet épisode, on observe donc une représentation du panache assez cohérente avec l'observation, même si la diffusion dans le modèle apparaît légèrement trop forte.

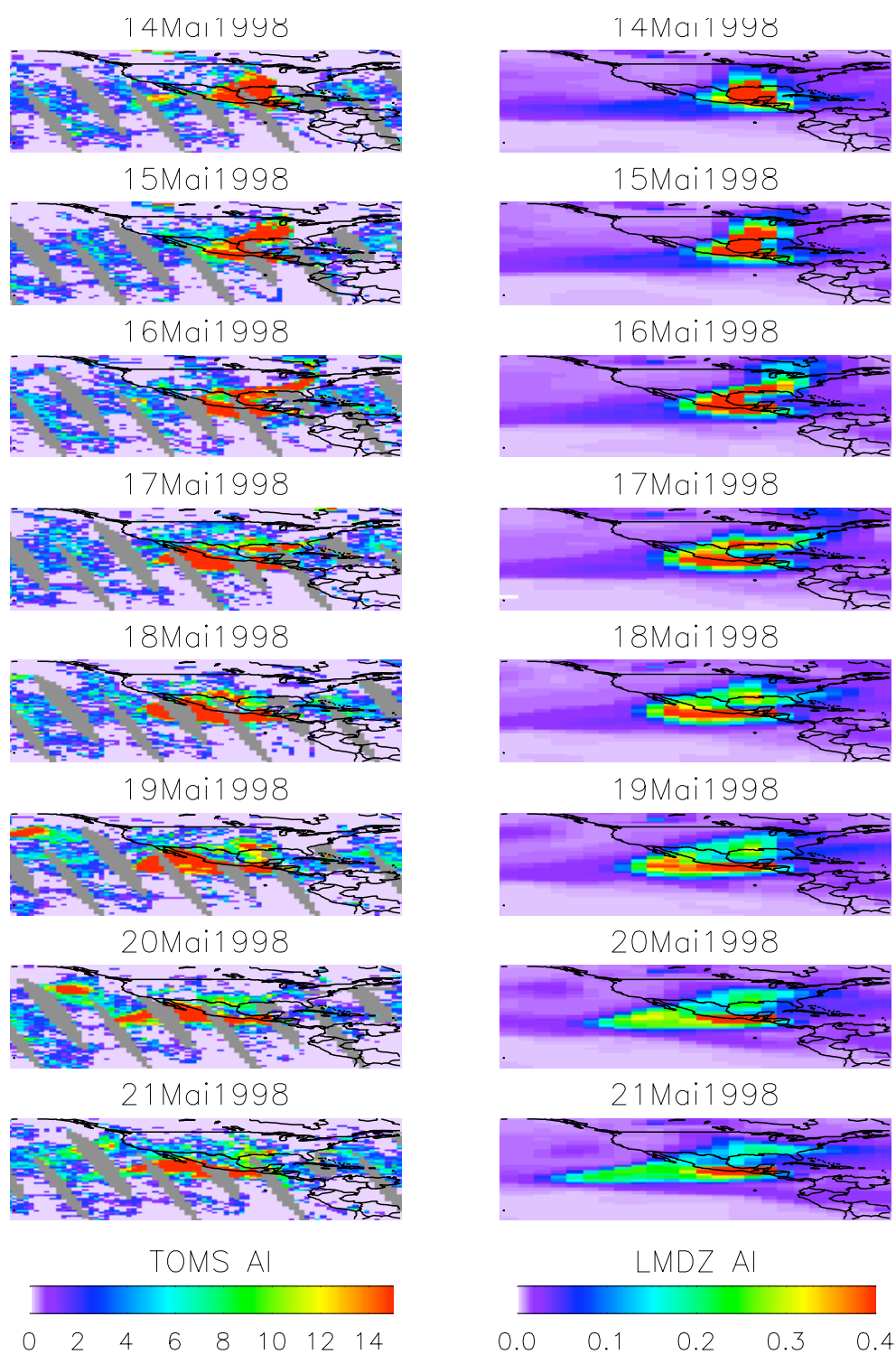


Figure 4.16: Épisode 7. Comparaisons journalières de l'AI TOMS (à gauche) et simulé par le LMDz-INCA entre le 14 et le 21 mai 1998. Seuls les aérosols carbonés sont inclut dans la simulation.

4.4 Vers l'océan Indien

L'océan Indien est influencé par plusieurs zones sources d'aérosols. Cependant, on y observe que rarement des transports à très longue distance d'événements bien individualisés. Dans certains cas, les feux du Sud de l'Afrique peuvent engendrer des panaches qui sont transportés vers l'océan Indien. Nous en avons vu un exemple avec l'épisode ③. De même, il arrive fréquemment que des panaches résultants d'épisodes de pollution, des feux ou des poussières désertiques soient transportés du continent asiatique vers l'océan Indien via le Golfe de Bengale ou la mer d'Arabie. Cependant, le transport des aérosols ne se fait pas sur de longues distances au-dessus des océans. Leur étude est donc difficile à la résolution spatiale du modèle. En revanche, les feux en Indonésie sont une source d'aérosols importante pour l'océan Indien. Les panaches résultants peuvent parcourir plusieurs milliers de kilomètres. Ces cas sont cependant rares. Les feux très importants en Indonésie, qui génèrent des panaches d'aérosols carbonés, résultent d'une sécheresse locale liée à l'événement interannuel El Niño (tous les 4 ans environ). La période de l'événement de 1997/1998 a été couverte par l'instrument TOMS. Plusieurs épisodes qui sortent de l'Indonésie et qui atteignent l'Inde sont visibles. Cependant, nous avons traité spécifiquement cette région dans le chapitre 3. La capacité du modèle à reproduire une extension spatiale correcte est clairement montrée dans le chapitre précédent à partir des moyennes mensuelles. De plus, les observations POLDER n'étant pas disponibles pour ces périodes particulières, je ne pourrai pas apporter d'éléments supplémentaires par rapport au chapitre précédent. C'est pourquoi je ne présenterai pas d'autres exemples dans cette région.

4.5 Conclusion

Le suivi d'épisodes particuliers permet d'analyser la capacité du modèle à transporter des aérosols. Nous avons étudié quelques cas pour lesquels la source était bien identifiée et que l'on pouvait suivre sur plusieurs jours. Lorsque la source standard du modèle n'était pas satisfaisante, nous l'avons modifiée afin de bien reproduire les conditions initiales du transport. On peut ainsi distinguer les éventuelles déficiences du modèle dues aux processus de transport (au sens large) de celles dues aux sources. Cette distinction n'est pas possible lorsque l'on analyse des moyennes mensuelles par exemple.

Les exports de matière vers l'océan Atlantique se font généralement à partir de l'Afrique et de l'Amérique du Nord. À partir de l'analyse de 4 exemples d'exports d'aérosols caractéristiques, j'ai montré que le modèle était capable de simuler de manière satisfaisante la direction, la diffusion, la vitesse de déplacement des panaches et les distances parcourues dans l'Atlantique Nord et, au Sud, dans le bassin d'Angola. Notons qu'une représentation correcte des vitesses de déplacement est une indication forte que la majorité des aérosols du panache sont transportés à la bonne altitude. En revanche, l'analyse de ces épisodes a mis en avant un déficit important du modèle dans la représentation des distributions d'aérosols dans le Golfe de Guinée. Ce désaccord semble être dû à une surestimation du dépôt humide à proximité des régions sources. De manière générale, le modèle présente systématiquement une perte de masse plus importante que ce qui est observé entre les régions sources et les régions éloignées.

Trois exemples illustrant les transports d'aérosols carbonés et sulfatés d'Asie et d'Amérique Centrale vers l'océan Pacifique ont été analysés. Le modèle semble

particulièrement efficace pour représenter la direction, la vitesse de propagation et les distances parcourues par les panaches dans le Pacifique Nord. En revanche, les quantités simulées deviennent au cours du déplacement plus faibles que dans les observations, y compris lorsque les émissions sont volontairement surestimées. Ce déficit est encore cohérent avec une surestimation du dépôt humide dans le modèle. Cependant, il s'avère qu'une diffusion trop forte dans le modèle semble jouer un rôle important dans les différences observées. Elle peut expliquer que la masse soit conservée dans le modèle mais répartie sur une surface plus étendue que dans les observations, ce qui accentue le déficit.

Enfin, dans l'océan Indien, les exemples de pollution concernent surtout les épisodes de feux en Indonésie. L'analyse spécifique de cette région effectuée au chapitre 3 indique que le modèle y reproduit correctement la distribution spatiale des aérosols.

À la suite de cette analyse, le modèle peut être considéré comme suffisamment efficace pour nos fins d'assimilation. Notons cependant que l'approche utilisée ici a ses limites. D'une part, les validations effectuées concernent des épisodes ponctuels. Bien que j'aie pris soin de conserver des épisodes représentatifs des grands types de transport et des différents types de particules, il est difficile d'assurer une généralisation. De plus, un autre aspect majeur du point de vue du transport n'a pas pu être étudié. Il s'agit du transport vertical des aérosols. Dans ce domaine, nous ne possédons pas encore de données suffisantes et globales pour mener une telle comparaison. Nous attendons beaucoup des données de la mission future CALIPSO. Enfin, il est possible que le calcul des propriétés optiques des aérosols influe sur les quantités d'aérosols présentes au fur et à mesure que l'on s'éloigne des sources. Le chapitre 5 nous permettra de vérifier cette éventualité.

Chapitre 5

Le calcul des épaisseurs optiques dans le LMDz-INCA

5.1	Introduction.....	94
5.2	Méthode	94
5.2.1	Principe général	94
5.2.2	Dans LMDz-INCA.....	95
5.3	Analyse des résultats	97
5.3.1	Modifications à l'échelle planétaire et annuelle	97
5.3.2	Analyse par régions.....	98
5.3.3	Moyennes mensuelles aux stations de mesures	99
5.4	Conclusion.....	104

5.1 Introduction

Dans ce chapitre, j'améliore la prise en compte de l'humidité relative dans le calcul de l'épaisseur optique (AOT) du modèle LMDz-INCA. L'AOT correspond à la variable la plus communément utilisée pour lier les modèles aux observations. Elle correspond à un produit standard délivré par les inversions satellitaires et peut être mesurée depuis le sol pratiquement sans hypothèses par les photomètres. À l'inverse, les modèles décrivent la masse et/ou le nombre des particules. Ainsi, le passage des masses simulées aux AOT nécessite des hypothèses. C'est une étape essentielle pour la validation des modèles, mais les hypothèses choisies peuvent engendrer des erreurs apparentes.

Dans cette étude, des améliorations ont été apportées pour prendre en compte l'effet de l'humidification sur le calcul de l'AOT. La version corrigée du modèle INCA est évaluée en utilisant les mesures depuis le sol du réseau AERONET ; les modifications apportées par rapport à la version standard sont analysées. Cette étude permet ainsi d'évaluer la version du modèle qui sera utilisée pour l'assimilation des données.

5.2 Méthode

5.2.1 Principe général

L'épaisseur optique des aérosols (AOT) est calculée à partir de la masse simulée en suivant la relation (par exemple [Lacis and Mishchenko, 1994; Tegen and Lacis, 1996]) :

$$\tau = \frac{3QM}{4\rho r_e} \quad \text{Équation 5.1}$$

où τ correspond à l'AOT, M à la masse d'aérosols par colonne simulée, ρ à la densité des particules, r_e au rayon effectif et Q à l'efficacité d'extinction. Le rayon effectif d'une distribution en taille de particules est défini par : $\int_r r \pi r^2 f(r) dr / \int_r \pi r^2 f(r) dr$ où $f(r)$ est la fraction de particules dont le rayon est compris entre r et $r+dr$. Q est l'efficacité d'extinction en moyenne sur la distribution en taille ; il peut être calculé par la théorie de Mie à partir de la distribution en taille et l'indice de réfraction ($Q(r/\lambda, n)$). Q , et donc τ , dépendent de la longueur d'onde.

Les aérosols (à l'exception des poussières désertiques) ont une hygroscopicité qui dépend de l'humidité relative. Ainsi la quantité d'eau capturée par différents types d'aérosol est variable et le facteur de croissance hygroscopique, défini comme le rapport entre le rayon efficace de la distribution de particules et le rayon efficace des particules sèches ($r_e/r_{e,dry}$), fournit une quantification de ces variations. Il peut varier, par exemple, de 50% environ entre 50 et 90% d'humidité relative pour les aérosols carbonés. Le Tableau 5.1 présente les variations de ce facteur en fonction du type d'aérosols telles qu'utilisées dans l'étude de [Chin et al., 2002].

Toutes les quantités de l'équation 5.1 sont modifiées sous les effets de l'humidification. La masse d'aérosol correspond en fait à la somme de la masse sèche

M_d de la particule d'aérosol et de la masse de l'eau qui est capturée ; la densité est la combinaison des densités de l'aérosol sec ρ_d et de l'eau ρ_w et s'approxime $\rho = f_d \rho_d + (1 - f_d) \rho_w$ où f_d représente le volume de l'aérosol sec à l'intérieur de la particule d'aérosol. De même, l'indice de réfraction utilisée pour calculer Q est la combinaison de l'indice de réfraction de l'eau et de celui de l'aérosol sec. [Chin et al., 2002] écrit la relation entre l'AOT et la masse sèche de manière à ce que tous les effets de l'humidification soient contenus dans un seul terme β tel que :

$$\tau = \beta M_d \text{ avec } \beta = \frac{3QM}{4\rho_e M_d} \quad \text{Équation 5.2}$$

Cette étude présente les variations de β en fonction de l'humidité relative et montre que les valeurs de β à 500 nm et à 80% d'humidité relative pour les sulfates, les sels marins et les OC sont 2 à 3 fois supérieures aux valeurs à 0%. Les valeurs à 99% d'humidité relative sont plus grandes d'un facteur 10 pour les sulfates et les OC et 20 pour les sels marins. Les variations avec l'humidité relative ne sont donc pas négligeables et génèrent à elles seules une incertitude importante sur les valeurs d'AOT.

RH (%)	0	50	70	80	90	95	99
Sulfate	1	1.4	1.5	1.6	1.8	1.9	2.2
OC	1	1.2	1.4	1.5	1.6	1.8	2.2
BC	1	1.0	1.0	1.2	1.4	1.5	1.9
Sea Salt	1	1.6	1.8	2.0	2.4	2.9	4.8

Tableau 5.1 Facteur de croissance hygroscopique $r_e/r_{e,dry}$ pour différentes valeurs de l'humidité relative (RH). D'après [Chin et al., 2002]

5.2.2 Dans LMDz-INCA

Dans le modèle INCA, le calcul des épaisseurs optiques se fait actuellement selon l'hypothèse de mélange externe (par opposition au mélange interne). Tout se passe comme si les différentes espèces d'aérosols qui contribuent à l'épaisseur optique dans une colonne d'atmosphère sont collées les unes aux autres sans entraîner de modifications de la structure interne. Les épaisseurs optiques de chaque espèce sont calculées indépendamment des autres. L'eau capturée par une particule d'une espèce donnée va accroître son rayon. Cet effet est pris en compte dans le modèle par le calcul du nouveau rayon de la particule, r_h (rayon humide). La méthode de calcul repose sur la paramétrisation de [Gerber, 1991]. Le taux de croissance en fonction de l'humidité relative est donné pour une espèce relativement à une autre, le poids attribué à chaque espèce étant fixé empiriquement. r_h intervient dans le calcul de l'AOT selon l'équation 5.1 que l'on peut réécrire :

$$\tau = C(r_h, Q_{aer}) \times M_{aer} \quad \text{Équation 5.3}$$

où C est le coefficient qui permet de convertir les masses dans la colonne d'atmosphère en AOT. Il s'exprime en m^2/g . C dépend du rayon humide de la particule et du coefficient d'extinction, Q , qui dépend lui-même de l'indice de réfraction de la particule. Le calcul dans INCA fait ainsi intervenir le coefficient d'extinction de l'aérosol pur et s'applique à la masse sèche. Cette approche n'est pas satisfaisante car elle néglige la contribution de la masse de l'eau dans les valeurs d'AOT. C'est cette erreur que nous avons corrigée. L'AOT est désormais calculée de la manière suivante :

$$\tau = C(r_h, Q_{aer+eau}) \times (M_{aer} + M_{eau}) \quad \text{Équation 5.4}$$

M_{eau} , correspond à la masse d'eau qui est capturée par espèce d'aérosols. Elle est obtenue à partir de la masse totale d'aérosols dans chaque mode, la répartition par espèces suivant des proportions fixées empiriquement (par cohérence avec le calcul de r_h). Des tables d'efficacité d'extinction (Q) sont utilisées (Y. Balkanski, communication personnelle). Elles sont obtenues pour des valeurs fixées d'humidité relative (0, 50, 70, 80, 90, 95 et 99%) et de rayon humide. À partir des valeurs fixées d'humidité relative et de rayon, on estime la masse d'eau capturée par l'aérosol et l'indice de réfraction du mélange homogène aérosol sec + eau qui sont utilisés pour le calcul de Q . Notons que la masse d'eau qui intervient dans le calcul de Q est estimée indépendamment de M_{eau} qui est calculée en ligne dans le modèle. Des travaux sont en cours pour prendre en compte ces deux estimations de manière analogue. Ils n'interviendront pas dans la version utilisée dans la suite de cette étude. La Figure 5.1 schématise le principe du calcul de l'AOT dans les versions standard et corrigée du modèle.

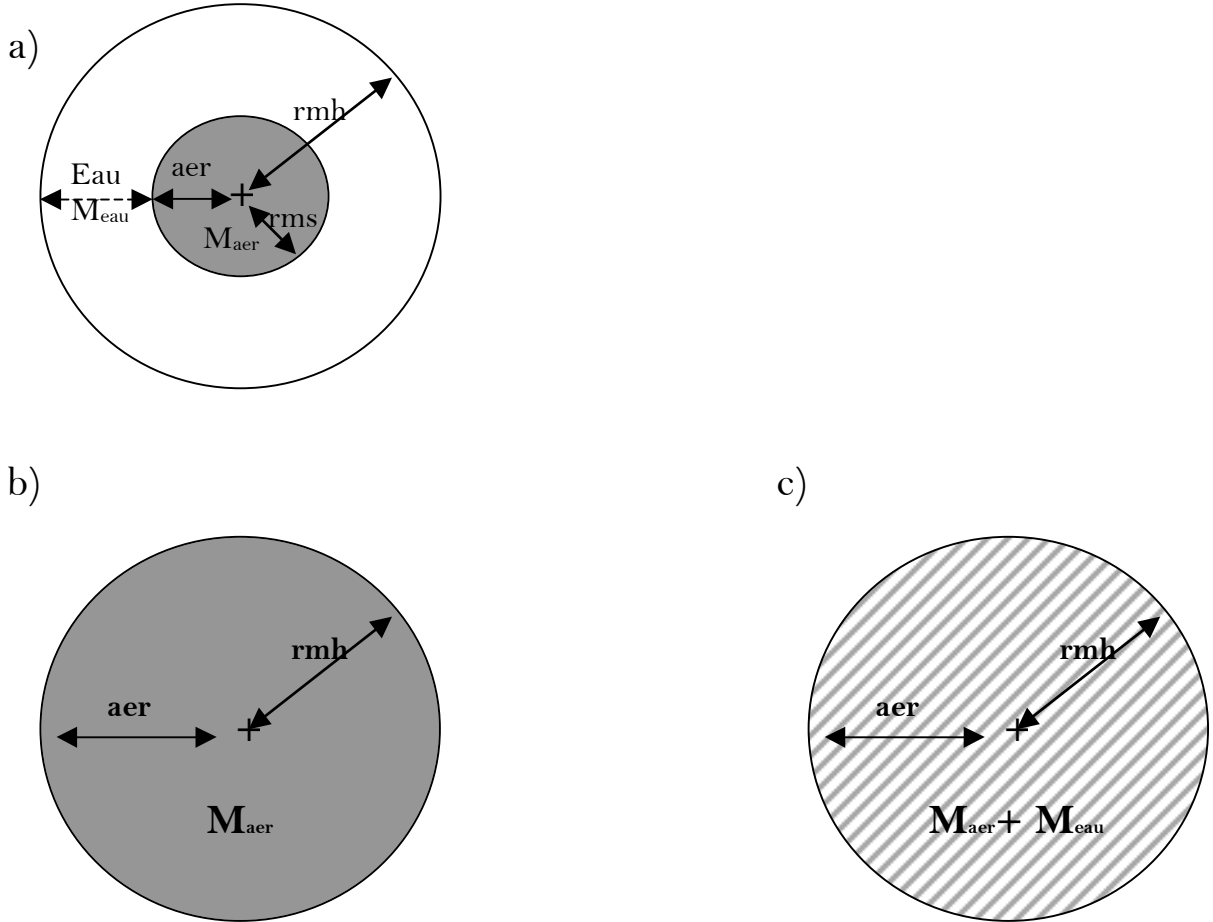


Figure 5.1 Schématisation du calcul de l'AOT dans INCA. a) La particule d'aérosol de rayon sec r_{ms} capture une quantité d'eau qui lui permet d'accroître son rayon jusqu'à la taille r_{mh} (rayon médian humide). La masse de l'eau est M_{eau} et la masse de l'aérosol sec est M_{aer} . b) Dans la version standard, le calcul de l'AOT prend en compte la modification de la taille de la particule en fonction de l'humidité relative (r_{mh}). c) Dans la version corrigée, l'AOT est calculée à partir du rayon humide en tenant compte de la masse de l'eau et d'un mélange homogène eau+aérosol.

5.3 Analyse des résultats

5.3.1 Modifications à l'échelle planétaire et annuelle

Les modifications apportées au calcul de l'AOT vont tendre à augmenter les valeurs simulées car on apporte une correction positive (due à la prise en compte de la masse de l'eau). Afin d'estimer le « gain » en AOT, on analyse ici les différences entre la simulation initiale et celle qui inclut les modifications. On se concentre sur l'année 2000. Pour cette année, l'épaisseur optique totale en moyenne globale a augmenté de près de 50%.

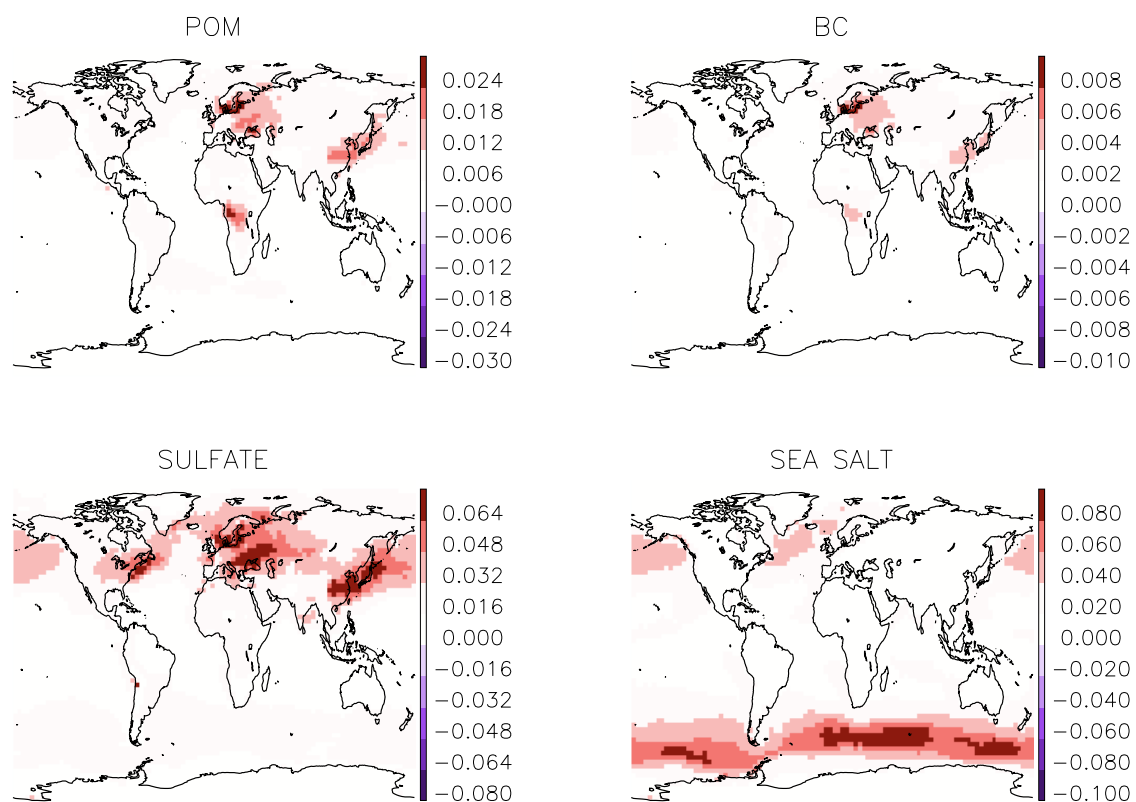


Figure 5.2 : Moyenne annuelle de la différence d'AOT entre la simulation initiale et celle qui inclut les modifications liées à une meilleure prise en compte de l'humidité relative. Les résultats sont présentés par espèces d'aérosols. Les poussières désertiques ne sont pas présentées car elles sont considérées comme des particules non solubles, le calcul de leur AOT n'a pas été altéré.

La Figure 5.2 nous permet de visualiser les régions pour lesquelles l'augmentation de l'AOT par espèce a été particulièrement importante. Les particules les moins hydrophiles sont les aérosols carbonés, notamment les BC. L'augmentation des valeurs d'AOT pour ces particules n'est cependant pas négligeable (30% pour les POM et 20 % pour les BC en moyenne annuelle pour 2000). Elle est concentrée sur les régions sources (agglomérations et régions de feux de biomasse). Les valeurs d'AOT pour les aérosols sulfatés ont augmenté de plus de 80% en moyenne annuelle. C'est dans l'hémisphère Nord, dans les régions de forte urbanisation, que les principales modifications sont observées. Il est intéressant de noter que les valeurs sont également augmentées au-dessus des océans, notamment dans le Pacifique où nous avons mis en avant une sous-estimation des distributions d'aérosols (se

reporter aux épisodes 5 et 6 décrits au chapitre 5). Enfin, les sels marins sont les particules les plus hydrophiles. L'augmentation des valeurs d'AOT est de 110% en moyenne annuelle pour ces particules. La Figure 5.2 montre que cette augmentation est localisée dans la bande de latitudes entre 45°S et 60°S. Les différences indiquées ici à titre d'exemple pour l'année 2000 sont similaires pour 1997.

5.3.2 Analyse par régions

Les aérosols sont des particules à courte durée de vie. Ils ont donc des distributions spatiales très hétérogènes. Pour mieux analyser leur distribution, j'ai été amené à découper le globe en régions « homogène » en termes de distribution par types d'aérosols et/ou processus (par exemple, distinction entre régions sources et régions océaniques, régions à dominantes d'aérosols carbonés ou de poussières désertiques ...). Ce découpage en régions sera discuté plus en détail au chapitre suivant car c'est essentiellement pour la mise en place de l'assimilation qu'il a été élaboré. Cependant, je l'utilise ici pour interpréter les résultats liés à la prise en compte de la masse de l'eau dans le calcul de l'AOT. Le globe est divisé en huit régions continentales et deux régions océaniques dont je note ci-dessous les appellations :

AFN : Afrique du Nord

AFS : Afrique du Sud

AMN : Amérique du Nord

AMS : Amérique du Sud

Europe : Europe

Asie : Asie

HLN : Régions boréales de l'Hémisphère Nord

Australie : Australie

OCNFree : Régions océaniques proches des continents

OCFree : Régions océaniques éloignées des continents

World : le globe

L'océan a été divisé en deux régions pour distinguer les zones proches des sources continentales, des zones relativement vierges d'aérosols en provenance des continents. Dans chaque région, des stations de mesures d'AOT du réseau AERONET sont présentes. On pourra se reporter à la figure 6.3 (chapitre 6) pour visualiser la division en régions. Je présente sur les Figure 5.3 à Figure 5.5 les courbes d'AOT simulées en fonction des valeurs mesurées (« scatterplots »). Chaque point sur les graphes correspond à la comparaison entre la moyenne journalière de l'AOT mesurée et la valeur simulée au point de grille correspondant à la position de la station. Les résultats sont présentés pour le mode grossier et le mode fin pour les deux versions du modèle et pour l'année 2000. On s'intéressera en particulier au coefficient de corrélation et à la pente de la droite de régression, les valeurs étant indiquées sur les figures pour chaque région.

Dans le cas du mode grossier (Figure 5.3 et Figure 5.4), seules les modifications apportées aux poussières désertiques et aux sels marins interviennent. Or les poussières sont hydrophobes, ce qui explique que les différences entre les deux versions du modèle soient nulles dans les régions continentales. Les sels marins sont en revanche les particules les plus hydrophiles. On ne note cependant pas de différences significatives, y compris dans les régions océaniques. Une explication probable est qu'il n'existe pas de stations de mesures AERONET dans les régions où la présence de ce type de particules est forte. Si l'on se reporte à la Figure 5.2 où sont présentées les régions où les modifications sont notables pour les sels marins, alors on constate qu'il n'y a pas de recouvrement avec des stations de mesures

AERONET. On ne peut donc pas juger de l'amélioration apportée sur la représentation de ce type de particules dans le modèle, faute de mesures.

Dans le cas du mode fin (Figure 5.5 et Figure 5.6), les apports dus aux modifications sont mitigés. D'une part, les valeurs des pentes des droites de régression sont augmentées systématiquement dans chaque région. L'équation de la droite de régression étant choisie telle que $y = ax$, l'augmentation de a indique que la sous-estimation des valeurs d'AOT ($a < 1$ dans la version initiale) est partiellement corrigée (a augmente dans la nouvelle version du modèle mais reste inférieur à 1). Les améliorations les plus notables concernent les principales régions industrialisées de l'hémisphère Nord (l'Europe, l'Asie, l'Amérique du Nord) et les régions océaniques proches des continents. Ces résultats valident de manière quantitative et par rapport aux mesures l'information qui est contenue dans les cartes de la Figure 5.2. D'autre part, les corrélations¹ sont en général dégradées, ce qui indique que la variabilité est moins bien représentée dans la version corrigée. Dans les régions de feux de biomasse, dans lesquelles les aérosols carbonés sont dominants, la corrélation est soit sensiblement égale soit améliorée. C'est le cas pour les deux régions d'Afrique et l'Amérique du Sud. En revanche, dans les principales régions industrialisées, pour lesquelles les modifications sont essentiellement liées aux sulfates, la perte de corrélation est importante. La région « WORLD » qui correspond aux résultats pour la totalité du globe permet de visualiser les différences caractéristiques entre les deux versions du modèle. On constate que la perte de corrélation entre les deux versions s'explique par les points qui correspondent à des valeurs mesurées (AERONET) faibles, inférieures à 0.2, et des valeurs simulées supérieures à 0.2. On note que cette dispersion correspond aux régions dominées par les aérosols sulfatés. Dans ce contexte, on va s'intéresser aux résultats du modèle à des stations de mesures choisies dans les régions de fortes modifications d'AOT.

5.3.3 Moyennes mensuelles aux stations de mesures

La Figure 5.7 présente les dix stations AERONET choisies pour évaluer l'impact de la prise en compte de l'humidité relative et de la masse de l'eau dans le calcul de l'AOT. Les stations ont été sélectionnées pour leur série temporelle complète pour l'année 2000 et/ou leur localisation dans les zones de fortes modifications des valeurs d'AOT (voir Figure 5.2). Six stations sont situées en Amérique du Nord dont 3 sur la côte Est, une en Europe, une au Moyen Orient et une en Asie. Ces stations permettent d'étudier l'impact des modifications dans les régions industrielles principalement. Enfin, une dernière station est choisie au Sud de l'Amérique latine car elle est la plus proche de la bande de latitudes entre 45°S et 60°S, caractéristique de la présence de sels marins, avec des données pour l'année 2000.

¹ La corrélation est définie par $r = \frac{\sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})}{\sqrt{\sum_{i=1}^N (x_i - \bar{x})^2 (y_i - \bar{y})^2}}$ où x, y sont des vecteurs de N éléments.

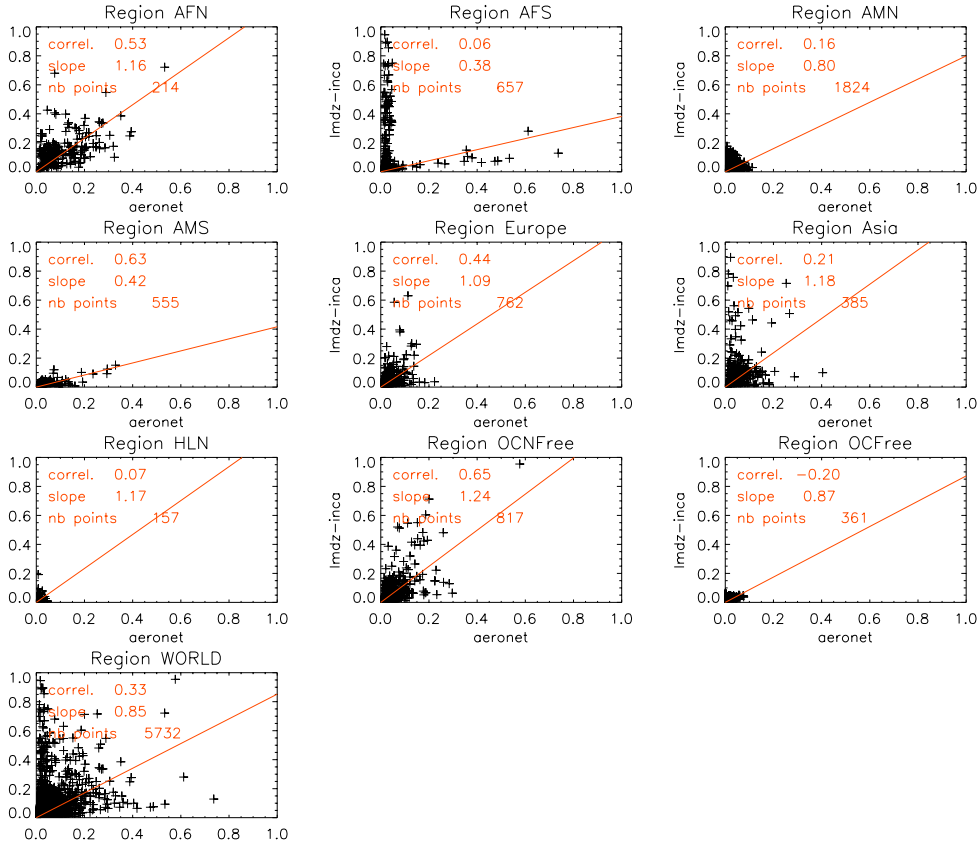


Figure 5.3 : Moyennes journalières d'AOT simulées (version standard) en fonction des mesures AERONET pour le mode grossier

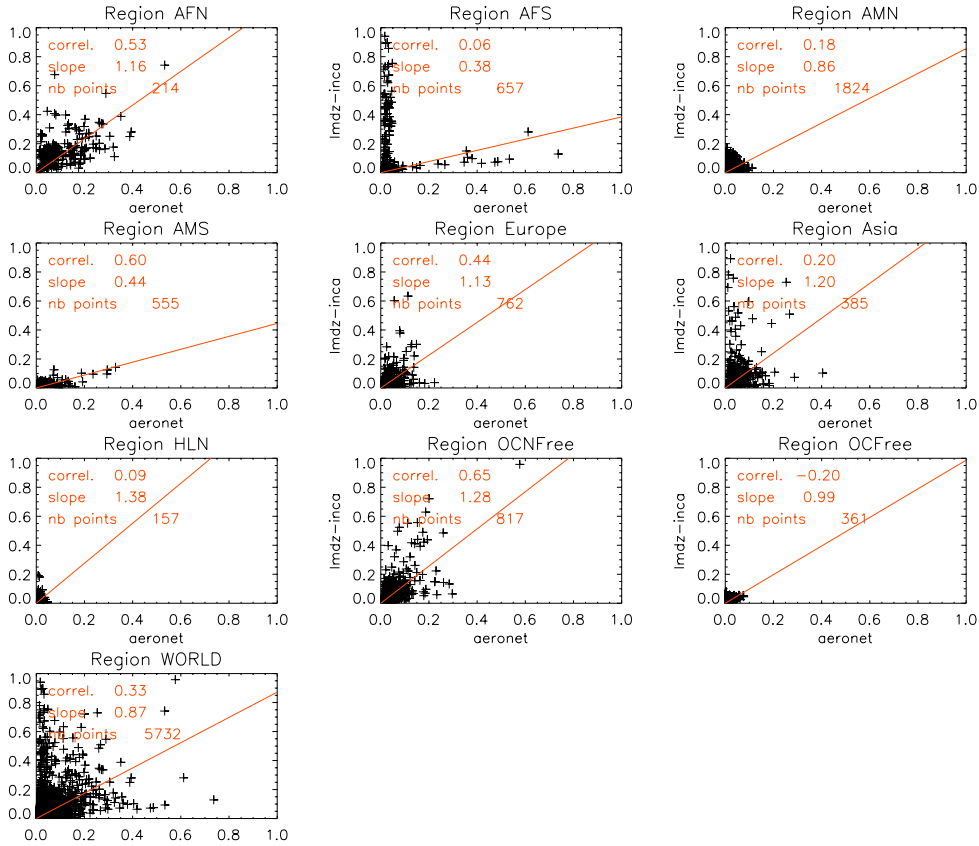


Figure 5.4 Moyennes journalières d'AOT simulées (version corrigée) en fonction des mesures AERONET pour le mode grossier

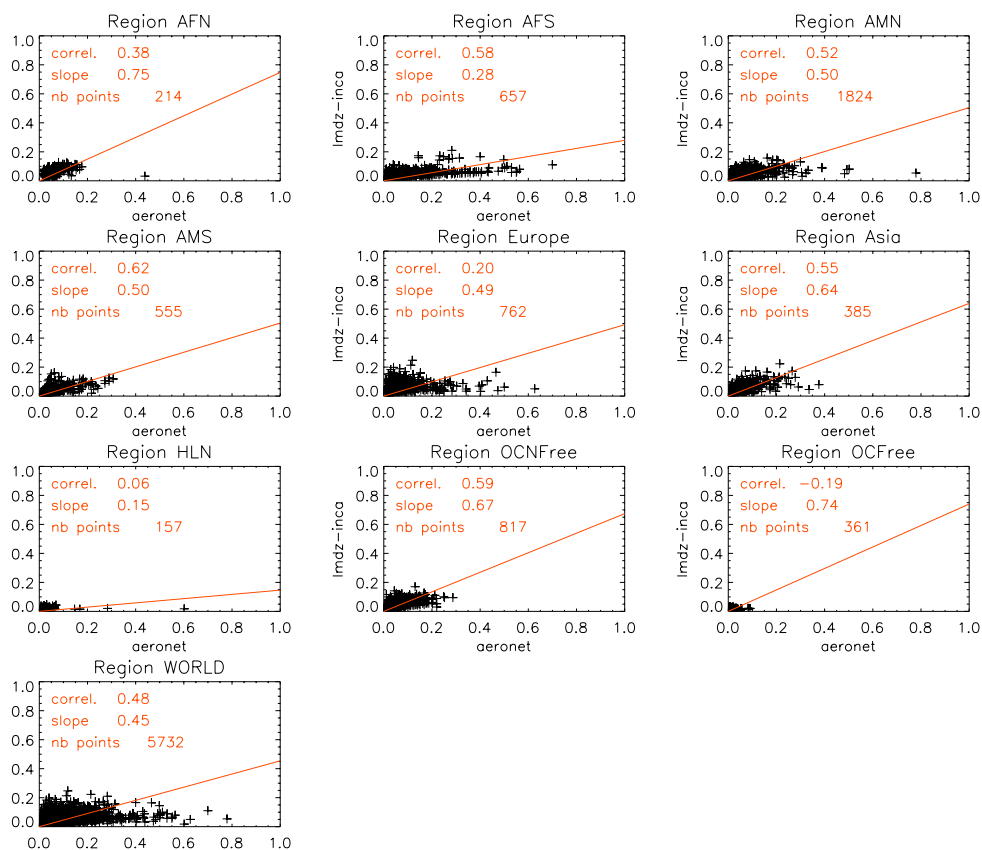


Figure 5.5 Moyennes journalières d'AOT simulées (version standard) en fonction des mesures AERONET pour le mode fin

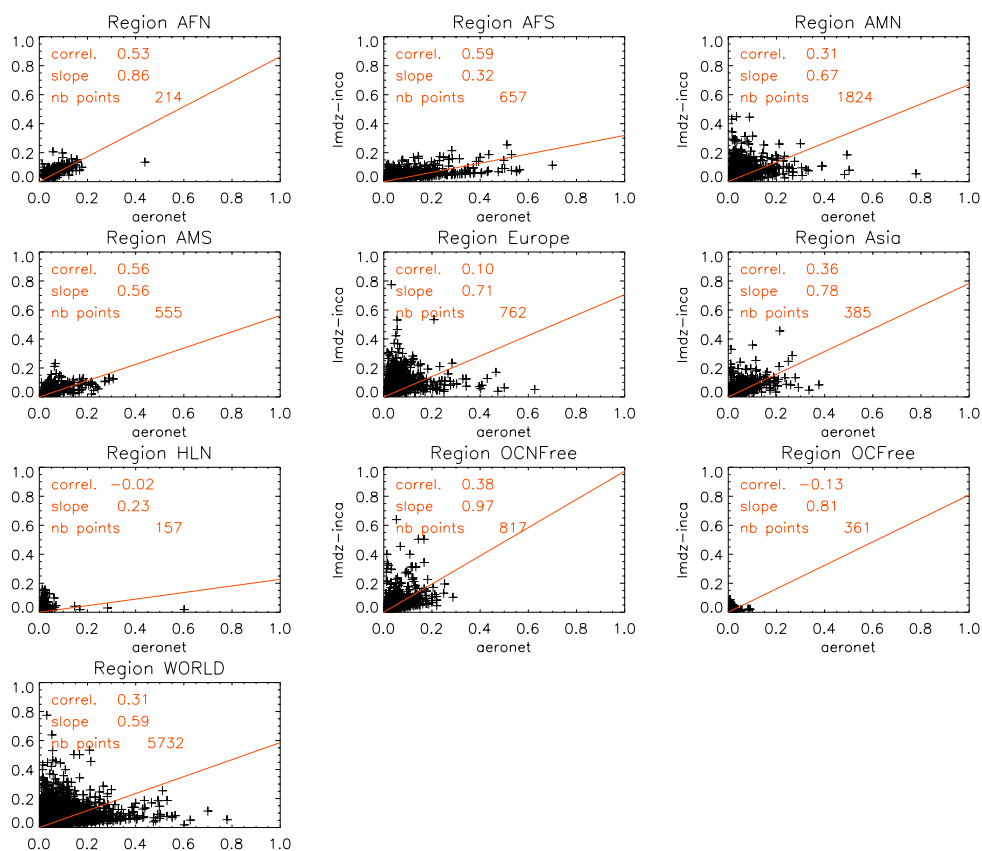


Figure 5.6 : Moyennes journalières d'AOT simulées (version corrigée) en fonction des mesures AERONET pour le mode fin



Figure 5.7 : stations AERONET sélectionnées (triangle) pour l'étude.

La Figure 5.8 présente les moyennes mensuelles des AOT à 550 nm mesurées aux stations sélectionnées et simulées par les versions standard et modifiée de INCA. Les trois stations de la côte Est des Etats-Unis (Cove, Wallops et GSFC) montrent que la version modifiée permet de mieux représenter l'amplitude du cycle saisonnier des AOT. En revanche, les faibles valeurs d'AOT sont moins bien représentées. En effet, on constate que les variations d'AOT pour les mois d'hiver (en particulier janvier et décembre) ne sont pas aussi satisfaisantes que dans la version standard du modèle. Ces cas peuvent expliquer en partie la perte de corrélation observée sur la Figure 5.6. Les deux autres stations à l'Est des Etats-Unis (Bondville et Egbert) montrent une amélioration de la représentation du cycle des AOT. La station située sur la côte Ouest des Etats-Unis (Tucson) met en avant une surestimation des valeurs d'AOT simulées par la version modifiée par rapport aux mesures. En Europe, à Venise, on note que les valeurs d'AOT des mois d'hiver et de printemps ont été réajustées au niveau observé. En Asie, le peu de données disponibles en 2000 ne permet pas d'analyser les modifications apportées. À Anmyon, les quelques mesures fournissent uniquement des indications d'une meilleure représentation de l'AOT par la version modifiée du modèle. Enfin, la station de Ceilap BA choisie au Sud de l'Amérique latine est sous l'influence des aérosols carbonés émis plus au Nord par les feux de biomasse (visible sur le cycle saisonnier d'AOT de juillet à novembre) et des sels marins. Les valeurs d'AOT simulées par la version standard sont sous-estimées d'un facteur 2. Une partie de cette sous-estimation est corrigée en prenant en compte l'effet de l'humidification des sels marins. Les valeurs simulées restent sous-estimées.

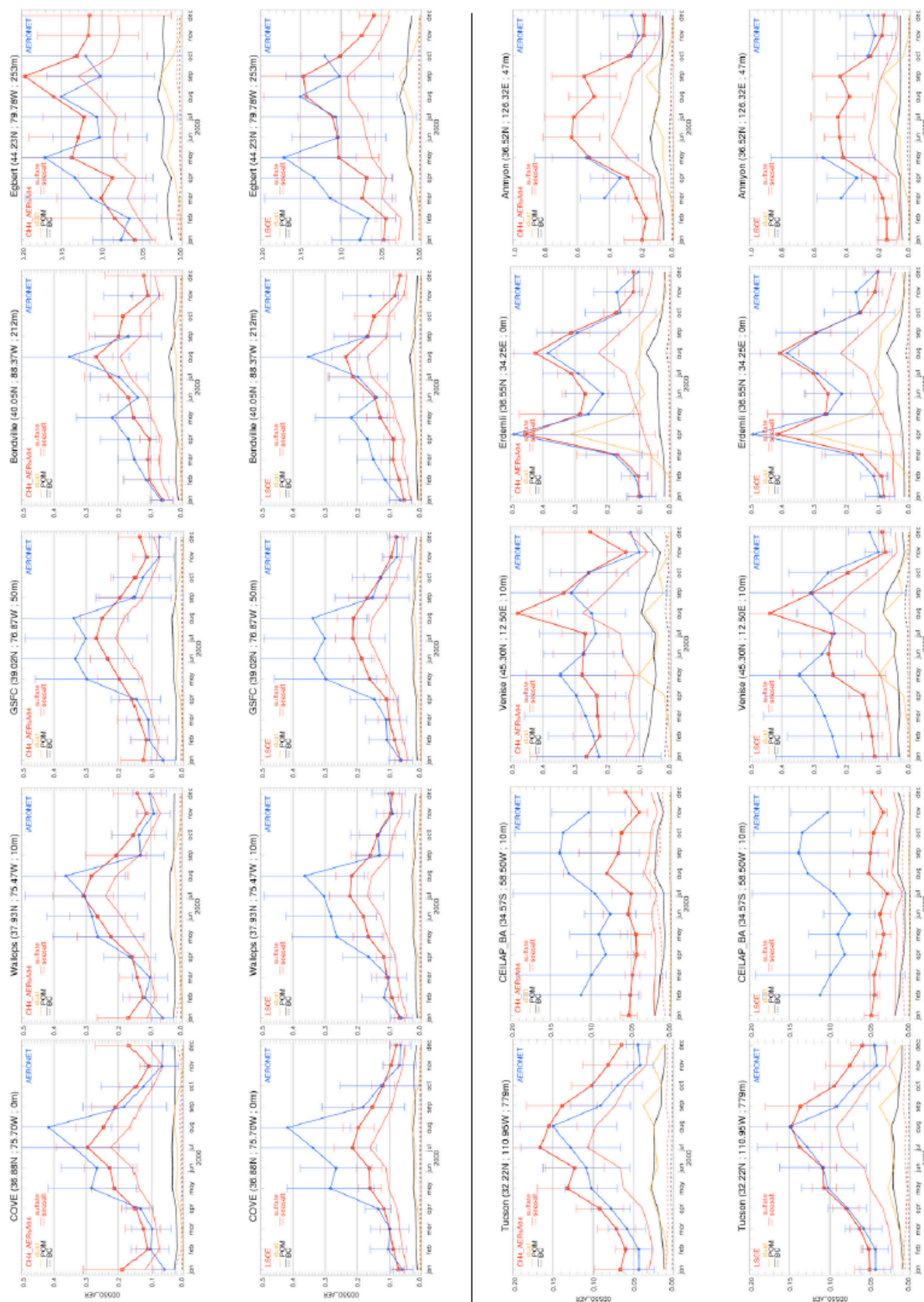


Figure 5.8 : Comparaisons des moyennes mensuelles d'AOT à 550 nm selon les version modifiée ($CH_4_AERsA04$) et standard (LSCE) d'INCA et les mesures AERONET. Ces graphes proviennent de l'analyse AEROCOM (Sarah Guibert, Christiane Textor et Michael Schulz)

5.4 Conclusion

Une nouvelle paramétrisation du calcul des épaisseurs optiques a été développée dans INCA. Elle prend en compte les effets de l'humidité relative sur la masse de l'aérosol, son rayon et son indice de réfraction. Les corrections apportées ont été évaluées par comparaison aux mesures d'AOT du réseau AERONET. Nous nous sommes concentrés sur l'année 2000 pour l'analyse des résultats.

Les modifications apportées ont permis d'augmenter l'épaisseur optique totale des aérosols de près de 50% en moyenne globale pour l'année 2000. La variation est essentiellement due aux effets sur les aérosols marins et sulfatés, dans une moindre mesure sur les carbonés.

Afin d'analyser les résultats, le globe a été divisé en dix régions homogènes en termes de nature des aérosols et/ou processus. Au sein de chaque région, les mesures disponibles d'AOT à 550 nm (mode grossier et mode fin séparément) ont été comparées aux moyennes journalières des versions standard et corrigée du modèle. Pour les particules du mode grossier (poussières désertiques et sels marins), aucune modification n'est observée entre les deux versions. Ceci s'explique d'une part par le fait que les poussières désertiques sont des particules hydrophobes ; d'autre part, par le manque de données disponibles dans les régions de fortes concentrations de sels marins. Pour les particules du mode fin, les modifications dues à une meilleure prise en compte de l'humidité relative ne tendent pas vers une amélioration nette du modèle. En effet, les résultats montrent une meilleure représentation des amplitudes mais une perte de corrélation dans les régions de fortes activités industrielles dominées par les aérosols sulfatés. Ces résultats sont confirmés par les comparaisons de moyennes mensuelles d'AOT à 550 nm à des stations spécifiques du réseau AERONET. On peut mettre en cause, par exemple, la paramétrisation utilisée pour décrire l'accroissement en taille des particules de sulfates avec l'humidité relative.

La paramétrisation décrite dans ce chapitre est celle que nous utiliserons dans la version destinée à l'assimilation. C'est une première approche pour prendre en compte les effets dus à l'humidification des aérosols dans le calcul de l'AOT au sein du modèle INCA, mais elle devra être améliorée par la suite. Cette étude montre qu'à partir d'une masse d'aérosols donnée, l'écart sur les valeurs d'AOT due à l'humidification des aérosols n'est pas négligeable. Or, il est difficile, voire impossible, de mesurer la quantité d'eau capturée par les différents types de particules. Ainsi, nous ne possédons pas de moyen de valider directement les hypothèses choisies pour prendre en compte l'effet de l'humidité relative sur le calcul de l'AOT. Dans ce contexte, les désaccords entre les modèles et les mesures ne doivent pas s'analyser uniquement en termes de représentation des émissions ou du transport dans les modèles.

Chapitre 6

L'assimilation des observations POLDER dans LMDz-INCA

6.1	Introduction.....	108
6.2	Méthode	110
6.2.1	Le formalisme du filtre de Kalman	110
6.2.2	Simplifications liées à notre cas d'étude	110
6.2.3	Application à POLDER et au LMDz-INCA.....	111
6.3	Estimations des statistiques d'erreur	113
6.3.1	Méthode	113
6.3.2	Matrices de covariance d'erreur	115
6.3.3	Biais	117
6.4	Validation a posteriori du code.....	118
6.4.1	Erreur théorique de l'analyse	118
6.4.2	Stabilité	119
6.4.3	Cohérence	120
6.4.4	Optimalité	121
6.5	Résultats	121
6.5.1	Analyse à l'échelle planétaire.....	121
6.5.2	Analyse par régions.....	128
6.5.3	Moyenne mensuelle aux stations AERONET.....	132
6.6	Exemple d'application.....	137
6.7	Conclusion.....	140

6.1 Introduction

Dans ce chapitre, je présente la méthode développée pour l'assimilation des observations POLDER dans LMDz-INCA. L'assimilation de données vise à utiliser toute l'information disponible pour déterminer l'état de l'atmosphère (ou de l'océan) le plus précisément possible [Talagrand, 1997]. Le principe repose sur la combinaison optimale d'une information a priori (donnée par un modèle) et d'observations (spatiales, mesures in situ). Le poids qui est accordé à chacune des sources d'information tient compte de leurs erreurs respectives. Pour nous, l'application de cette technique au cas spécifique des aérosols a pour but d'obtenir des distributions d'aérosols dans l'espace et dans le temps qui soient complètes et aussi précises que possibles. La méthode développée permet ainsi de fournir une synthèse entre l'information complémentaire contenue dans les modèles de chimie-transport d'aérosols et les observations. En effet, les mesures sont le reflet direct du contenu en aérosols de l'atmosphère, mais leur couverture spatio-temporelle et les informations accessibles sont incomplètes. En particulier, les observations spatiales ne fournissent pas de données en présence de nuages, pas d'information sur la distribution verticale des aérosols ou sur leur nature chimique. En revanche, les modèles d'aérosols permettent l'accès à ce type d'information, mais souffrent de grandes incertitudes sur les émissions, les processus de transport, les puits et le calcul des propriétés optiques.

Pour illustrer simplement le concept des techniques d'interpolation optimale qui sont à la base de l'assimilation, nous pouvons considérer deux estimations indépendantes, non biaisées, x_1 et x_2 , de la même grandeur x . Si l'on connaît les erreurs (écart-type) de chacune des estimations, que l'on note σ_1 et σ_2 , alors on peut les combiner pour obtenir une estimation optimale x^a telle que :

$$x^a = \frac{\sigma_2^2 x_1 + \sigma_1^2 x_2}{\sigma_1^2 + \sigma_2^2} \quad \text{Équation 6.1}$$

L'estimation optimale de x est obtenue en pondérant x_1 et x_2 par l'inverse de leur variance d'erreur respective, de sorte que l'estimation la plus précise ait le poids le plus fort. Notons que l'on peut réécrire l'équation 6.1 sous cette forme :

$$x^a = x_1 + \frac{\sigma_1^2}{\sigma_1^2 + \sigma_2^2} (x_2 - x_1) \quad \text{Équation 6.2}$$

L'approche variationnelle est une alternative équivalente pour résoudre les équations d'interpolation optimale. Elle consiste à minimiser une fonction coût qui quantifie les écarts entre l'état a priori et l'état réel, et entre l'état observé et l'état réel. Si l'on reprend l'illustration précédente, alors on peut considérer x_1 comme étant une estimation (a priori) d'une quantité donnée et x_2 une mesure indépendante de la même quantité. La fonction coût qui quantifie le désaccord entre une valeur arbitraire x et les deux estimations s'exprime selon :

$$J(x) = \frac{1}{2} \left(\frac{(x - x_1)^2}{\sigma_1^2} + \frac{(x - x_2)^2}{\sigma_2^2} \right) \quad \text{Équation 6.3}$$

L'estimation optimale de x est donnée par le minimum de $J(x)$. Dans ce cas simple, on remarque que la solution qui minimise la fonction coût est donnée par l'équation

6.1. Ce qui nous permet de vérifier que les deux méthodes correspondent à deux approches différentes pour résoudre le même problème. C'est en fonction du contexte et de la dimension du problème à résoudre que l'on optera pour une méthode de résolution plutôt qu'une autre.

Lorsque l'on possède plusieurs observations dans l'espace et dans le temps (par exemple, x_1 n'est plus une grandeur scalaire mais un vecteur à N dimensions), on peut choisir d'intégrer les observations les unes après les autres ou alors définir une fenêtre temporelle et intégrer toutes les observations incluses simultanément. Dans le premier cas, on parle d'approche 3D. Le modèle fournit l'information a priori à l'instant t_0 de la première observation. Il repart ensuite à partir de l'analyse jusqu'au temps de la prochaine observation et ainsi de suite. Dans le deuxième cas, on parle d'approche 4D. Le modèle utilise toutes les observations incluses dans la fenêtre temporelle choisie pour fournir l'estimation optimale. La quatrième dimension correspond ainsi à la dimension temporelle. Les schémas de la Figure 6.1 permettent de visualiser les différences entre les deux approches.

Les centres de prévision ont joué un rôle essentiel dans le développement des méthodes d'assimilation (par exemple [Lorenc *et al.*, 1991; Courtier *et al.*, 1994]) comme le CEPMMT (Centre Européen de Prévisions Météorologiques à Moyen Terme). Dans les années 1990, les méthodes variationnelles [Le Dimet and Talagrand, 1986] ont été implémentées de manière opérationnelle dans les centres de prévision [Parrish and Derber, 1992; Courtier *et al.*, 1998]. L'application à l'analyse des constituants atmosphériques est récente ([Fisher and Lary, 1995; Khattatov *et al.*, 1999; Lamarque *et al.*, 1999; Clerbaux *et al.*, 2001]). Dans le cas des aérosols, les premières applications ont été développées par [Collins *et al.*, 2001].

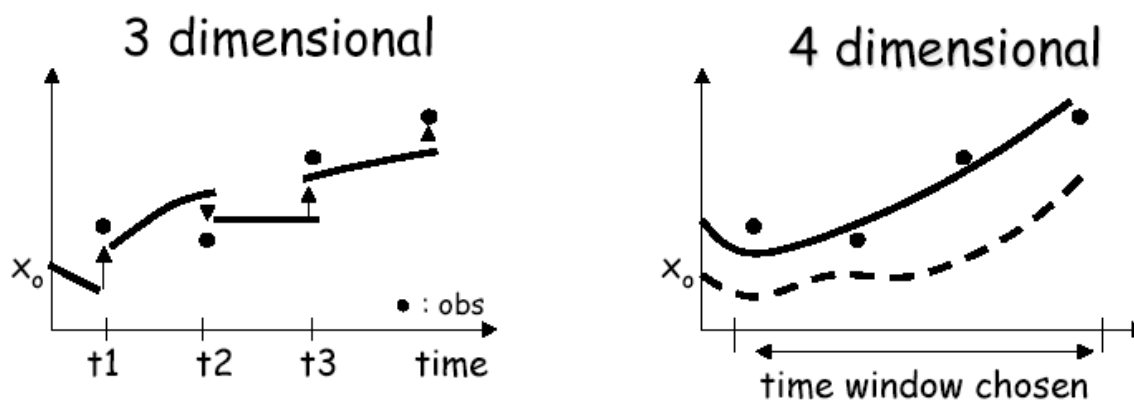


Figure 6.1 : Schéma des différentes approches possibles pour intégrer des observations. Dans l'approche 3D, les observations sont intégrées une par une. Dans l'approche 4D, toutes les observations contenues dans une fenêtre temporelle fixée sont intégrées simultanément. La courbe en pointillé correspond à l'état fourni par le modèle en l'absence d'assimilation d'observations.

Dans notre étude, nous avons assimilé les épaisseurs optiques d'aérosols (AOT) mesurées par POLDER au sein du LMDz-INCA. La méthode choisie est celle du filtre de Kalman que nous avons simplifié pour l'application à notre cas spécifique. Le formalisme utilisé est décrit dans la partie 6.2. L'assimilation repose sur la caractérisation des erreurs du modèle et des observations qui est présentée dans la partie 6.3. Les résultats et les tests de validation de la méthode sont présentés dans les deux parties suivantes. Enfin, un exemple d'application des champs assimilés à l'étude de l'effet indirect des aérosols est présenté.

6.2 Méthode

6.2.1 Le formalisme du filtre de Kalman

Si les données observées et a priori d'une quantité, x , correspondent à un ensemble de points, alors on peut généraliser l'équation 6.2 et l'écrire sous forme matricielle :

$$\mathbf{x}^a = \mathbf{x}^b + \mathbf{K}(\mathbf{y}^o - \mathbf{H}\mathbf{x}^b) \quad \text{Équation 6.4}$$

L'estimation optimale, ou analyse, $\mathbf{x}^a$ est la somme du champ a priori, $\mathbf{x}^b$, corrigé d'un terme qui fait intervenir la différence entre le champ des observations réelles, $\mathbf{y}^o$, et simulées, $\mathbf{H}\mathbf{x}^b$. Cette différence est appelée vecteur d'innovation. $\mathbf{H}$ est l'opérateur d'observation qui permet de passer de l'espace du modèle dans l'espace des observations. Dans le cas le plus simple, il s'agit d'une interpolation du champ simulé à la position des observations (lorsque les deux champs correspondent à la même grandeur physique). Le vecteur d'innovation est pondéré par la matrice de gain Kalman dont l'expression est donnée par l'équation ci-dessous :

$$\mathbf{K} = \mathbf{B}\mathbf{H}^t(\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^t + \mathbf{R})^{-1} \quad \text{Équation 6.5}$$

où $\mathbf{B}$ est la matrice de covariance d'erreurs du champ a priori et $\mathbf{R}$ celle des observations. Les équations 6.4 et 6.5 montrent que l'incrément de l'analyse ($\mathbf{x}^a - \mathbf{x}^b$) est obtenu en calculant d'abord $(\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^t + \mathbf{R})^{-1}$ dans l'espace des observations. La solution est remise dans l'espace physique en la multipliant par $\mathbf{B}\mathbf{H}^t$. La structure de $\mathbf{B}$, et donc du modèle, va ainsi influencer l'analyse.

À l'intégration de la première observation, le champ a priori est donné par le champ du modèle. Le modèle repart à partir de la valeur analysée qui va définir le champ a priori pour la deuxième intégration et ainsi de suite. La matrice $\mathbf{B}$ doit être modifiée à chaque étape pour refléter cette intégration. La nouvelle expression de $\mathbf{B}$ dépend de l'erreur de l'analyse. Celle-ci s'exprime (Lorenc, 1986) :

$$\mathbf{A} = \mathbf{B} - \mathbf{B}\mathbf{H}^t(\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^t + \mathbf{R})^{-1}\mathbf{H}\mathbf{B} \quad \text{Équation 6.6}$$

Pour correspondre à la matrice de l'erreur du champ a priori à l'intégration suivante, la matrice $\mathbf{A}$ doit être transportée entre les deux analyses. L'expression de $\mathbf{B}$ à la $n^{\text{ième}}$ intégration s'écrit ainsi :

$$\mathbf{B}_n = \mathbf{M}\mathbf{A}_{n-1}\mathbf{M}^t + \mathbf{Q} \quad \text{Équation 6.7}$$

où $\mathbf{M}$ est l'opérateur qui représente le modèle de transport et $\mathbf{Q}$, la matrice de l'erreur sur le transport.

6.2.2 Simplifications liées à notre cas d'étude

Le formalisme du filtre de Kalman, et plus largement les techniques d'assimilation, reposent sur des concepts simples. En revanche, leur application est souvent rendue difficile en raison de la dimension du problème à résoudre et des limitations numériques. Par exemple, l'inversion de la matrice contenue dans l'équation 6.5 doit être réalisée à chaque intégration d'observations et ses dimensions peuvent atteindre 10^5 ou 10^6 par exemple en météorologie. Comme première approche, nous avons choisi de considérer des matrices de covariances d'erreur diagonales pour le modèle et les observations. Cette hypothèse signifie implicitement que les corrélations spatiales des erreurs du modèle et des observations sont nulles. Elle est communément utilisée pour les observations. Elle est en général non vérifiée pour le

modèle. On peut donc se demander si choisir la matrice $\mathbf{B}$ diagonale est une hypothèse satisfaisante.

L'expression d'une matrice de covariance d'erreur, et donc de $\mathbf{B}$, fait intervenir la longueur de corrélation L_{xy} qui représente la distance caractéristique des corrélations spatiales suivant l'horizontale. [Collins *et al.*, 2001], qui ont appliqué pour la première fois le formalisme du filtre de Kalman au cas des aérosols, ont utilisé une longueur de corrélation spatiale de 100 km. Dans le cadre de l'étude précitée, le modèle utilisé a une résolution spatiale de 100 km à l'équateur, ce qui est comparable à la distance de corrélation choisie. Dans ce cas, seules les boîtes de la grille du modèle les « plus proches voisines » seront corrélées spatialement. Dans notre étude, la résolution spatiale du LMDz-INCA est de 375 km $\times$ 250 km à l'équateur. La distance de corrélation spatiale pressentie est donc inférieure à la taille d'une boîte de la grille. Même en considérant que les estimations de la distance de corrélation sont connues à un facteur 2 près, on se retrouverait dans un cas similaire à celui de [Collins *et al.*, 2001] où seules les boîtes de la grille de la rangée immédiatement autour d'une boîte donnée seraient concernées.

Pour illustrer le caractère local propre aux aérosols, nous pouvons prendre l'exemple des émissions. Dans le cas de régions sources localisées (par exemple les émissions d'une grande ville comme Pékin ou Mexico), alors on peut considérer que seule une boîte du modèle est impliquée (à notre résolution). Il en est de même dans le cas de feux de forêt ponctuels, souvent d'origine naturelle (exemple du Canada ou de la Mongolie). Dans ce cas, l'hypothèse $\mathbf{B}$ diagonale est correcte. En revanche, dans le cas des émissions des feux de biomasse liés aux activités humaines (comme en Afrique ou en Amazonie), les dimensions spatiales impliquées dépassent largement une boîte de modèle, et dans ce cas, l'hypothèse choisie n'est pas satisfaisante. Nous sommes conscients des limites de l'hypothèse faite qui a l'avantage de simplifier fortement notre travail. C'est une voie d'amélioration pour une nouvelle version de la méthode.

En choisissant $\mathbf{R}$ et $\mathbf{B}$ diagonales, l'équation 6.4 peut être traité sous forme scalaire en la résolvant boîte par boîte. Cette simplification permet d'éviter l'inversion matricielle qui est coûteuse en développement et en temps de calcul. Pour conserver cette simplification, il faut également considérer que la matrice $\mathbf{B}$ n'est pas modifiée après l'intégration des observations. En effet $\mathbf{B}$ ne resterait pas diagonale si elle était propagée dans le temps (équation 6.7). L'hypothèse sur la non corrélation spatiale des erreurs permet ainsi des simplifications importantes du filtre de Kalman.

6.2.3 Application à POLDER et au LMDz-INCA

L'assimilation va porter sur les épaisseurs optiques des aérosols (AOT) à 865 nm. Elles sont fournies par les inversions des mesures de POLDER pour le mode fin et le mode grossier des aérosols. Les deux produits seront intégrés indépendamment dans le modèle en supposant que leurs erreurs sont décorréées. Les observations du mode fin sont disponibles sur mer et sur terre (sur terre elles dérivent de la mesure en lumière polarisée qui permet de distinguer le signal des particules submicroniques de celui de la surface). Les observations du mode grossier existent sur mer uniquement.

Le LMDz-INCA calcule en ligne les AOT par espèce, par mode et par niveau vertical (voir chapitre 5). Elles peuvent être simplement additionnées pour obtenir une colonne totale, comparable à ce qui est vu par POLDER. Dans ce cas, l'opérateur

H est réduit à l'interpolation spatiale des champs simulés aux positions des observations. Pour simplifier davantage l'expression de H, les données POLDER sont placées sur la même grille que celle du modèle (elles ont une meilleure résolution spatiale que celle du modèle, le traitement est préalable à l'assimilation). Ainsi H peut être réduit à une valeur scalaire ($H = 1$ dans ce contexte).

Le schéma de la Figure 6.2 présente le principe du couplage du code d'assimilation avec le modèle d'aérosols INCA. Le modèle transporte les masses d'aérosols alors que l'assimilation porte sur les épaisseurs optiques. Avant l'appel au code d'assimilation, les masses par espèces d'aérosols et à 3 dimensions (3D) sont transformées en AOT par mode et à 2 dimensions (2D). L'assimilation fournit alors une estimation de l'AOT pour le mode grossier et pour le mode fin. L'AOT assimilée de chaque mode est ensuite transformée en masses 3D par espèces. La redistribution par espèces et par niveau vertical conserve les mêmes profils que les champs à priori. Il n'est pas possible de modifier ces profils car les observations POLDER – et plus généralement les observations spatiales actuelles – ne fournissent pas d'information sur la distribution verticale des aérosols ou sur leur nature chimique. De plus, l'expression de la masse après assimilation (donnée sur la Figure 6.2) est appliquée aux masses sèches des aérosols car on considère que la proportion d'eau qui intervient dans la masse totale est conservée. Il n'existe pas de mesures qui nous permettent de modifier la fraction d'eau capturée par chaque espèce.

Enfin, le pas de temps choisi pour l'intégration est de six heures. Dans cet intervalle de temps, POLDER voit un quart du globe. Typiquement, il y a entre 600 et 1000 observations pour le mode fin et entre 300 et 500 pour le mode grossier à intégrer dans cet intervalle de temps.

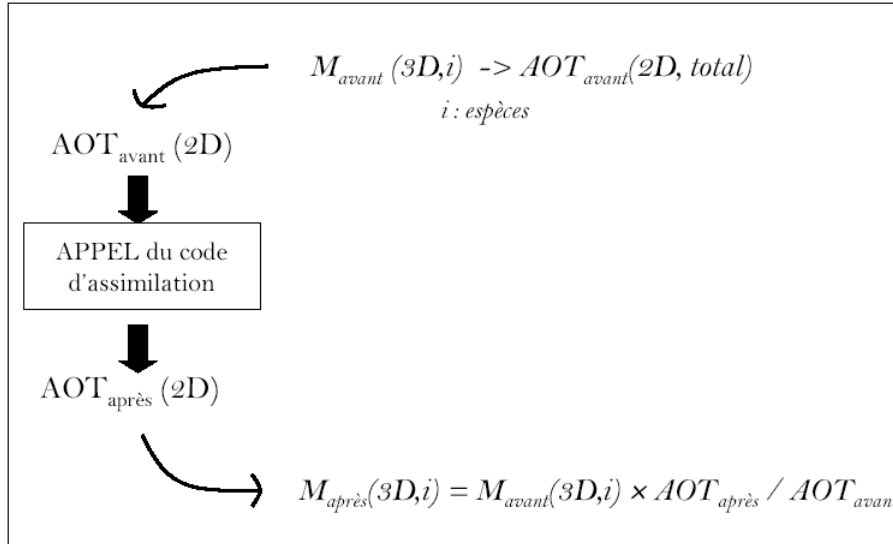


Figure 6.2 : Principe de couplage du code d'assimilation (qui requiert des épaisseurs optiques par mode et 2D) au modèle d'aérosols INCA (qui transporte des masses d'aérosols par espèces et 3D). Les espèces dans le modèle sont regroupées en deux modes (fin et grossier). Les équations sont appliquées pour chacun des modes

6.3 Estimations des statistiques d'erreur

6.3.1 Méthode

Pour appliquer les équations 6.4 et 6.5 du filtre de Kalman, il faut définir les matrices de covariance d'erreur du modèle et des observations. Ces statistiques d'erreur vont influencer directement l'analyse. De manière à ce que les poids accordés à chacune des composantes soient définis sur des critères objectifs, les mesures indépendantes du réseau AERONET sont utilisées. Elles fournissent désormais les mesures de la fraction fine et grossière des aérosols, ce qui va nous permettre de caractériser les quatre matrices de covariance d'erreur nécessaire à l'intégration séparée des produits du mode fin et du mode grossier.

L'une des difficultés principales réside dans la définition des erreurs pour chaque boîte de la grille du modèle. À la résolution spatiale choisie, 3.75° en longitude et 2.5° en latitudes, 7008 boîtes (96×73) doivent être caractérisées. Or le nombre de stations de mesures AERONET utilisées est de 118 - ce qui est déjà conséquent - et leur répartition sur le globe n'est pas homogène. Afin d'extrapoler les mesures contenues dans une boîte donnée du modèle à plusieurs autres boîtes, nous avons découpé le globe en dix régions homogènes en termes de type d'aérosols et/ou de processus. Nous considérons que toutes les boîtes d'une région donnée ont les mêmes erreurs. La Figure 6.3 présente les régions choisies et les stations AERONET utilisées. Il y a huit régions continentales qui correspondent essentiellement à différents types d'émissions. Les boîtes océaniques ont été regroupées en deux régions en appliquant un critère de distance par rapport aux continents de sorte de distinguer les régions sous l'influence directe des sources (par exemple l'Atlantique Nord qui est soumis aux exports des poussières sahariennes ou de la pollution Nord-américaine) des régions océaniques éloignées (comme le Pacifique Sud). Le Tableau 6.1 décrit les principales caractéristiques des régions découpées.

Les mesures AERONET étant peu nombreuses pendant la période de POLDER-1 (de novembre 1996 à juin 1997), les statistiques d'erreur sont estimées sur la période de POLDER-2 entre avril et novembre 2003. Les valeurs ainsi obtenues sont appliquées au modèle et aux observations pour l'intégration des données des deux périodes d'observations. Un filtre est appliqué aux mesures AERONET pour ne conserver que celles qui sont prises aux heures de passage du satellite (pour être cohérent avec le pas de temps de 6h de l'intégration, les mesures aux stations situées dans le premier quart du globe vu par POLDER sont conservées si elles sont faites entre 0h et 6h, heure universelle, et ainsi de suite). Les comparaisons se font entre l'observation POLDER et les valeurs moyennes des mesures AERONET sur l'intervalle de temps de 6h. Les champs du modèle et des observations sont extraits aux positions des stations. Notons que, pour les observations de POLDER, les statistiques fournies par cette étude se réfèrent aux produits à la résolution du modèle (3.75° en longitude et 2.5° en latitude). En effet, c'est bien la qualité des mesures spatiales à cette résolution que l'on cherche à évaluer.

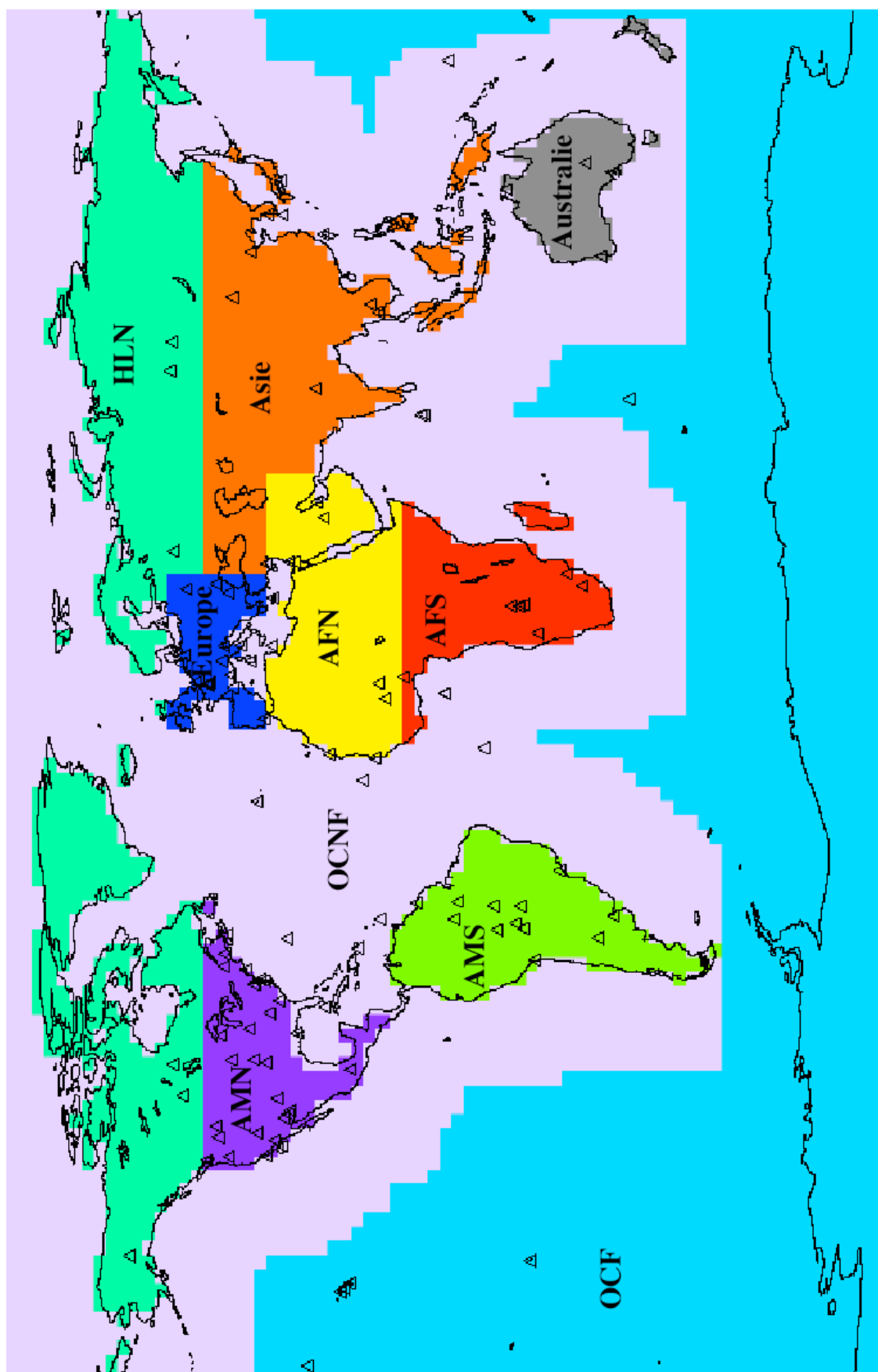


Figure 6.3 : Les 10 régions définies pour l'estimation des erreurs du modèle et des observations. Les triangles correspondent aux stations AERONET

Label	Nom	Caractéristiques
AFN	Afrique du Nord	Émissions de poussières désertiques
AFS	Afrique du Sud	Émissions par les feux de biomasse
AMN	Amérique du Nord	Émissions liées aux activités urbaines et industrielles
AMS	Amérique du Sud	Émissions par les feux de biomasse
Europe		Émissions liées aux activités urbaines et industrielles
Asie		Émissions liées aux activités urbaines et industrielles, feux de biomasse
HLN	Hautes Latitudes Nord	Émissions par les feux boréaux
Australie		Émissions par les feux de biomasse, poussières
OCNF	Région océanique proche des sources continentales	Transport des panaches des régions continentales
OCF	Région océanique éloignée des sources	Faible présence d'aérosols anthropiques. Sels Marins.

Tableau 6.1 : Description des régions utilisées pour la caractérisation des erreurs du modèle et des observations.

6.3.2 Matrices de covariance d'erreur

Les écart-types d'erreurs du modèle par rapport à AERONET et de POLDER par rapport à AERONET sont calculés dans chaque région et pour chacun des modes en taille. Ils sont estimés selon deux approches, d'une part à partir de l'ensemble des points de l'échantillon ; d'autre part, à partir des points regroupés dans une même classe de valeurs d'AOT. Cette dernière approche permet de mettre en évidence une éventuelle dépendance de l'erreur en fonction des valeurs simulées ou observées. En effet, on s'attend à ce que le modèle et les observations soient plus fiables, en valeur absolue, lorsque l'épaisseur optique est faible. Dans les régions où il n'est pas possible de caractériser cette dépendance (par exemple les cas pour lesquels il y a peu de mesures pour les fortes valeurs d'AOT), on conservera l'écart-type d'erreur obtenu sur l'ensemble de l'échantillon. Dans le cas contraire, on conservera l'écart-type sous la forme $\sigma = a\tau + b$ où τ correspond à l'AOT simulée ou observée, a et b étant donnés par la droite de régression qui s'ajuste au mieux sur les points. L'écart-type d'erreur intervient dans les équations 6.4 et 6.5 comme la racine carrée des éléments diagonaux des matrices **B** et **R**. Les résultats par région et par mode sont présentés dans le Tableau 6.2.

Pour le mode fin, le modèle présente le plus grand écart-type d'erreur dans les principales régions urbaines et industrielles Asie et Europe. Viennent ensuite les principales régions de feux de biomasse comme AFS. Ces régions sont dominées par la présence d'aérosols carbonés et sulfatés dont les émissions sont prescrites via des inventaires mensuels dans le modèle qui ne représentent pas la variabilité journalière. Il est par conséquent cohérent d'attribuer aux valeurs modélisées dans ces régions un poids plus faible qu'à celui des observations. Pour les régions océaniques, OCNF présente les plus grandes valeurs d'écart-type. Ce résultat est cohérent avec notre contexte physique car cette région regroupe différents types de particules et processus, dont la variabilité à l'échelle journalière n'est pas représentée correctement dans le modèle. En revanche, si l'on s'intéresse aux résultats pour POLDER dans ce mode, on constate que le poids relatif qui sera accordé à certaines

régions par rapport à d'autres ne correspond pas forcément à notre connaissance a priori. En particulier, la région Asie présente un écart-type d'erreur plus grand que ceux des régions Europe et AMN. Or il n'y a aucune raison a priori pour que ces trois régions qui correspondent aux mêmes types de processus et d'espèces d'aérosols et, quasiment aux mêmes latitudes, soient « vus » différemment par POLDER. Une explication probable est le manque de mesures AERONET de cette région, et par conséquent le manque de représentativité spatiale et temporelle des mesures. Ainsi le choix de caractériser les erreurs du modèle et des observations par rapport à AERONET peut dans certains cas contredire notre connaissance a priori. Il nous semble cependant que c'est la meilleure façon d'estimer les mesures de manière objective, en tenant compte de certaines caractérisations régionales.

	Mode FIN			Mode GROSSIER		
Région	σ_M	σ_P	N	σ_M	σ_P	N
AFN	0.033	0.044	252	Les observations POLDER de ce mode n'existent pas sur les continents		
AFS	0.063	$0.214\tau+0.01$	502			
AMN	$0.179\tau+0.033$	0.050	1253			
AMS*	0.063	$0.214\tau+0.01$	137			
Europe	$0.023\tau+0.102$	0.048	846			
Asie	$0.335\tau+0.180$	$0.45\tau+0.064$	243			
HLN*	$0.179\tau+0.033$	0.050	90			
Australie	0.012	0.012	184			
OCNF	$0.051\tau+0.058$	$0.277\tau+0.015$	739	$0.395\tau+0.004$	$0.287\tau+0.01$	611
OCF	0.012	0.014	196	0.015	0.035	194

Tableau 6.2: Estimation des écart-types d'erreur du modèle par rapport à AERONET (σ_M) et de POLDER par rapport à AERONET (σ_P). N est le nombre de points conservés dans chaque région pour le calcul. Ils sont estimés en fonction des valeurs d'AOT (τ) simulées ou observées. Pour les régions suivies d'une *, les statistiques obtenues à partir d'AERONET ne sont pas conservées (il en sera discuté dans la partie 6.3.3). Les estimations des régions similaires en termes de processus ont été utilisées (les statistiques d'AFS remplacent celles d'AMS ; l'AMN celles de la région HLN).

Dans le cas du mode grossier, les données POLDER n'existent qu'au-dessus des océans. Les seules stations AERONET qui sont conservées sont par conséquent celles qui sont sur les côtes et dans les îles, ce qui réduit considérablement les données disponibles. De plus, ces stations ne seront pas représentatives de l'ensemble des régions océaniques. Il s'agit néanmoins de la seule source d'information indépendante dont nous disposons. Nous constatons que les écart-types d'erreurs de la région OCNF sont plus grands pour le modèle que pour les observations. Ceci signifie que le modèle se verra attribuer un poids plus faible que celui des observations lors de l'intégration des données de cette région. Ce résultat est cohérent avec notre connaissance a priori du modèle car cette région correspond à une zone d'exports de panaches en provenance des continents. Or le modèle ne représente pas tous les panaches d'aérosols. Nous l'avons constaté par exemple avec les épisodes de feux en Mongolie ou de pollution en Amérique du Nord en mai et juin 1997 (épisodes 4 et 5 traités au chapitre 4) ou encore avec les corrélations faibles du modèle en moyennes journalières (chapitre 5). En revanche, les observations POLDER au-dessus des océans sont plus fiables, mais avec une couverture spatio-temporelle limitée.

6.3.3 Biais

Le formalisme de l'assimilation de données décrit dans la partie 6.2 s'applique à des variables non biaisées. Ainsi la différence entre les observations et les valeurs simulées doit être nulle en moyenne de sorte que seules les erreurs aléatoires soient corrigées par l'intégration des données. Les biais du modèle et des observations par rapport à AERONET sont estimés en parallèle des covariances d'erreur à partir du même échantillon de mesures pour chaque région et pour les deux modes. Ils sont définis comme la moyenne de l'écart entre le modèle / les observations (POLDER) et les mesures (AERONET). Les valeurs obtenues sont du même ordre de grandeur que les écart-types, et ils ne peuvent donc pas être négligés. Il est ainsi nécessaire de corriger le modèle et les observations de leurs biais respectifs pour pouvoir appliquer le formalisme choisi. Il faut concevoir cette opération préalable comme un « étalonnage » des champs simulés et observés (en moyenne globale et sur toute la période de mesures disponibles) à un même niveau moyen (donné ici par les mesures AERONET, qui sont supposées être exactes).

La méthode appropriée pour procéder est d'ôter au modèle et aux observations la valeur estimée de leur biais respectif pour chaque région. Pour les observations, cette opération peut être réalisée avant leur intégration dans le modèle. En revanche, dans le cas des champs simulés, cela implique de les corriger au moment de l'appel de la procédure et, en théorie, de modifier le biais après chaque intégration pour refléter les modifications dues à l'assimilation des données. Cette méthode ne permettrait pas de conserver les simplifications décrites au paragraphe 6.2. La manière la plus simple de procéder pour ôter les biais est de faire porter le biais total (du modèle et des observations) sur les observations POLDER avant leur intégration dans le modèle. Si l'on nomme $b_{M/A}$ et $b_{P/A}$ les biais respectifs du modèle et de POLDER par rapport à AERONET, alors le biais total à ajouter aux observations s'exprime :

$$b_{T/A} = b_{M/A} - b_{P/A} \quad \text{Équation 6.8}$$

Cette simplification est uniquement d'ordre pratique et ne signifie en aucun cas que seules les observations POLDER sont biaisées. Enfin, afin d'éviter des discontinuités brutales en bordure des régions, les valeurs du biais sont lissées spatialement (entre une boîte et ses « plus proches voisines »). Il a été fait de même pour les écart-types d'erreur. Le Tableau 6.3 présente les valeurs des différents termes de l'équation 6.8.

Le biais du modèle par rapport à POLDER a été estimé en parallèle pour chaque région. Dans trois régions (« AMS », « HLN » et « OCNF »), le biais dans le mode fin n'est pas cohérent avec le biais estimé par rapport à AERONET. Une hypothèse qui pourrait expliquer ce désaccord est que les stations AERONET qui ont été utilisées ne sont pas représentatives de l'ensemble de la région et/ou manquent de données. Pour ne pas introduire un biais artificiel, nous avons choisi de conserver les valeurs obtenues par comparaison directe de POLDER et du modèle pour ces trois régions. Si l'on suppose que le désaccord est lié à une mauvaise représentation des stations AERONET, alors le même problème se pose pour les écart-types d'erreur. C'est pourquoi, les statistiques d'écart-type d'erreur des régions les plus similaires ont été utilisées en remplacement.

Dans trois régions $b_{T/A}$ est négatif, ce qui signifie que les observations POLDER « corrigées » peuvent devenir négatives. Les valeurs qui deviennent négatives sont celles qui sont inférieures au biais total, ce que nous ne savons pas traiter avec l'assimilation. Dans cette version, les observations sont considérées comme

manquantes. Une voie d'amélioration pourrait être de les prendre en compte comme des valeurs nulles.

	Mode FIN			Mode GROSSIER		
Région	$b_{M/A}$	$b_{P/A}$	$b_{T/A}$	$b_{M/A}$	$b_{P/A}$	$b_{T/A}$
AFN	0.021	0.014	0.007	Les observations POLDER de ce mode n'existent pas sur les continents		
AFS	- 0.051	- 0.017	- 0.034			
AMN	- 0.004	- 0.012	0.008			
AMS*			0.006			
Europe	0.057	- 0.038	0.095			
Asie	- 0.108	- 0.086	- 0.022			
HLN*			0.013			
Australie	- 0.001	- 0.023	- 0.024			
OCNF*			0.013	0.013	0.035	- 0.022
OCF	0.002	- 0.006	0.008	0.008	0.031	- 0.023

Tableau 6.3 : Valeurs du biais du modèle ($b_{M/A}$), des observations ($b_{P/A}$) par rapport à AERONET et du biais total tel que défini par l'équation 6.8. Pour le mode grossier, les données POLDER ne sont disponibles qu'au-dessus des océans. Le biais des régions suivies d'une * a été estimé indépendamment des mesures AERONET. Il est obtenu par comparaison directe de POLDER et du modèle.

6.4 Validation a posteriori du code

La question qui se pose après avoir développé une méthode d'assimilation est de savoir avec quels critères objectifs l'évaluer. Il existe différents diagnostics pour valider a posteriori l'algorithme d'assimilation ; ils sont présentés par exemple dans [Talagrand, 2002]. La qualité de l'analyse peut être évaluée par comparaisons avec des données indépendantes ; nous consacrerons l'ensemble de la partie suivante (6.5) pour traiter ce point. Dans cette partie, nous nous concentrons sur les critères qui permettent de juger de la stabilité, de la cohérence et de l'optimalité du code développé. Nous présentons également les erreurs de l'analyse.

6.4.1 Erreur théorique de l'analyse

Région	Mode FIN			Mode GROSSIER		
	e_M	e_P	e_A	e_M	e_P	e_A
AFN	0.036	0.042	0.027	Les observations POLDER de ce mode n'existent pas sur les continents		
AFS	0.072	0.032	0.026			
AMN	0.032	0.047	0.028			
AMS	0.037	0.027	0.017			
Europe	0.072	0.047	0.040			
Asie	0.103	0.077	0.063			
HLN	0.043	0.048	0.032			
Australie	0.013	0.014	0.009			
OCNF	0.040	0.025	0.021	0.029	0.038	0.024
OCF	0.017	0.014	0.010	0.021	0.035	0.018
World	0.040	0.033	0.025	0.030	0.038	0.023

Tableau 6.4: Ecart-type moyen (sur la région et sur toute la période d'intégration des données de POLDER-2) de l'erreur de l'analyse (e_A), des observations (e_P) et du modèle (e_M).

L'erreur des champs assimilés dépend de l'erreur des champs observés et a priori. Son expression est donnée par l'équation 6.6. Nous avons appliqué cette relation et présentons les résultats dans le Tableau 6.4 sous forme d'écart-types moyens par régions et sur la totalité de la période d'observation de POLDER-2. Pour juger des améliorations apportées, nous présentons également les écart-types d'erreur moyens des observations et du modèle. Par construction, l'erreur sur l'analyse doit être plus faible que celle sur les observations et l'a priori. Nous le vérifions sur l'ensemble des régions.

6.4.2 Stabilité

Un des critères utilisés pour s'assurer que le code d'assimilation développé est stable est de tracer l'évolution temporelle du vecteur d'innovation que nous noterons $\mathbf{d}$. L'expression de $\mathbf{d}$ est donnée par :

$$\mathbf{d} = \mathbf{y} - \mathbf{H}\mathbf{x}^b \quad \text{Équation 6.9}$$

Il correspond à l'écart entre l'observation et l'a priori. La Figure 6.4 présente ses variations mensuelles sur l'ensemble de la période d'intégration des données de POLDER-2. Dans le cas du mode fin, sa moyenne est quasiment nulle, ce qui nous indique qu'il n'y a pas de biais entre les observations et le modèle dans le système que nous avons développé. De plus, la valeur de $\mathbf{d}$ est constante sur l'ensemble de la période, ce qui nous conforte dans la stabilité du système. En revanche, pour le mode grossier, la valeur moyenne de $\mathbf{d}$ oscille autour de 0.03. Elle signifie qu'il reste des biais dans le système. On peut mettre en cause l'estimation du biais des produits du mode grossier. En effet, l'assimilation pour ce mode porte sur les régions océaniques uniquement et les mesures sur lesquelles sont basées les statistiques d'erreur proviennent des stations continentales les plus proches. Il est probable qu'elles ne soient pas représentatives de l'ensemble des régions océaniques. Cette hypothèse, si elle était vérifiée, permettrait d'expliquer également les différences de résultats entre les deux assimilations menées en parallèle.

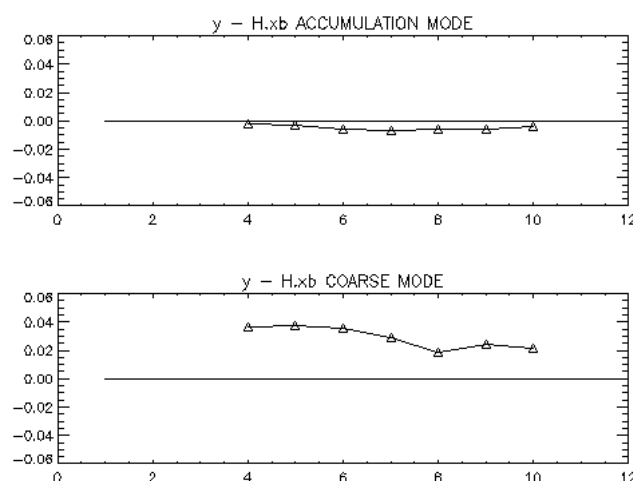


Figure 6.4 Moyenne mensuelle du vecteur d'innovation sur l'ensemble de la période d'intégration de POLDER-2 (entre avril et octobre 2003) pour les produits du mode fin (en haut) et les produits du mode grossier (en bas).

6.4.3 Cohérence

Un diagnostic simple et global pour évaluer la cohérence de l'algorithme d'assimilation est fourni par l'égalité suivante :

$$c = E\left(\frac{1}{2}\mathbf{d}^t[\mathbf{HBH}^t + \mathbf{R}]^{-1}\mathbf{d}\right) \quad \text{Équation 6.10}$$

qui doit être égal à $p/2$. E dénote l'espérance, $\mathbf{d}$ correspond au vecteur innovation et p à la dimension de la matrice $\mathbf{R}$. Dans notre cas, $p=1$ car le formalisme du filtre de Kalman est traité sous forme scalaire. Le Tableau 6.5 présente les valeurs obtenues pour le terme de gauche de l'équation 6.10 pour les deux types d'assimilation développés dans notre étude. Les valeurs correspondent à la moyenne sur le globe et sur la période des observations de POLDER-2

	$E\left(\frac{1}{2}\mathbf{d}^t[\mathbf{HBH}^t + \mathbf{R}]^{-1}\mathbf{d}\right)$
mode FIN	0.25
mode GROSSIER	0.93

Tableau 6.5 Valeur obtenue pour le critère de cohérence. Les valeurs attendues sont de 0.5.

De nombreux auteurs ont utilisé ce critère pour évaluer la cohérence de leur système. Une conclusion assez générale est que la valeur de c est souvent plus faible que la valeur attendue, typiquement d'un facteur de $1/2$ à $2/3$ [Talagrand, 2002]. Dans le cas de l'assimilation des produits du mode fin, c est plus faible que $p/2$, ce qui signifie que la matrice $[\mathbf{HBH}^t + \mathbf{R}]$ est plus grande que ce qu'elle devrait être en réalité. Ce résultat est du même ordre de grandeur et du même signe que les résultats obtenus par différentes études. [Talagrand, 2002] propose une explication de cette différence par une surestimation de la matrice de covariance d'erreur de l'a priori, $\mathbf{B}$. Ce qui, si cette hypothèse est correcte, accorderait un poids plus faible au modèle que ce qu'il devrait être et permettrait ainsi à l'analyse de coller plus aux observations. Dans notre étude, $\mathbf{B}$ et $\mathbf{R}$ ont été évaluées de la même manière à partir du même échantillon de points. On pourrait ainsi penser qu'il n'y a pas par conséquent de raison a priori pour que $\mathbf{B}$ soit davantage surestimée que $\mathbf{R}$. Cependant, $\mathbf{B}$ correspond à l'erreur de l'a priori et on comprend intuitivement que $\mathbf{B}$ devrait diminuer au fur et à mesure que l'on intègre des données. Ceci n'est pas pris en compte dans notre système et pourrait expliquer la sous-estimation du paramètre c .

Dans le cas de l'assimilation des produits du mode grossier, c est plus grand que $p/2$. Si l'on suit le même raisonnement que précédemment, cela signifie que $\mathbf{B} + \mathbf{R}$ est sous-estimée. De plus, l'écart à la valeur attendue est plus grand que dans le système pour le mode fin. Ce résultat dénote une plus mauvaise caractérisation des erreurs de l'a priori et des observations. L'hypothèse évoquée au paragraphe précédent (mauvaise représentativité des stations AERONET pour les régions océaniques) pourrait permettre de comprendre le résultat du mode grossier.

6.4.4 Optimalité

La notion d'optimalité de l'analyse signifie que la combinaison entre champs observés et simulés s'est faite au sens du minimum de variance. Vérifier l'optimalité de l'analyse $\mathbf{x}^a$ est équivalent aux deux conditions suivantes [Talagrand, 2002]:

$$E(x - x^a) = 0 \quad \text{Équation 6.11a}$$

$$E[(x - x^a)d^t] = 0 \quad \text{Équation 6.11b}$$

où E dénote l'espérance, x est une observation indépendante de l'état que l'on cherche à estimer (i.e. qui n'a pas été utilisé dans le système d'assimilation), d le vecteur d'innovation. Pour appliquer ces critères à notre système, nous utilisons les mesures AERONET comme état réel. La moyenne porte sur le globe et sur toute la période d'observation de POLDER-2. Le Tableau 6.6 présente les résultats des termes de gauche des équations 6.11a et 6.11b. Les valeurs trouvées par l'application de ce test nous permettent de conclure que le système a, en moyenne, fourni des analyses qui vérifient le critère d'optimalité.

	Mode FIN	Mode GROSSIER
$E(x - x^a)$	10^{-3}	-4×10^{-3}
$E[(x - x^a)d^t]$	5×10^{-4}	-2×10^{-5}

Tableau 6.6 : Résultats du test d'optimalité décrit par les équations 6.11

6.5 Résultats

6.5.1 Analyse à l'échelle planétaire

Deux types de simulations ont été effectuées, l'une avec la version standard du modèle et l'autre incluant l'assimilation des données. La période couverte au total est de 15 mois : de novembre 1996 à juin 1997 (intégration des données de POLDER-1) et d'avril à octobre 2003 (POLDER-2). Les deux périodes permettent d'analyser un cycle annuel complet et, en outre, la variabilité interannuelle sur la période de recouvrement d'avril à juin. Ainsi, nous analyserons les résultats globaux en découpant trois périodes. La première couvre les mois de novembre à mars ; la seconde correspond aux mois communs d'avril à juin ; la dernière période correspond aux mois de juillet à octobre.

La Figure 6.5 présente la moyenne des différences entre la version assimilée et la version standard sur les trois périodes considérées pour le mode grossier. Entre novembre et mars, la version assimilée est corrigée d'un déficit en masse dans le Golfe de Guinée. Plus au nord au large de la Mauritanie, proche de la région source du Sahara, elle est faiblement corrigée d'un excès d'aérosols. Or nous avons mis en avant un désaccord du gradient du contenu en poussière désertique du modèle par rapport aux observations satellites de TOMS et de POLDER. En effet, sur un exemple d'export de panache en mars 1997 (épisode 1 traité au chapitre 4), le modèle présentait un excès d'AOT dans les régions proches des sources et un déficit des valeurs dans les régions éloignées. Il est compréhensible que la version assimilée reproduise le gradient observé par POLDER. Le même désaccord ayant été observé avec les données TOMS, dont les algorithmes d'inversions sont complètement

indépendants de ceux de POLDER, ceci nous indique une amélioration sensible du modèle par l'assimilation. Par ailleurs, la version assimilée est corrigée d'un déficit en masse dans la région du Sud de l'Asie (Golfe du Bengale et mer d'Oman). Cette différence indique un déficit du transport des poussières désertiques d'Afrique vers l'Est par rapport aux observations.

Entre avril et juin, l'intégration des observations a diminué de manière significative la quantité d'aérosols en Méditerranée. Compte tenu du mode et de la région considérée, ceci indique que le modèle surestime le transport des poussières désertiques dans cette direction par rapport aux données de POLDER. En revanche, les exports de poussières vers l'Est et l'Ouest sont corrigés d'un déficit. Si l'on considère, les exports vers l'Amérique, on constate que les zones en sortie du continent sont modifiées dans des proportions plus faibles que les régions les plus éloignées, ce qui indique un problème dans le transport plutôt que dans les sources. De plus, la comparaison sur les deux années de l'intégration montre qu'il y a une variabilité importante entre 1997 et 2003.

Enfin, entre juillet et octobre, on observe une dissymétrie dans les régions tropicales, de part et d'autres de l'équateur. Au nord, l'intégration des données a diminué de manière significative les quantités d'aérosols en Mer d'Oman et, en moindre mesure, dans l'Atlantique. En revanche, dans l'hémisphère Sud, elle a corrigé un déficit en masse par rapport aux observations. Cette dissymétrie est cohérente avec l'exemple du panache de mars 1997 étudié au chapitre 4, qui semble indiquer un déficit du transport nord-sud dans cette région.

La Figure 6.6 présente les résultats similaires obtenus pour le mode fin. Entre novembre et mars, l'intégration des données POLDER de ce mode a essentiellement modifié une surestimation (du modèle par rapport aux observations) des quantités d'aérosols dans la bande tropicale, en particulier en Afrique centrale et dans le Sud-est asiatique.

Entre avril et juin, la variabilité est importante entre les deux années analysées. En 1997, l'assimilation corrige principalement une surestimation des épaisseurs optiques en Eurasie et dans la région industrielle de la côte Est asiatique (plus généralement dans toute la bande de moyennes latitudes de l'hémisphère nord). On note également une correction d'un déficit en masse en Espagne, qui s'explique probablement à cette période par des épisodes de feux exceptionnels. En Afrique, une correction positive est apportée dans la région du Gabon. À cette période, il s'agit probablement d'une sous-estimation des quantités d'aérosols au début de la saison des feux. En 2003, la surestimation (par le modèle) des épaisseurs optiques dans la bande de moyennes latitudes Nord est plus faible qu'en 1997. En revanche, on note une modification importante des AOT au nord-est de l'Asie (de la Mongolie au Pacifique Nord). Elle correspond à une sous-estimation du modèle par rapport aux observations. À ces latitudes, on peut supposer qu'il s'agit de feux naturels des régions boréales. Par ailleurs, il a été détecté des épisodes de feux particulièrement exceptionnels en mai et juin 2003 par plusieurs instruments (MODIS, POLDER). Les panaches résultants ont été détectés jusque sur la côte Est des Etats-Unis et du Canada. Un transport de ce type pourrait expliquer une partie du signal observé dans les hautes latitudes de l'hémisphère Nord (Canada et Groenland). Notons qu'en mai et juin POLDER détecte un signal très fort en AOT dans toute la région de l'Est asiatique. Ce signal explique la correction apportée aux régions des sources. En revanche, POLDER ne fournit quasiment pas d'observations aux latitudes polaires de l'hémisphère Nord à

cette période. Pourtant, on observe une modification significative de l'AOT entre les versions standard et incluant l'assimilation. Une explication possible est que la correction positive dans cette région est due au transport des sources ajoutées par l'assimilation dans une région différente. Il s'agirait ici d'un exemple de complémentarité entre modèle et observations. En Afrique, au-dessus du Sahara, on note une correction positive. Ce sont des aérosols carbonés et sulfatés qui sont ajoutés dans la version assimilée. Or, à cette période et dans cette zone, il n'y a pas de sources de ce type de particules. L'explication probable est que le signal détecté par POLDER correspond à la fraction fine des poussières désertiques. Comme le modèle ne possède pas de traceurs pour décrire cette distribution en taille des particules désertiques, l'assimilation corrige les autres traceurs du mode fin proportionnellement aux quantités présentes a priori. Il y a donc un défaut dans notre procédure d'assimilation qui pourrait être corrigé en partie en ajoutant au mode fin du modèle des poussières désertiques.

Enfin, entre juillet et octobre, il y a un contraste important entre une surestimation des AOT (par le modèle) dans les régions industrielles des moyennes latitudes de l'hémisphère Nord et une sous-estimation dans les régions tropicales de feux de biomasse.

Les résultats directs de l'assimilation sont présentés pour la période couverte par POLDER-2 sur les Figure 6.7 et Figure 6.8. Ils permettent de visualiser en termes de contenu en aérosols les différences discutées précédemment.

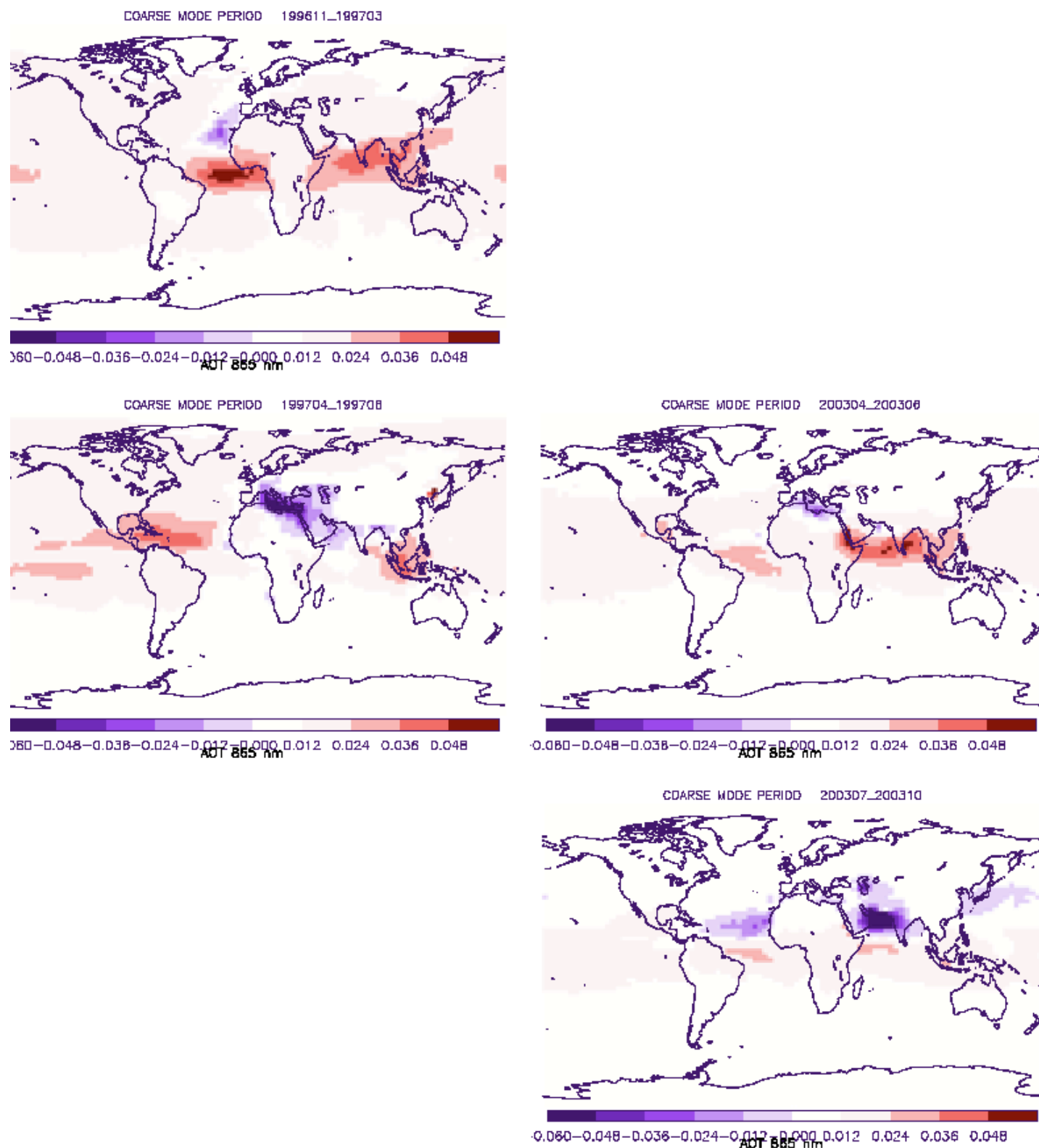


Figure 6.5 Différence entre la version incluant l'assimilation des données et la version standard pour le mode grossier en moyenne sur trois périodes. La période 1 (première ligne) correspond aux mois de novembre 1996 à mars 1997. La période 2 (deuxième ligne) correspond aux mois d'avril à juin 1997 (à gauche) et 2003 (à droite). La période 3 (dernière ligne) correspond aux mois de juin à octobre 2003. Les différences positives (rouges) correspondent à une augmentation des valeurs d'AOT à 865 nm après intégration des données POLDER ; les différences négatives (bleues) à une diminution.

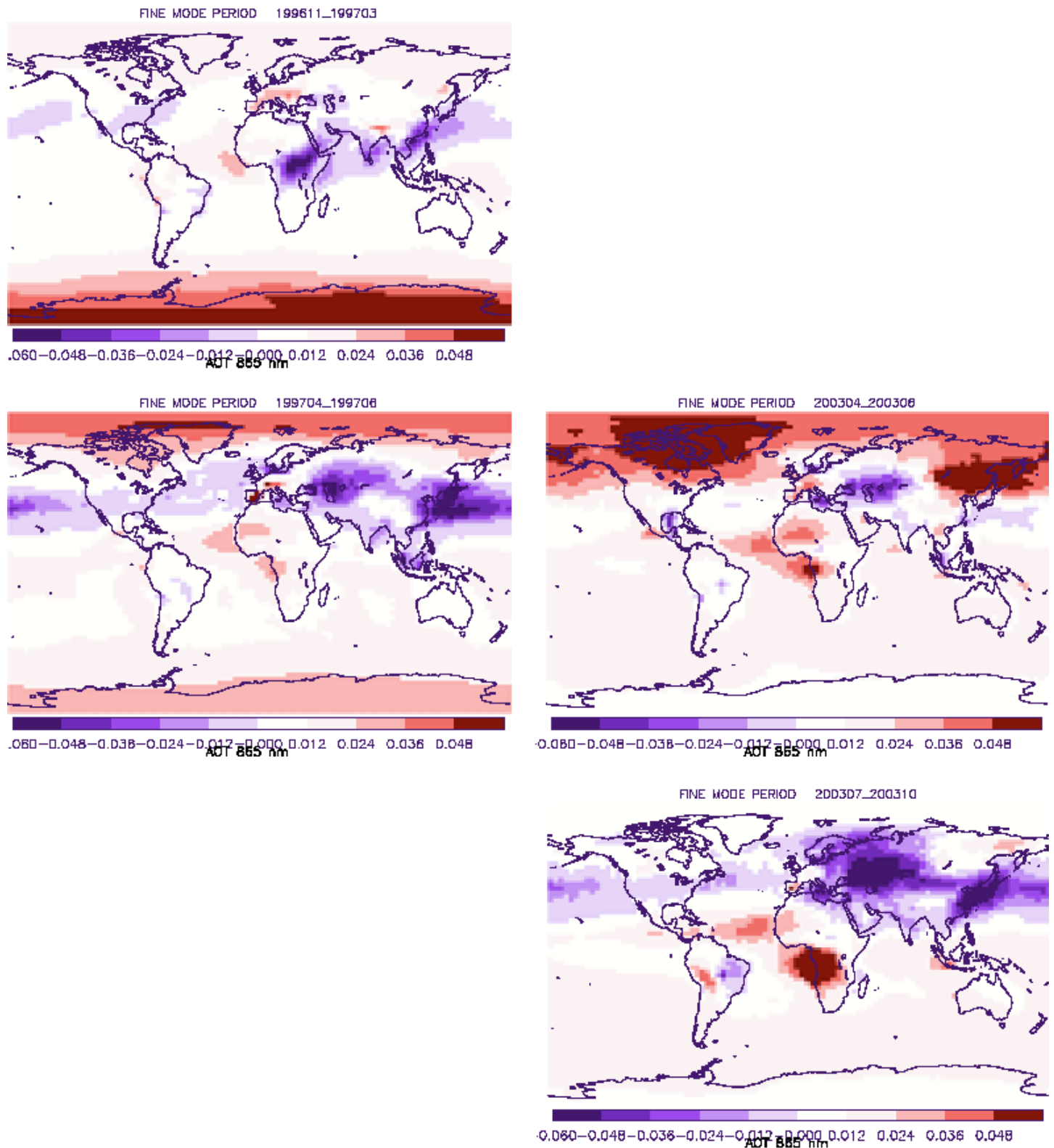


Figure 6.6 : Différence entre la version incluant l'assimilation des données et la version standard pour le mode fin en moyenne sur trois périodes. La période 1 (première ligne) correspond aux mois de novembre 1996 à mars 1997. La période 2 (deuxième ligne) correspond aux mois d'avril à juin 1997 (à gauche) et 2003 (à droite). La période 3 (dernière ligne) correspond aux mois de juin à octobre 2003. Les différences positives (rouges) correspondent à une augmentation des valeurs d'AOT à 865 nm après intégration des données POLDER ; les différences négatives (bleues) à une diminution.

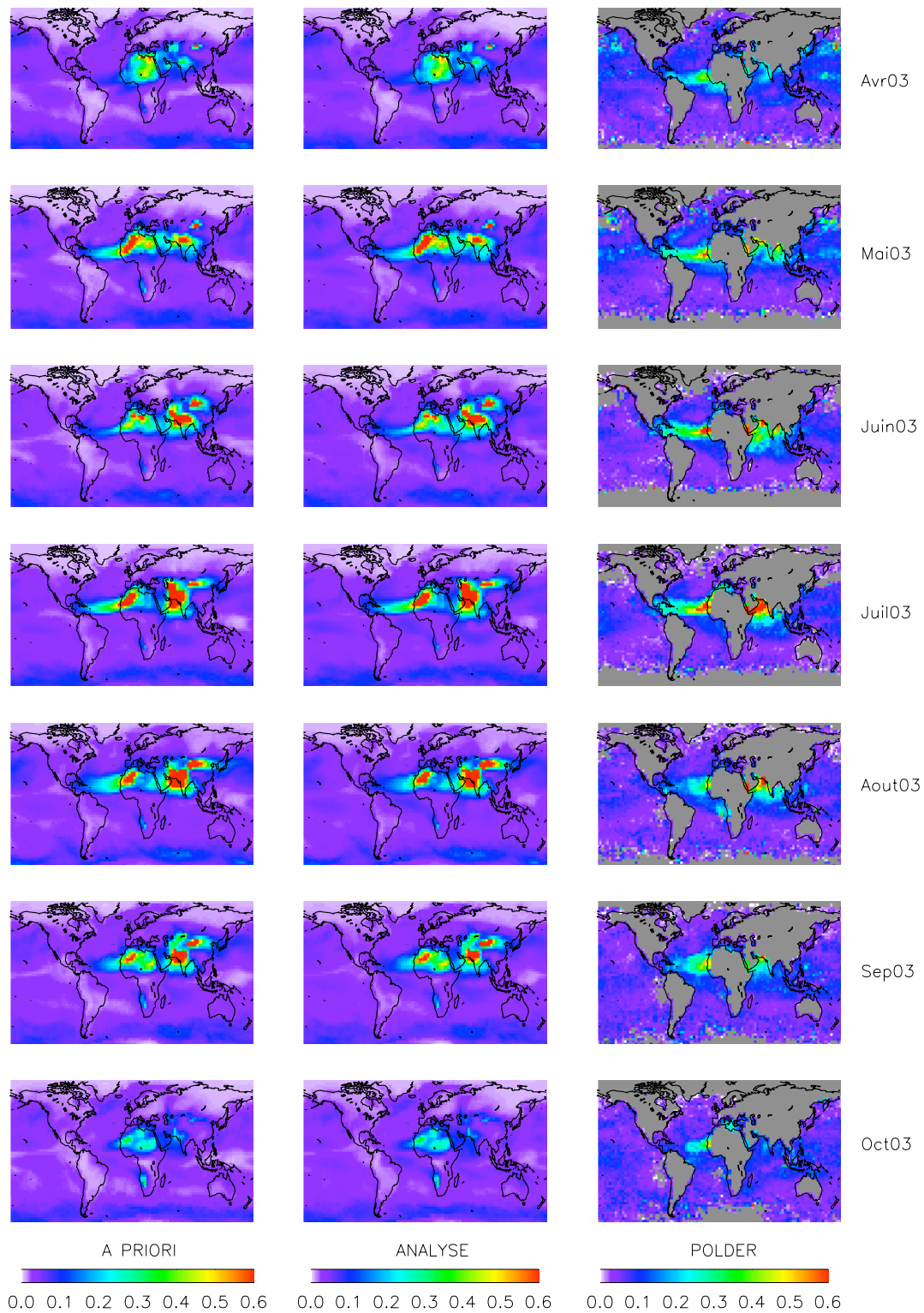


Figure 6.7 Moyenne mensuelles des AOT à 865 nm à priori (à gauche), analysé (milieu) et observé (à droite) pour le mode *GROSSIER*.

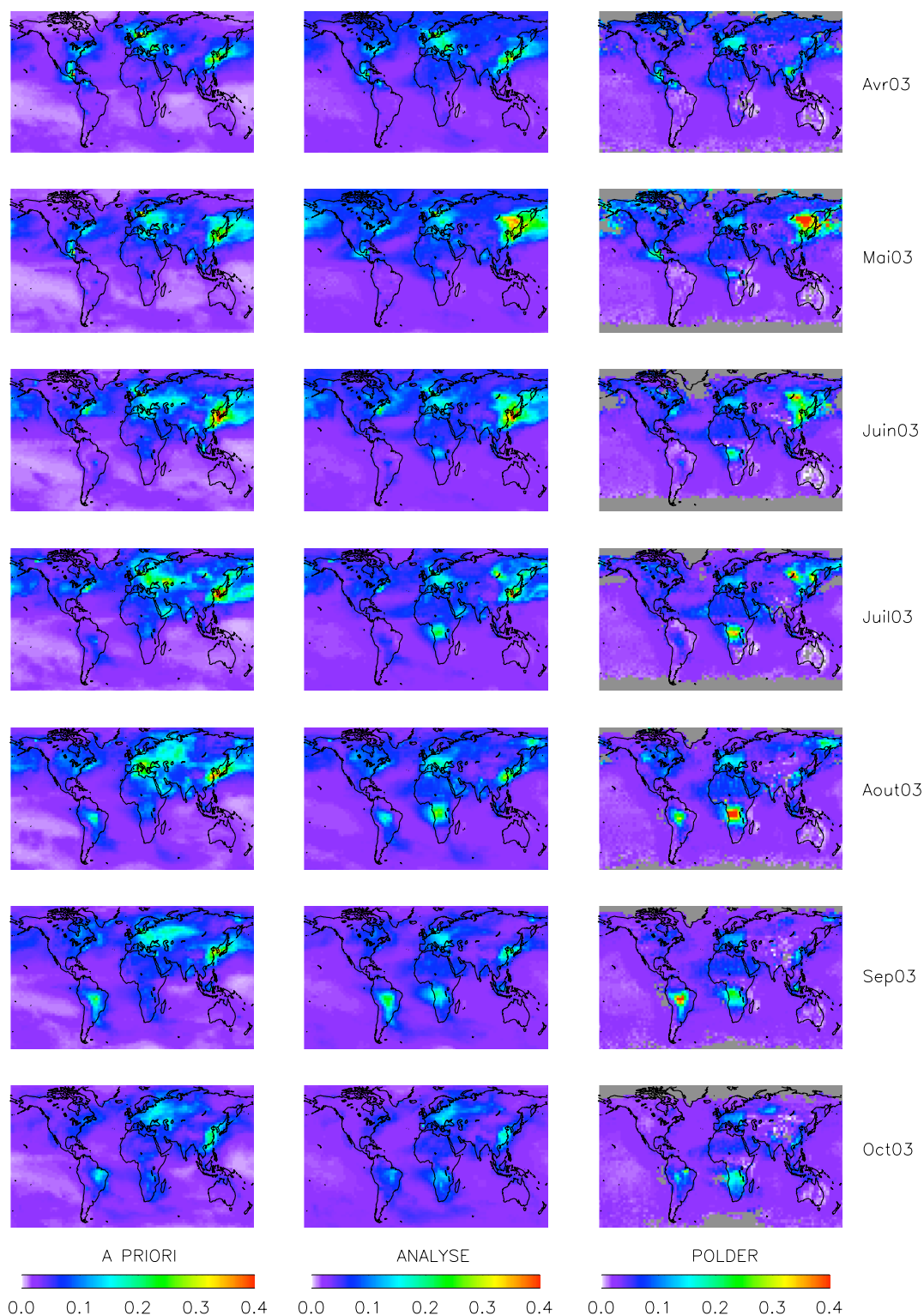


Figure 6.8 : Même figure que la Figure 6.7 pour le mode fin

6.5.2 Analyse par régions

Les valeurs journalières des AOT simulées par la version standard et par celle incluant l'assimilation sont comparées aux mesures des stations AERONET région par région. La période considérée est celle de POLDER-2 d'avril à octobre 2003. Les résultats sont présentés pour les deux modes et pour les deux versions sur les Figure 6.9 à Figure 6.12. Ces résultats sont également présentés pour les observations sur les Figure 6.13 et 6.14. Ils sont tous basés sur le même échantillon de mesures AERONET (filtrées selon les heures de passage du satellite).

Les corrélations, les pentes des droites de régression ainsi que les erreurs quadratiques (RMS) sont améliorées par l'assimilation pour la majorité des régions. L'amélioration des corrélations signifie que le modèle représente mieux la variabilité des distributions d'aérosols, celle des droites de régressions signifie que les valeurs simulées sont plus proches de celles qui sont mesurées par AERONET. Pour le mode fin, on pourra noter en particulier les résultats pour l'Afrique et les régions industrielles et urbaines d'Amérique du Nord et d'Asie. Les deux régions océaniques bénéficient également d'améliorations significatives. Pour le mode grossier, on remarquera les améliorations en Afrique du Nord, en Europe et dans les deux régions océaniques.

La comparaison des résultats de l'assimilation à ceux de POLDER montre que pour le mode grossier, les corrélations et les RMS sont améliorées. Il y a un facteur deux dans la réduction des erreurs quadratiques.. Pour le mode fin, les résultats dépendent des régions. Dans la plupart des cas, on retrouve la même tendance à l'amélioration que pour le mode grossier. Dans les cas où les corrélations de la version assimilée sont moins bonnes que celles de POLDER, les corrélations du modèle a priori sont très faibles (inférieures ou égales à 0.2). Ces résultats sont encourageants car ils montrent que l'assimilation fournit une amélioration par rapport au modèle standard et, dans beaucoup de régions, par rapport aux observations. Ils sont cependant liés à l'échantillon utilisé pour les statistiques, qui est restreint pour que les comparaisons avec POLDER soient possibles. En outre, les résultats de POLDER correspondent à un produit dont la résolution est dégradée de manière importante par rapport aux capacités de l'instrument. Les statistiques ne sont donc pas représentatives de la qualité des produits POLDER à la résolution originale.

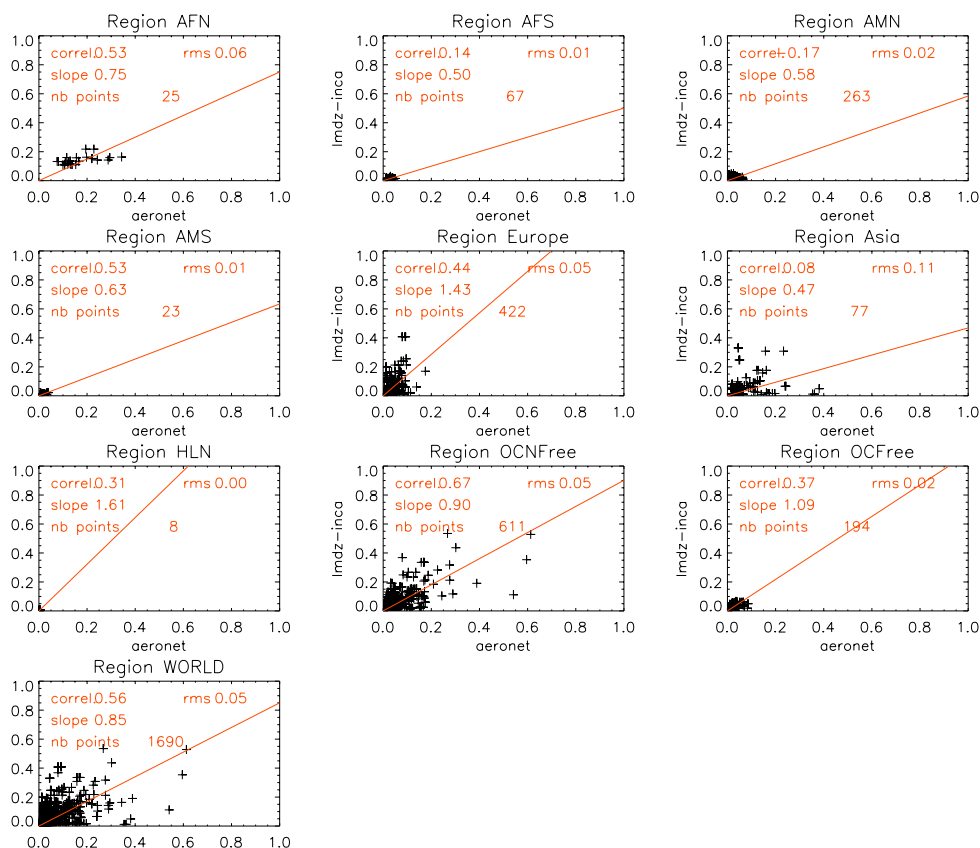


Figure 6.9 : Valeur d'AOT simulée par la version standard en fonction des valeurs mesurées pour le MODE GROSSIER

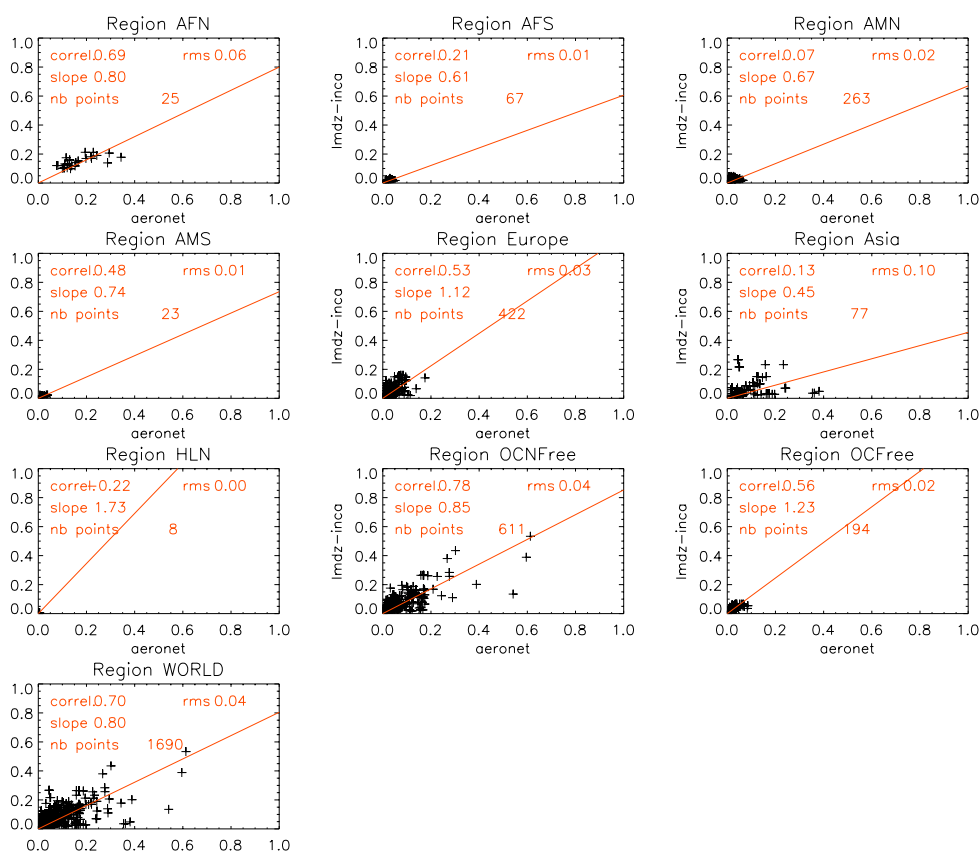


Figure 6.10 : Même figure pour la version corrigée par l'assimilation en fonction des valeurs mesurées (MODE GROSSIER)

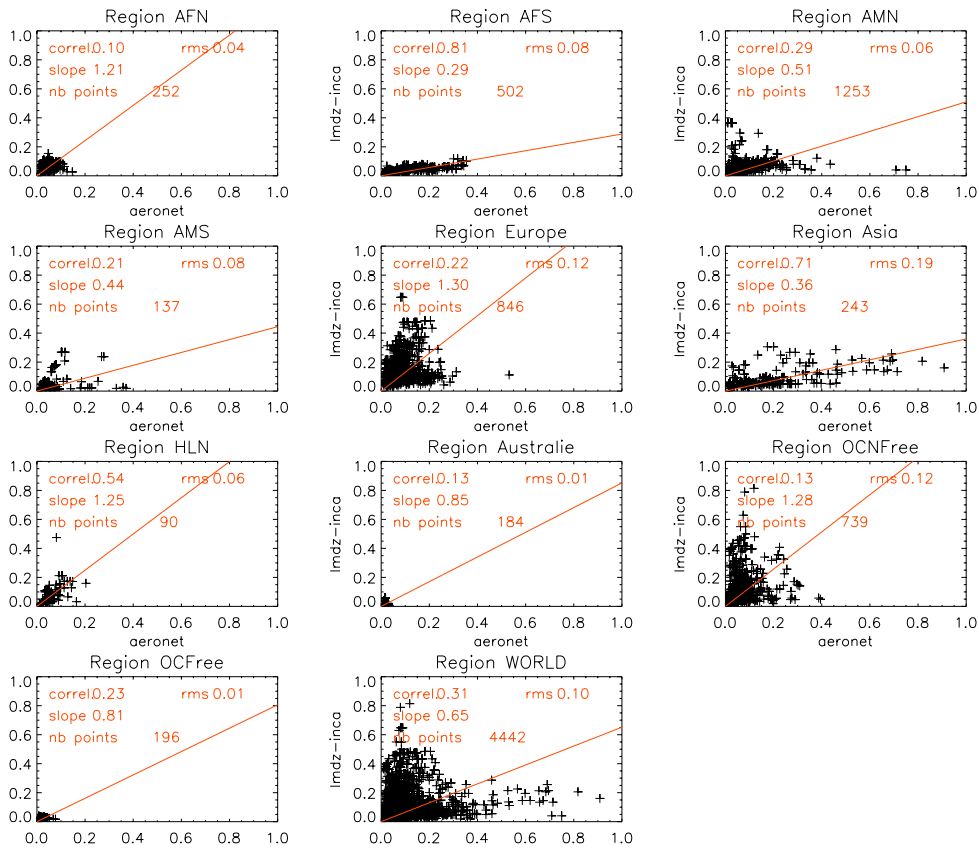


Figure 6.11 : Valeur d'AOT simulée par la version standard en fonction des valeurs mesurées pour le MODE FIN

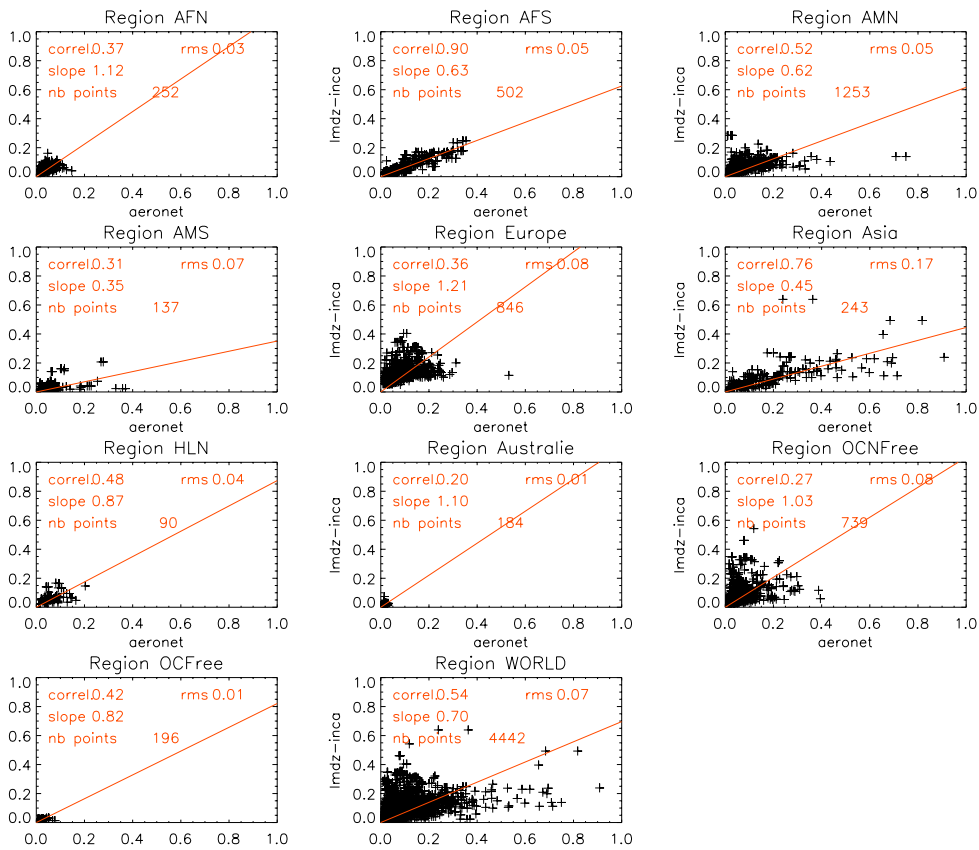


Figure 6.12 : Même figure pour la version corrigée par l'assimilation en fonction des valeurs mesurées (MODE FIN)

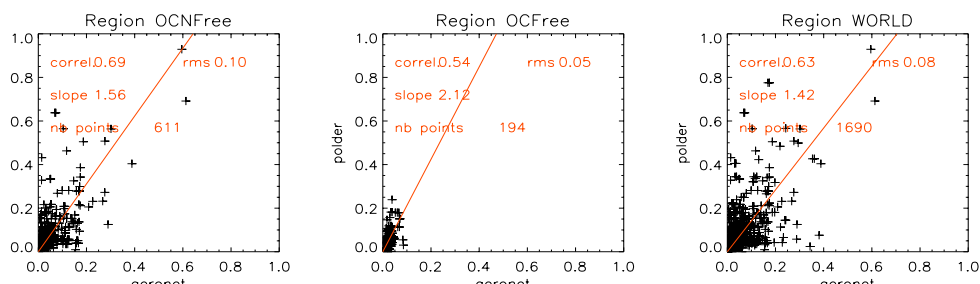


Figure 6.13 : Valeur d'AOT POLDER en fonction des valeurs mesurées pour le MODE GROSSIER

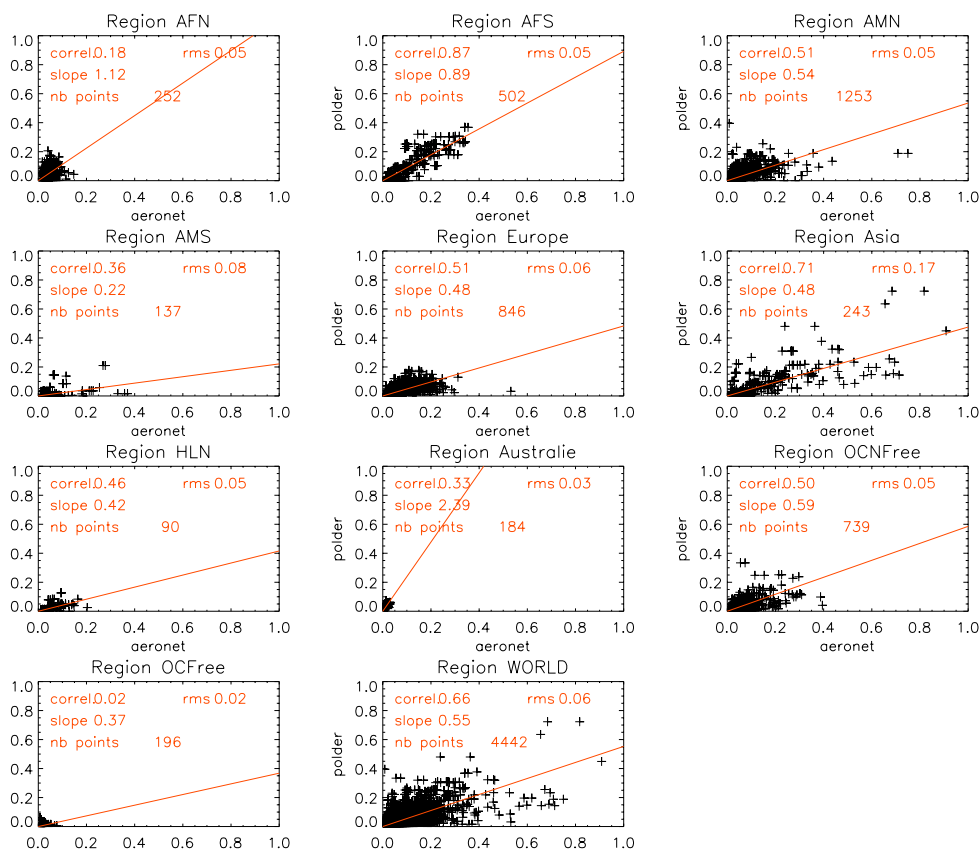


Figure 6.14 : Valeur d'AOT POLDER en fonction des valeurs mesurées pour le MODE FIN

6.5.3 Moyenne mensuelle aux stations AERONET

Les mesures AERONET à des stations particulières ont été utilisées pour évaluer les performances de la version assimilée et la comparer à la version précédente. Les stations dont les mesures couvrent la période d'observation de POLDER-2 ont été choisies. Parmi ces stations, celles qui sont les plus représentatives des différentes régions sont présentées. Elles sont visibles sur la Figure 6.15.



Figure 6.15 : Stations de mesures AERONET sélectionnées en 2003 pour évaluer les résultats de la version assimilée.

Les Figure 6.16 à Figure 6.19 présentent les résultats ; les stations sont regroupées par quatre pour plus de clarté. Les comparaisons des moyennes mensuelles des AOT à 865 nm sont présentées pour la fraction fine et grossière de l'aérosol pour chaque station. Les moyennes du modèle sont calculées à partir des jours où les observations sont disponibles. Le premier groupe de stations correspond aux régions d'Amérique du Nord et d'Europe. La fraction grossière de l'aérosol est faible, on note tout de même que les variations sont mieux représentées dans la version assimilée (en particulier à Ispira). En revanche, la fraction fine de l'aérosol a été modifiée de manière plus significative. Les amplitudes des courbes simulées sont sensiblement identiques (par exemple à Hambourg), mais le cycle annuel des AOT a été correctement ajusté aux mesures, en particulier à Konza et Ispira.

La Figure 6.17 présente les stations situées dans le bassin Méditerranéen. Dans cette région, il y a une présence plus forte de poussières désertiques qui sont transportées depuis le Sahara. Les variations de la fraction grossière étaient déjà correctement représentées dans la version standard du modèle ; l'assimilation des données n'a apporté que peu de modifications. Ces stations sont également sous l'influence de la pollution d'Europe. Pour le mode fin, l'assimilation des données a permis de corriger un cycle annuel mal représenté par la version standard (en particulier le maximum au mois d'août visible aux quatre stations). L'amplitude des courbes a été également ramenée au niveau observé (voir par exemple à Nes Ziona).

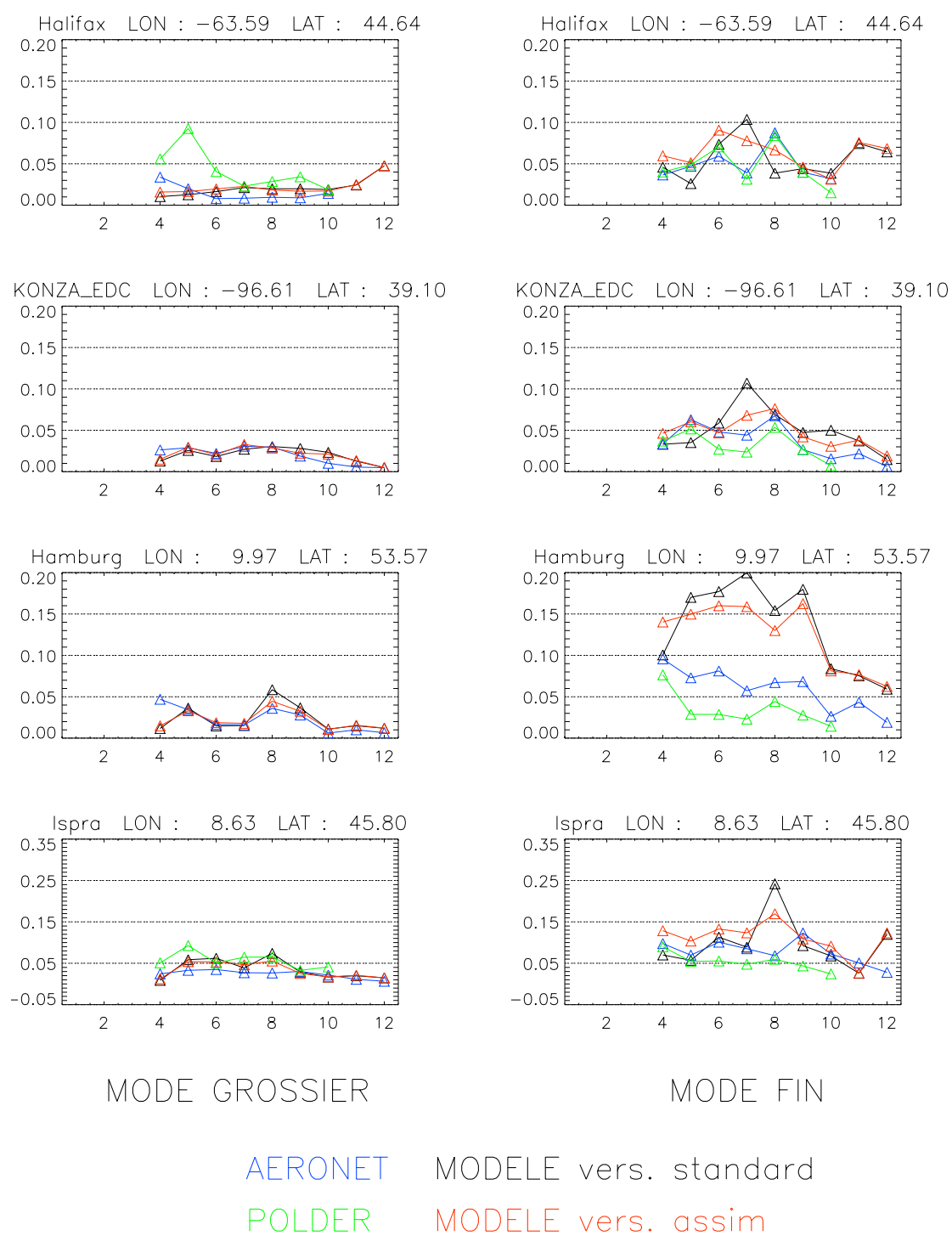


Figure 6.16: Moyennes mensuelles des AOT à 865 nm simulées par la version standard (en noir), par la version incluant l'assimilation (en rouge) et mesurées aux stations AERONET (en bleu) et par POLDER (en vert). Les stations sont en Amérique du Nord et Europe. La colonne de gauche correspond au mode grossier, celle de droite au mode fin.

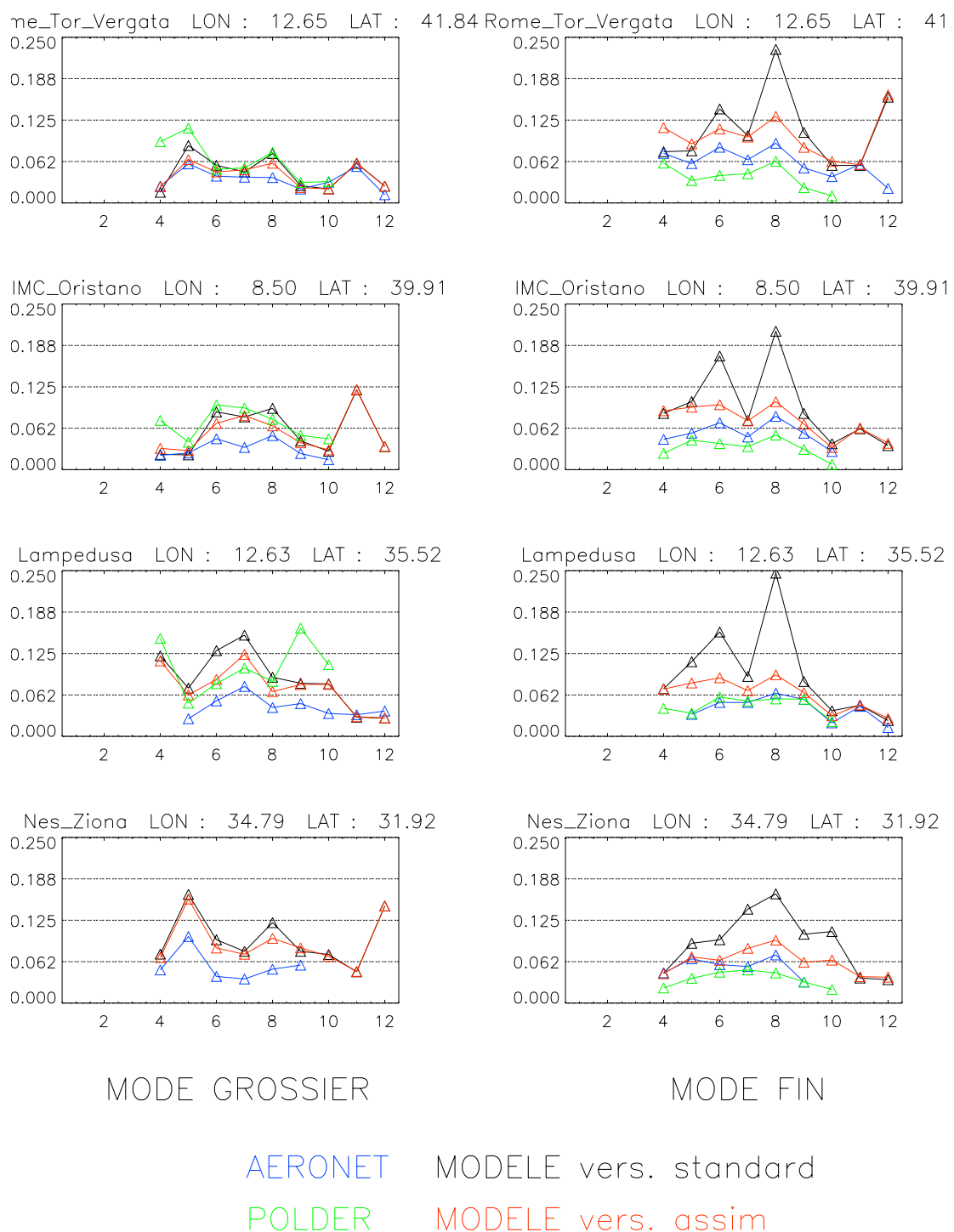


Figure 6.17 : Moyennes mensuelles des AOT à 865 nm simulées par la version standard (en noir), par la version incluant l'assimilation (en rouge) et mesurées aux stations AERONET (en bleu) et par POLDER (en vert). Les stations sont en Méditerranée. La colonne de gauche correspond au mode grossier, celle de droite au mode fin.

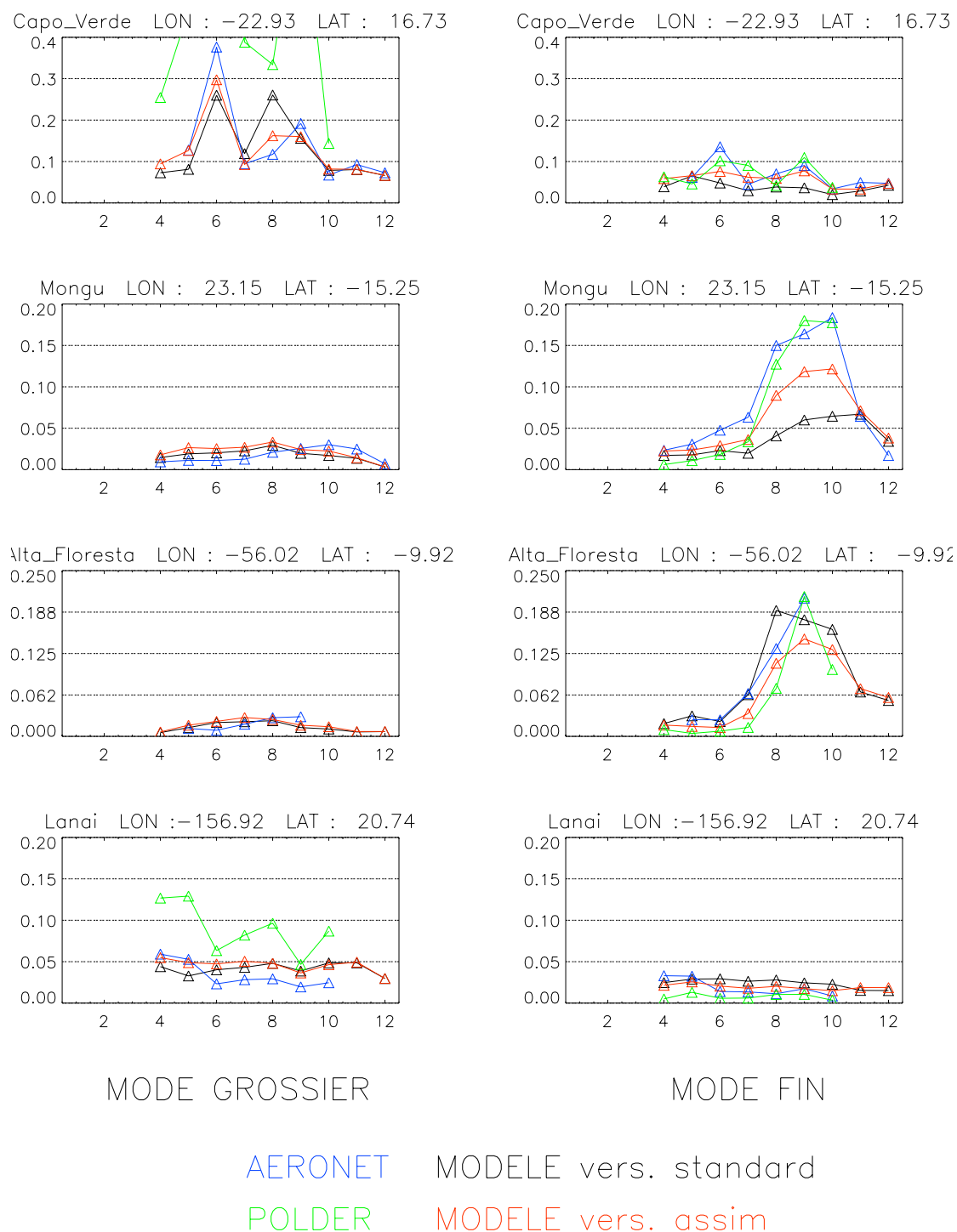


Figure 6.18 Moyennes mensuelles des AOT à 865 nm simulées par la version standard (en noir), par la version incluant l'assimilation (en rouge) et mesurées aux stations AERONET (en bleu) et par POLDER (en vert). Les stations sont en Méditerranée. La colonne de gauche correspond au mode grossier, celle de droite au mode fin.

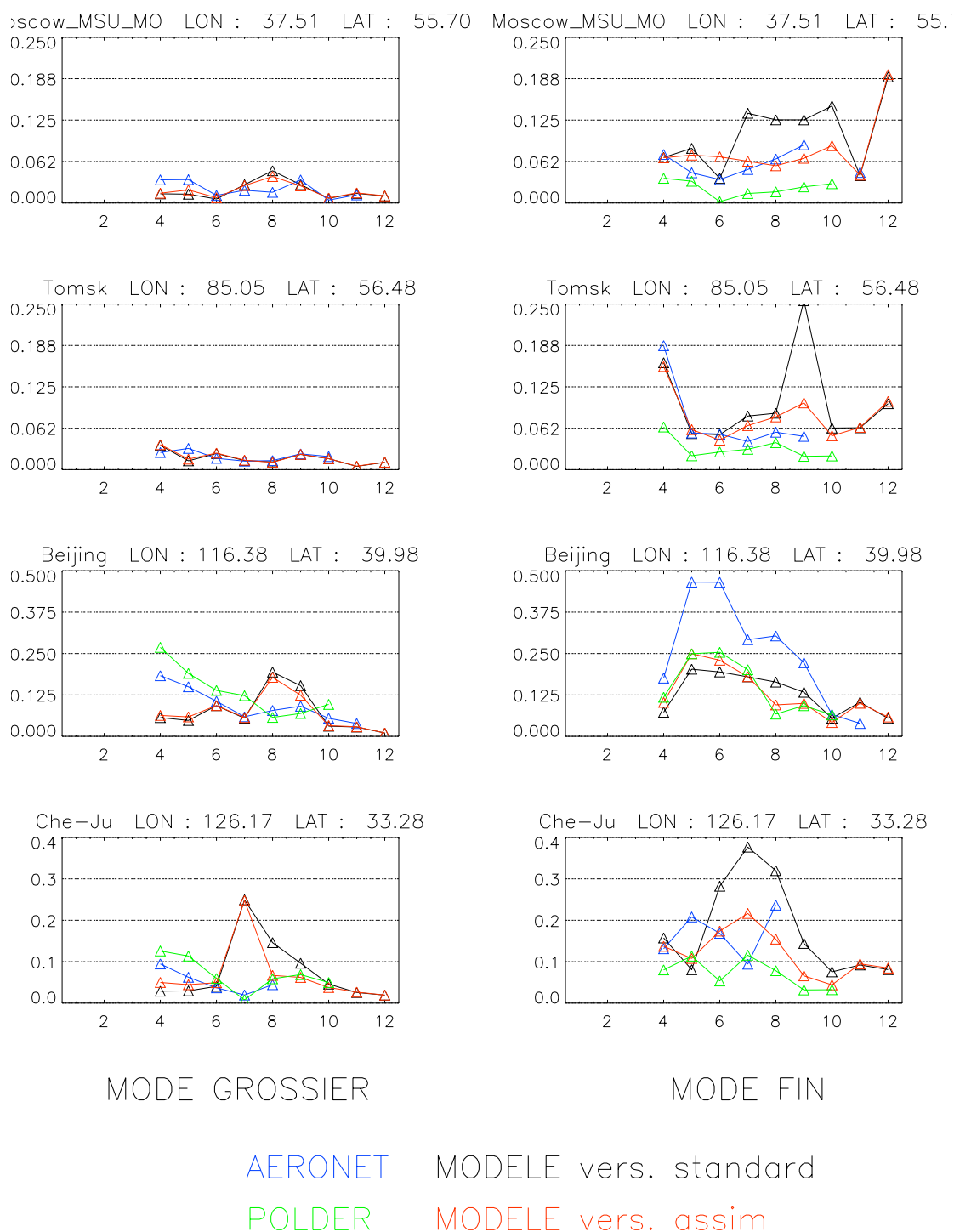


Figure 6.19 Moyennes mensuelles des AOT à 865 nm simulées par la version standard (en noir), par la version incluant l'assimilation (en rouge) et mesurées aux stations AERONET (en bleu) et par POLDER (en vert). Les stations sont en Asie et Eurasie. La colonne de gauche correspond au mode grossier, celle de droite au mode fin.

La Figure 6.18 présente les stations qui sont situées dans les latitudes tropicales. La première station, Capo Verde, est située dans une zone caractéristique de l'export de poussières désertiques. On note que l'assimilation a permis de corriger avec succès le cycle annuel simulé pour la fraction grossière. Les amplitudes simulées sont également en meilleur accord avec les mesures. Les deux stations suivantes, Mongu au Sud de l'Afrique et Alta Floresta en Amazonie, sont caractéristiques des principales régions de feux de biomasse. La version assimilée du modèle reproduit des variations qui sont similaires aux observations. En revanche, la sous-estimation des AOT n'a pas été entièrement corrigée. Enfin, la dernière station est située au milieu du Pacifique. Elle a été choisie car elle fournit un exemple du comportement du modèle dans les régions océaniques éloignées des sources continentales.

Enfin, la Figure 6.19 correspond aux stations en Eurasie (Moscou) et en Asie. Les données sont rares dans ces régions, inexistantes avant 1998. L'analyse sur la période couverte par la deuxième mission POLDER permet ainsi d'évaluer pour la première fois de cette étude les performances du modèle à des stations particulières de cette région. À Moscou et Tomsk, le cycle des moyennes mensuelles de la fraction fine a été corrigé avec succès (à la fois en termes de variations et d'amplitude). À Pékin, les variations sont également plus satisfaisantes dans la version assimilée que dans la version standard. Cependant, les valeurs particulièrement importantes du mois de mai 2003 ne sont pas reproduites alors que POLDER observe des valeurs comparables à ce qui est mesuré (voir Figure 6.8). Enfin à Che-Ju, le modèle a priori prévoit un épisode important d'aérosols dans la fraction grossière pendant l'été, ce qui est en désaccord avec les mesures à la fois en termes de variabilité et d'amplitude. L'assimilation des données n'a pas pu corriger ce désaccord, probablement parce que l'information des erreurs sur l'une ou l'autre des composantes n'est pas correcte.

6.6 Exemple d'application

Une des incertitudes majeures quant au forçage radiatif sur le climat concerne les interactions entre nuages et aérosols. En effet, les aérosols peuvent servir de noyaux de condensation pour la formation des nuages, modifier leur distribution en taille ce qui conduit à des impacts importants sur leurs propriétés optiques ainsi que leur durée de vie. Les observations spatiales sont extrêmement utiles pour analyser statistiquement l'impact des aérosols sur les nuages. En effet, à partir de mesures nombreuses et distribuées spatialement et temporellement sans biais, on peut quantifier l'impact des aérosols sur les structures nuageuses.

Au cours d'un premier travail réalisé précédemment à cette thèse [Bréon *et al.*, 2002], nous avons pu observer une nette corrélation entre l'"indice aérosol POLDER", un produit ancien qui estimait la charge en aérosols fins, et la taille des gouttelettes dans les nuages. Ce travail avait deux limitations importantes.

D'une part, les observations de paramètres aérosols n'étaient pas concomitantes avec celles des paramètres nuageux. En effet, la quantification de la charge en aérosols est pratiquement impossible avec les instruments passifs dans le cas de couvertures nuageuses étendues. Nous avons donc dû effectuer des rétro-trajectoires entre l'observation du paramètre "taille de goutte" et une observation qui nous donnait la charge en aérosols. Il y a bien entendu des incertitudes associées, en particulier puisque on ne dispose pas d'information sur l'altitude de la couche nuageuse et de l'observation aérosol. Par ailleurs, l'observation spatiale utilisée ne permettait pas de

caractériser le type d'aérosol qui contribue à la charge observée. Nous avons donc estimé une sensibilité globale, sans caractériser l'impact par type d'aérosol.

La procédure d'assimilation permet de répondre partiellement à ces deux limitations. En effet, nous disposons avec cette méthode d'un champ d'aérosol sur l'ensemble du globe (i.e. sans restriction liée à la présence de nuages) et avec une information sur le type de particule qui est une combinaison optimale des observations POLDER et du modèle LMDz-INCA. Bien entendu, de nombreuses hypothèses subsistent. Comme nous l'avons vu plus haut, les résultats de l'assimilation ne sont pas parfaits, ce qui implique un bruit significatif sur les champs d'aérosols. Cependant, ils sont obtenus à partir d'une certaine information sur le contenu en aérosols par niveaux verticaux et du transport associé, ce qui permet de prendre en compte une modélisation du transport plus réaliste qu'avec une rétro-trajectoire sur un niveau de pression supposé, comme nous le faisons.

Par ailleurs, même si les émissions du modèle ne sont pas parfaites, la localisation des zones sources et des panaches associés constitue une information fiable. La spéciation des espèces observées est alors une information utile et fiable, sauf dans quelques zones où des mélanges importants ont lieu.

Dans ce qui suit, nous utilisons les observations du satellite POLDER-2 qui sont disponibles sur la période avril - octobre 2003. Des estimations de taille des gouttes ont été effectuées suivant la méthode décrite dans [Bréon and Goloub, 1998]. Pour chaque estimation valide de la taille des gouttes, nous avons échantillonné le modèle au lieu et date correspondant. On dispose ainsi de plus de 100.000 couples (goutte, aérosol). Les paramètres aérosols utilisés sont la concentration en nombre pour les types "sulfates", "carbonés", "poussières" et "marins".

Notons que, si la concentration en aérosol était le seul paramètre à influencer sur la microphysique des nuages (ce qui n'est évidemment pas le cas), on s'attendrait à ce que le volume des gouttelettes soit inversement proportionnel au nombre des particules d'aérosols (n). Puisque le volume varie comme le cube du rayon (r), on aurait $r \approx n^{-1/3}$.

La Figure 6.20 montre les résultats bruts. On indique la taille des gouttes en fonction de la concentration en nombre pour chacune des espèces. Sur ces figures, on ne représente qu'un point sur 50 pour ne pas les surcharger. Les carrés rouges avec les barres d'erreur indiquent la moyenne et l'écart type des valeurs observées pour chaque classe de nombre (nous avons divisé l'intervalle de concentration en nombre en 20 classes de même nombre d'observations). On observe que les types d'aérosol "sulfates", "carbonés" et "poussières" montrent une corrélation inverse avec la taille des gouttes, comme attendu, bien que la pente soit légèrement inférieure à la valeur $1/3$ donnée par la théorie simpliste ci-dessus. Une régression linéaire sur ces mesures donne des pentes négatives de 0.16, 0.17 et 0.10 respectivement. Pour ce qui est des aérosols marins, on observe une pente qui est inverse de ce qui est attendu par la théorie des noyaux de condensation. Nous discutons cette observation ci-dessous.

Les distributions d'aérosols des différents types sont spatialement corrélées, voire anti-corrélées en ce qui concerne les aérosols marins. La corrélation observée n'implique donc pas causalité et ne permet donc pas une mesure directe de l'impact d'un type d'aérosol sur la taille des gouttes dans les nuages. Pour raffiner l'étude, les

tailles de gouttes sont estimées par régression linéaire sur le nombre de particules de chaque type pris séparément suivant la formule

$$\ln(r) = \alpha_{carb} \ln N_{carb} + \alpha_{sulf} \ln N_{sulf} + \alpha_{dust} \ln N_{dust} + \alpha_{mar} \ln N_{mar} + \beta$$

Les différents paramètres sont estimés par une minimisation quadratique sur les observations. On a reporté les résultats en bleu sur la figure.

On constate que les pentes sont légèrement diminuées pour les aérosols carbonés et sulfates, et très fortement diminués en ce qui concerne les poussières. On peut déduire de ce résultat que l'apparente corrélation entre charge en poussière et taille de goutte dans les nuages est en fait lié à une corrélation statistique entre les poussières et les autres aérosols (carbonés et sulfates) qui ont un effet réel sur les nuages.

La pente positive entre taille de goutte et aérosols marins demeure. Il existe des processus spécifiques entre aérosols marins et nuages [Feingold *et al.*, 1999] qui dépassent largement le cadre de cette thèse. Par ailleurs, les champs d'aérosols peuvent être corrélés à d'autres variables qui influent aussi la microphysique des nuages. Nous pensons en particulier au contenu en eau de l'atmosphère. Une fois de plus, corrélation n'implique pas causalité et il ne faut pas sur-interpréter ces résultats préliminaires.

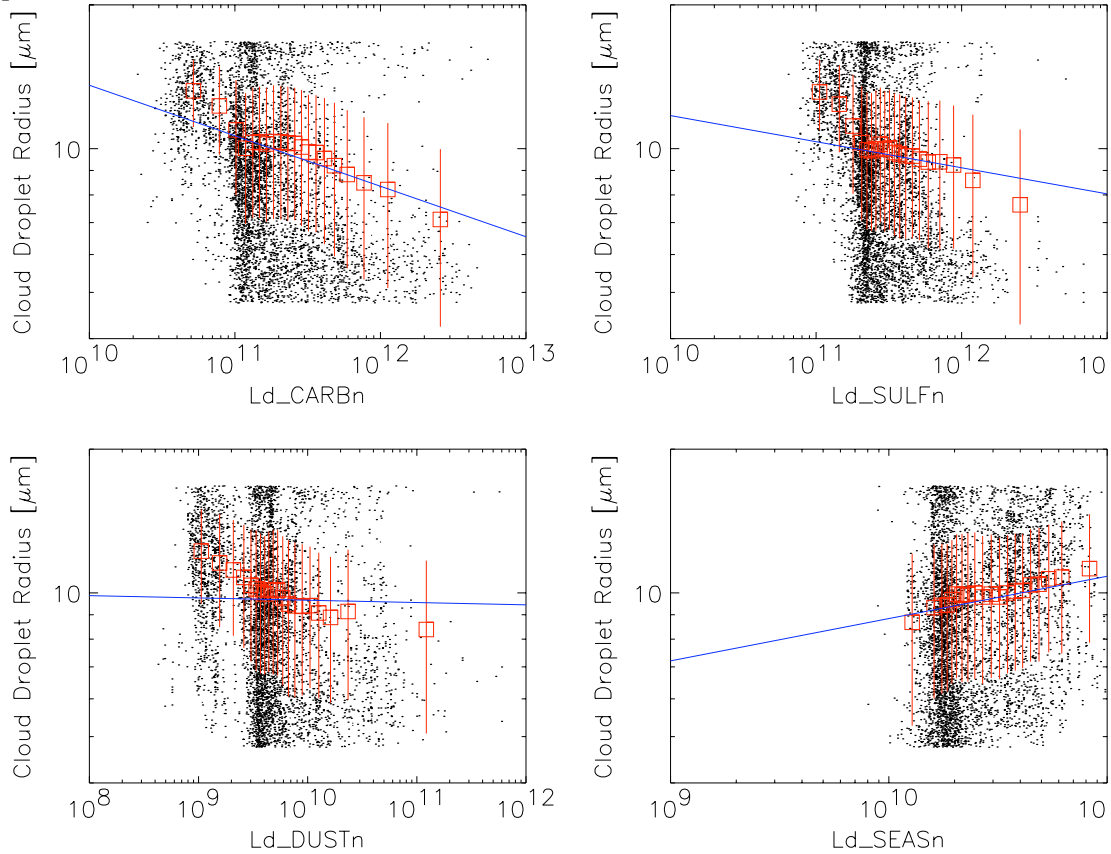


Figure 6.20: Résultat d'une analyse statistique entre la densité en nombre des aérosols, après assimilation des observations POLDER dans le modèle de transport LMDz, et la taille des gouttes dans les nuages estimée directement à partir des mesures de POLDER. Chaque point noir indique un couple (un sur cinquante sont montrés pour que la figure reste lisible). Les symboles rouges indiquent la moyenne et l'écart-type des rayons observés pour chaque classe de nombre (nous avons défini les classes en nombre pour qu'elles contiennent un nombre constant de points). Enfin, la ligne bleue indique le résultat de l'analyse multilinéaire qui prend en compte la contribution de chaque type d'aérosols.

6.7 Conclusion

Un code d'assimilation d'épaisseur optique des aérosols (AOT) a été développé et appliqué à un modèle tridimensionnel de chimie troposphérique couplé à un modèle de circulation générale. Le concept de l'assimilation des données est simple. Il s'agit de combiner l'information fournie a priori par un modèle et par des observations en fonction des erreurs connues pour chacune des composantes. Cependant, sa mise en place pour les applications de météorologie ou de chimie atmosphérique s'avère rapidement difficile compte tenu de la dimension des paramètres à intégrer. La méthode choisie, comme première approche dans le cadre des aérosols, repose sur une intégration séquentielle en temps des données observées au sein du modèle. Le filtre de Kalman, simplifié dans notre contexte, est utilisé. Les aérosols étant caractérisés par une forte variabilité spatiale, les erreurs de l'a priori et des observations sont supposées être non corrélées dans l'espace et dans le temps. Cette hypothèse permet un traitement scalaire du formalisme, qui se traduit par un développement simple et un temps de calcul faible.

Les données de l'instrument spatial POLDER qui sont disponibles sur une période totale de quinze mois (entre novembre 1996 et juin 1997 et entre avril et octobre 2003) sont utilisées. Les inversions de cet instrument fournissent des valeurs d'AOT pour les fractions fine et grossière des aérosols. Ces deux types de produits sont intégrés séparément dans le modèle, en supposant que leurs erreurs sont décorrélées. Les données du mode grossier sont disponibles sur les océans uniquement. Les observations sont intégrées dans le modèle LMDz-INCA. Les observations spatiales ne fournissant pas l'information sur les profils verticaux et les distributions par espèce, les profils du modèle a priori sont conservés. En revanche, l'intégration simultanée des deux produits autorise la redistribution des masses entre les deux modes. L'information sur les modes en taille contenue dans les données POLDER est une première étape vers la différenciation des types d'aérosols depuis l'espace, et seuls les instruments dédiés à l'observation de ces particules comme POLDER ou MODIS fournissent une telle indication. Elle constitue ainsi l'une des originalités de ce travail.

Les mesures in situ d'AOT du réseau AERONET sont utilisées pour caractériser les erreurs du modèle et des observations sur une base objective. Elles sont disponibles pour les fractions fines et grossières, ce qui permet de caractériser indépendamment les erreurs des deux produits observés et de leur équivalent a priori. La difficulté est due au fait qu'il faut attribuer les erreurs en chaque point du globe à partir d'une centaine de stations dont la répartition est inhomogène. Le choix a été fait de caractériser les erreurs par région homogène en termes d'espèces et/ou de processus (de sorte de distinguer les régions d'émissions des zones de transport par exemple).

Des critères de validation a posteriori ont été utilisés pour juger de la stabilité, de la cohérence et de l'optimalité du code d'assimilation développé. Les deux systèmes mis au point satisfont les critères. Cependant, des différences entre les assimilations des données des modes fin et grossier apparaissent. Il est plausible que le système mis au point pour le mode grossier (uniquement sur les océans) soit basé sur des statistiques d'erreur obtenues à partir de stations AERONET non représentatives de l'ensemble des régions océaniques.

La qualité du champ assimilé est évaluée par rapport à la version standard par comparaisons aux mesures du réseau AERONET. Les résultats montrent une

amélioration significative des corrélations et des erreurs quadratiques. De plus, ces améliorations se notent également par rapport aux produits POLDER assimilés dans la plupart des régions. Il faut néanmoins garder à l'esprit que ces statistiques se réfèrent à un produit observé dont la résolution spatiale a été dégradée de manière importante par rapport aux capacités de l'instrument. Ces résultats démontrent néanmoins tout l'intérêt de telles méthodes. Ils offrent des perspectives importantes pour les applications au forçage radiatif des aérosols, par exemple.

Un exemple d'application à l'assimilation des aérosols dans un modèle de transport a été présenté. La taille des gouttelettes nuageuses qui découle de l'observation de POLDER a été mise en relation avec les nombres de particules par espèces fournis par le modèle assimilé. Ces travaux reprennent ceux d'une étude antérieure (Bréon et al, 2002). Bien que les résultats soient préliminaires, il démontre tout l'intérêt de combiner l'information complémentaire des satellites et des modèles.

Chapitre 7

Conclusion

Au cours de mon travail de thèse, je me suis intéressée aux aérosols. Ces particules qui sont en suspension dans l'atmosphère ont un impact radiatif encore mal connu en termes quantitatifs. Les incertitudes sur leurs distributions sont encore trop importantes pour connaître avec précision leurs impacts climatiques.

L'ensemble de mon travail de thèse a visé à réduire ces incertitudes. J'ai eu le souci constant d'utiliser toute l'information disponible pour comprendre et améliorer notre connaissance des distributions d'aérosols. Dans un premier temps, ce sont les comparaisons entre modèles, mesures depuis le sol et observations spatiales qui m'ont fournies des indications sur la représentation des processus d'émissions, de transport et sur le calcul des propriétés optiques dans le modèle. Ces comparaisons m'ont permis de mettre en avant une représentation insatisfaisante du cycle saisonnier des émissions de feux de biomasse dans des régions clés. Pour les corriger, j'ai fait appel à l'observation des feux par satellite, ce qui m'a permis d'introduire la variabilité spatiale, intra- et inter-annuelle dans les inventaires d'émission utilisés par le modèle. C'est de nouveau vers les observations des satellites que je me suis tournée pour obtenir des indications sur la représentation des processus de transport des aérosols dans le modèle. Les satellites sont en effet particulièrement adaptés au suivi des panaches d'aérosols, qui constituent des cas d'études incontournables pour évaluer le modèle, même s'ils ne constituent que des exemples particuliers. Les mesures in situ, elles, m'ont permis d'évaluer quantitativement les performances du modèle, par régions et à des stations spécifiques. Elles m'ont en particulier permis de juger des modifications apportées aux inventaires d'émissions des feux et au calcul de l'épaisseur optique dans le modèle.

L'ensemble des résultats obtenus dans cette première étape de mon travail montre que l'étude des aérosols gagne à utiliser l'information des différents outils dont nous disposons actuellement. J'ai voulu aller plus loin dans l'utilisation concomitante des modèles et des observations par satellites en développant une méthode d'assimilation

des données spatiales dans un modèle de chimie-transport. Le travail présenté dans cette thèse constitue une des premières approches de ce type de méthode dans le contexte des aérosols. Bien que la méthode utilisée ait été simplifiée, les résultats obtenus démontrent que l'on peut réduire les incertitudes sur les distributions d'aérosols en combinant de manière optimale modèle et observations. En effet, la version du modèle qui est corrigée par l'assimilation présente des résultats qui sont améliorés (en termes de corrélation et d'erreurs quadratiques) dans la plupart des régions, non seulement par rapport au modèle initial, mais également par rapport aux observations assimilées. C'est un résultat déjà intéressant en soi qui démontre tout l'intérêt de telles méthodes. Mais il ouvre également de larges perspectives pour les applications aux estimations de forçages radiatifs.

Il reste cependant beaucoup à faire pour améliorer notre connaissance des aérosols. Mes travaux ont permis d'ouvrir des pistes nombreuses pour améliorer notre compréhension du modèle utilisé. Du point de vue des émissions d'aérosols, j'ai montré les limites de la résolution mensuelle des inventaires utilisés pour les aérosols carbonés et sulfatés. Je pense que, au moins pour les émissions des feux, il y a des moyens d'obtenir une échelle plus fine que celle du mois (à dix jours par exemple) en utilisant les produits des satellites. En ce qui concerne les processus de transport des aérosols dans le modèle, il y a beaucoup à comprendre sur le dépôt des particules, qui semble surestimé de manière générale. L'étude des épisodes a permis de fournir des indications qu'il faudrait désormais traduire en termes quantitatifs. C'est également – et surtout – le calcul des épaisseurs optiques dans le modèle qu'il faut s'attacher à mieux comprendre. C'est la grandeur sur laquelle nous basons toutes nos comparaisons avec les observations spatiales. Elle dépend fortement de l'humidité relative. Or il n'existe pas de mesures de la quantité d'eau capturée par les différents types d'aérosols. Par conséquent, on ne peut pas valider directement les hypothèses faites dans le modèle. Y a-t-il un moyen de mieux contraindre cette quantité ?

D'autre part, la méthode d'assimilation développée pourrait être améliorée en prenant en compte des corrélations spatiales et temporelles des erreurs. Il faudrait alors probablement se tourner vers des méthodes variationnelles qui permettrait de limiter les difficultés dues aux inversions matricielles, mais qui, en contre partie, demandent des développements importants. Nous pourrions aussi imaginer intégrer l'information de différentes sources simultanément (i.e. différents satellites, mesures in situ ...). Les méthodes d'assimilation ne doivent cependant pas être considérées comme des substituts au développement des modèles. Il y a encore beaucoup d'hypothèses qui reposent sur des paramètres non mesurables et qui ne peuvent pas être validés par des mesures. Nous en avons donné un exemple plus haut. Dans ces cas, ce sont essentiellement des tests de sensibilité et des comparaisons indirectes à des grandeurs mesurables qui permettront de mieux prendre en compte les phénomènes associés. En revanche, nous pouvons envisager que les flux d'émissions ou de dépôt, qui ne sont pas quantifiables par les observations, soient contraints par une assimilation quadridimensionnelle.

Dans l'ensemble de ce travail, la dimension verticale des distributions d'aérosols n'a pas été considérée parce que les observations actuelles ne nous fournissent aucune information à l'échelle planétaire. Or, de nouveaux types de données sont attendues dès 2005 avec le lancement de la mission CALIPSO qui embarquera un lidar spatial. Pour la première fois, la distribution verticale des aérosols sera observée à l'échelle planétaire. Ces données sont uniques en soi, et permettront sans aucun doute

d'améliorer nos connaissances sur les processus de convection, de transport vertical entre autres. Intégrées dans un système d'assimilation, elles permettraient de contraindre le profil vertical des modèles. L'utilisation de ces nouveaux produits se place dans l'optique de la réduction des incertitudes sur les distributions d'aérosols. En ce sens, elle pourrait être considérée comme une suite logique à ces travaux. Cela permettra bien sûr de fournir des informations sur l'impact radiatif de ces particules. Mais cela permettra aussi d'améliorer nos connaissances sur les basses couches de l'atmosphère, et ainsi d'ouvrir le champ, avec des outils adaptés, aux études de leur impact sur l'environnement et sur les populations.

Références bibliographiques

A

- Ackerman, A.S., O.B. Toon, D.E. Stevens, A.J. Heymsfield, V. Ramanathan, and E.J. Welton, Reduction of tropical cloudiness by soot, *Science*, 288, 1042-1047, 2000.
- Andreae, M.O., Climatic effects of changing atmospheric aerosol levels. In *World Survey of Climatology*, 341-392 pp., Elsevier, Amsterdam, 1995.
- Andreae, M.O., and P. Merlet, Emission of trace gases and aerosols from biomass burning, *Global Biogeochem. cycles*, 15, 955-966, 2001.
- Arino, O., and J.M. Melinotte, Fire index atlas, *Earth observation quarterly*, 50, 1995.

B

- Basset, M., and J.H. Seinfeld, Atmospheric equilibrium model of sulphate and nitrate aerosols. II. Particle size analysis., *Atmos. Env.*, 18, 1163, 1984.
- Bellouin, N., O. Boucher, D. Tanré, and O. Dubovik, Aerosol absorption over the clear-sky oceans deduced from POLDER-1 and AERONET observations, *Geophysical research letters*, 30 (14), doi:10.1029/2003GL017121, 2003.
- Berresheim, H., F.L. Eisele, D.J. Tanner, L. McInnes, D.C. Ramsey-Bell, and D.C. Covert, Atmospheric Sulfur Chemistry and Cloud Condensation Nuclei (CCN) concentrations over the Northeastern Pacific coast, *Journal of Geophysical Research*, 98, 12701, 1993.
- Blanchard, D.C., *The production, distribution and bacterial enrichment of the sea-salt aerosol*. In *Air-Sea exchange of gases and particles*, 407-454 pp., Reidel, Boston, USA, 1983.
- Boucher, O., M. Pham, and C. Venkataraman, Simulation of the atmospheric sulfur cycle in the Laboratoire de Météorologie Dynamique General Circulation Model. Model description, model evaluation, and global and European budgets, *Notes scientifiques de l'IPSL* (23), 2002.
- Boucher, O., and D. Tanré, Estimation of the aerosol perturbation to the Earth's radiative budget over oceans using POLDER satellite retrievals, *Geophysical research letters*, 27 (8), 1103-1106, 2000.
- Bréon, F.-M., and P. Goloub, Cloud droplet effective radius from spaceborne polarization measurements, *Geophysical Research Letters*, 25, 1879-1882, 1998.
- Bréon, F.-M., D. Tanré, and S. Generoso, Aerosol effect on cloud droplet size monitored from satellite, *Science*, 295, 834-838, 2002.

C

- Chiapello, I., P. Goloub, D. Tanré, A. Marchand, J. Herman, and O. Torres, Aerosol detection by TOMS and POLDER over oceanic regions, *Journal of Geophysical Research - Atmospheres*, 105 (D6), 7133-7142, 2000.
- Chin, M., P. Ginoux, S. Kinne, O. Torres, B.N. Holben, B.N. Duncan, R.V. Martin, J.A. Logan, A. Higurashi, and T. Nakajima, Tropospheric aerosols optical thickness from the GOCART model and comparisons with satellite and sun photometer measurements, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 59 (February 1), 461-483, 2002.
- Chin, M., R.B. Rood, S.-J. Lin, J.-F. Muller, and A.M. Thompson, Atmospheric sulfur cycle simulated in the global model GOCART : Model description and global properties, *Journal of Geophysical Research*, 105, 24671-24687, 2000.
- Chu, D.A., Y.J. Kaufman, C. Ichoku, L.A. Remer, D. Tanré, and B.N. Holben, validation of MODIS aerosol optical depth retrieval over land, *Geophysical research letters*, 29 (12), 1617, doi:10.1029/2001GL013205, 2002.

- Claquin, T., Modélisation de la minéralogie et du forçage radiatif des poussières désertiques, PhD thesis, Université Paris VI, Paris, 1999.
- Clerbaux, C., J. Hadji-Lazaro, D. Hauglustaine, and G. Mégie, Assimilation of carbon monoxide measured from satellite in a three-dimensional chemistry-transport model, *Journal of Geophysical Research*, 106 (D14), 15385-15394, 2001.
- Coakley, J.A., R.L. Bernstein, and P.A. Durkee, Effect of ship-stack effluents on cloud reflectivity, *Science*, 237, 1020-1022, 1987.
- Collins, W.D., P.J. Rasch, B.E. Eaton, B.V. Khattatov, J.F. Lamarque, and C.S. Zender, Simulating aerosols using a chemical transport model with assimilation of satellite aerosol retrievals : Methodology for INDOEX, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 106 (D7), 7313-7336, 2001.
- Cooke, W.F., C. Liousse, H. Cachier, and J. Feichter, Construction of a $1^\circ \times 1^\circ$ degree fossil fuel emission data set for carbonaceous aerosol and implementation and radiative impact in the ECHAM4 model, *Journal of Geophysical Research*, 104, 22137-22162, 1999.
- Courtier, P., E. Andersson, W. Heckley, J. Pailleux, D. Vasiljevic, M. Hamrud, A. Hollingsworth, F. Rabier, and M. Fisher, The ECMWF implementation of three-dimensional variational assimilation (3D-Var). I: Formulation, *Quart. J. R. Meteorol. Soc.*, 124, 1783-1807, 1998.
- Courtier, P., and O. Talagrand, Variational assimilation of meteorological observations with the adjoint vorticity equation. II : Numerical results, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 113, 1329-1347, 1987.
- Courtier, P., J.N. Thepaut, and A. Hollingsworth, A strategy for operational implementation of 4D-Var , using an incremental approach, *Quart. J. R. Meteorol. Soc.*, 120, 1389-1408, 1994.

D

- D'Almeida, G.A., *Atmospheric aerosols : Global climatology and radiative characteristics*, Deepak Publishing, Hampton, VA, USA, 1991.
- Deschamps, P.-Y., F.-M. Bréon, M. Leroy, A. Podaire, A. Bricaud, J.-C. Buriez, and G. Sèze, The POLDER mission : instrument characteristics and scientific objectives, *IEEE Transactions on geoscience and remote sensing*, 32, 598-615, 1994.
- Deuzé, J.L., F.-M. Bréon, C. Devaux, P. Goloub, M. Herman, B. Lafrance, F. Maignan, A. Marchand, F. Nadal, G. Perry, and D. Tanré, Remote sensing of aerosols over land surfaces from POLDER-ADEOS-1 polarized measurements, *Journal of Geophysical Research*, 106, 4913-4926, 2001.
- Deuzé, J.L., P. Goloub, M. Herman, A. Marchand, G. Perry, S. Susanna, and D. Tanré, Estimate of the aerosol properties over the ocean with POLDER, *Journal of Geophysical Research*, 105, 15329-15346, 2000.
- Diner, D.J., J.C. Beckert, T.H. Reilly, C.J. Bruegge, J.E. Conel, R. Kahn, J.V. Martonchik, T.P. Ackerman, R. Davies, S.A.W. Gerstl, H.R. Gordon, J.-P. Muller, R. Myneni, R.J. Sellers, B. Pinty, and M.M. Verstraete, Multi-angle Imaging SpectroRadiometer (MISR) description and experiment overview, *IEEE Transactions on geoscience and remote sensing*, 36 (4), 1072-1087, 1998.
- Dubovik, O., B. Holben, T.F. Eck, A. Smirnov, Y.J. Kaufman, M.D. King, D. Tanré, and I. Slutsker, Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 59 (3), 590-608, 2002.

- Duce, R., *Distributions and fluxes of mineral aerosol. In Aerosol Forcing of Climate*, 43-72 pp., John Wiley, Chichester, UK, 1995.
- Duncan, B.N., V.M. Randall, A.C. Staudt, R. Yevich, and J.A. Logan, Interannual and seasonal variability of biomass burning emissions constrained by satellite observations, *Journal of Geophysical Research - Atmospheres*, 108 (D2), 4040, doi:10.129/2002JD002378, 2003.

E

- Erickson, D.J.I., and R.A. Duce, On the global flux of atmospheric sea salt, *Journal of Geophysical Research*, 93, 14079-14088, 1988.

F

- Feingold, G., W.R. Cotto, S.M. Kreidenweis, and J.T. Davis, The impact of giant cloud condensation nuclei on drizzle formation in stratocumulus : implications for cloud radiative properties, *Journal of the atmospheric sciences*, 56, 4100-4117, 1999.
- Fisher, M., and D.J. Lary, Lagrangian 4-dimensional variational data assimilation of chemical-species, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 121 (527A), 1681-1704, 1995.

G

- Gard, E.E., M.J. Kleeman, D.S. Gross, L.S. Hughes, J.O. Allen, B.D. Morrical, D.P. Fergenson, T. Dienes, M.E. Galli, R.J. Johnson, G.R. Cass, R. Glen, and K.A. Prather, Direct observation of heterogeneous chemistry in the atmosphere, *Science*, 279, 1184-1187, 1998.
- Generoso, S., F.-M. Bréon, Y. Balkanski, O. Boucher, and M. Schulz, Improving the seasonal cycle and interannual variations of biomass burning aerosol sources, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3, 1211-1222, 2003.
- Gerber, H., Supersaturation and droplet spectral evolution in fog, *Journal of the atmospheric sciences*, 48 (24), 2569-2588, 1991.
- Giglio, L., and J.D. Kendall, Commentary on "Improving the seasonal cycle and interannual variations of biomass burning aerosol sources" by Generoso et al, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4 (585-587), 2004.
- Giglio, L., J.D. Kendall, and R. Mack, A multi-year active fire data set for the tropics derived from the TRMM VIRS, *International Journal of Remote Sensing*, in press, 2003.
- Goloub, P., and O. Arino, Verification of the consistency of POLDER Aerosol Index over land with ATSR-2/ERS-2 fire product, *Geophysical research letters*, 27 (6), 899-902, 2000.
- Gong, S.L., L.A. Barrie, J.-P. Blanchet, and L. Spacek, *Modeling size-distributed sea salt aerosols in the atmosphere : An application using Canadian climate models*, Plenum Press, New York, 1998.
- Grégoire, J.-M., K. Tansey, and J.M.N. Silva, The GBA2000 initiative : Developing a global burned area database from SPOT-VEGETATION imagery, *International Journal of Remote Sensing*, 24 (6), 1369-1376, 2003.
- Griffin, R.J., D.R. Cocker, J.H. Seinfeld, and D. Dabdub, Estimate of global atmospheric organic aerosols from oxidation of biogenic hydrocarbons, *Geophysical research letters*, 26, 2721-2724, 1999.
- Guelle, W., M. Schulz, Y. Balkanski, and F. Dentener, Influence of the source formulation on modeling the atmospheric global distribution of sea salt aerosol, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 106 (D21), 27509-27524, 2001.

H

- Hauglustaine, D., F. Hourdin, L. Jourdain, M.-A. Filiberti, S. Walters, J.F. Lamarque, and E.A. Holland, Interactive chemistry in the Laboratoire de Météorologie Dynamique general circulation model : Description and background tropospheric chemistry evaluation, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 109 (D04314), doi:10.1029/2003JD003957, 2004.
- Haywood, J., and O. Boucher, Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: a review, *Reviews of Geophysics*, 38 (4), 513-543, 2000.
- Haywood, J.M., and K.P. Shine, The effect of anthropogenic sulphate and soot aerosol on the clear sky planetary radiation budget., *Geophysical research letters*, 22, 603-606, 1995.
- Heald, C.L., D.J. Jacob, P.I. Palmer, M.J. Evans, G.W. Sachse, H.B. Singh, and D.R. Blake, Biomass burning emission inventory with daily resolution: Application to aircraft observations of Asian outflow, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 108 (D21), 8811, doi:10.1029/2002JD003082, 2003.
- Herman, J.R., P.K. Bhartia, O. Torres, C. Hsu, C. Seftor, and E. Celarier, Global distribution of UV-absorbing aerosols from Nimbus 7/TOMS data, *Journal of Geophysical Research - Atmospheres*, 102 (D14), 16911-16922, 1997.
- Herman, M., J.L. Deuzé, A. Marchand, B. Roger, and P. Lallart, Aerosol remote sensing from POLDER/ADEOS over the ocean. Improved retrieval using non-spherical particle model, *Journal of Geophysical Research*, submitted, 2004.
- Hoelzemann, J.J., M.G. Schultz, G.P. Brasseur, C. Granier, and M. Simon, Global Wildland Fire Emission Model (GWEM) : Evaluating the use of global area burnt satellite data, *Journal of Geophysical Research*, 109 (D14S04), doi:10.1029/2003DJ003666, 2004.
- Holben, B.N., T.F. Eck, I. Slutsker, D. Tanré, J.P. Buis, A. Setzer, E. Vermote, J.A. Reagan, Y.J. Kaufman, T. Nakajima, F. Lavenue, I. Jankowiak, and A. Smirnov, AERONET - A federated instrument network and data archive for aerosol characterization, *Remote Sensing of Environment*, 66 (1), 1-16, 1998.
- Hourdin, F., P. Le Van, F. Forget, and O. Talagrand, Meteorological variability and the annual surface pressure cycle on Mars, *Journal of atmospheric science*, 50, 3625-3640, 1993.
- Husar, R.B., J.M. Prospero, and L.L. Stowe, Characterization of tropospheric aerosols over the oceans with the NOAA Advanced Very High Resolution Radiometer optical thickness operational product, *Journal of Geophysical Research*, 102, 16889-16909, 1997.

I

- IPCC, *Climate change 2001: The scientific basis, contribution of working group I to the third assessment. Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, 881 pp., Cambridge university press, New York, USA, 2001.

J

- Ji, Y., and E. Stocker, An overview of the TRMM/TSDIS fire algorithm and product, *Int. J. Remote Sensing*, 23, 3285-3303, 2002.
- Jones, A., D.L. Roberts, and A. Slingo, A climate model study of indirect radiative forcing by anthropogenic aerosols, *Nature*, 370, 450-453, 1994.

K

- Kaufman, Y.J., D. Tanré, D.A. Remer, E. Vermote, A. Chu, and B.N. Holben, Operational remote sensing of tropospheric aerosol over the land from EOS-MODIS, *Journal of Geophysical Research*, 102, 17051-17061, 1997.
- Kettle, A.J., and M.O. Andreae, Flux of dimethylsulfide from the oceans : A comparison of updated data sets and flux models., *Journal of Geophysical Research*, 105, 26793-26808, 2000.
- Khattatov, B.V., J.C. Gille, L.V. Lyjak, G.P. Brasseur, V.L. Dvorstov, A.E. Roche, and J.W. Waters, Assimilation of photochemically active species and a case analysis of UARS data, *Journal of Geophysical Research*, 104 (D15), 18715-18737, 1999.
- King, M.D., Y.J. Kaufman, D. Tanré, and T. Nakajima, Remote sensing of tropospheric aerosols from space : Past, present and future., *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 2222-2259, 1999.
- Kinne, S., U. Lohmann, J. Feichter, M. Schulz, C. Timmreck, S. Ghan, R. Easter, M. Chin, P. Ginoux, T. Takemura, I. Tegen, D. Koch, M. Herzog, J.E. Penner, G. Pitari, B. Holben, T. Eck, A. Smirnov, O. Dubovik, I. Slutsker, D. Tanré, O. Torres, M. Mischenko, I. Geogdzhayev, D.A. Chu, and Y.J. Kaufman, Monthly averages of aerosol properties : A global comparison among models, satellite data, and AERONET ground data, *Journal of Geophysical Research*, 108 (D20), 4364, doi:10.129/2001JD001253, 2003.
- Krekov, G.M., *Models of atmospheric aerosols. In Aerosol effects on climate.*, U. of Arizona Press, Tucson, Arizona, 1993.
- Kummerow, C., W. Barnes, T. Kozu, J. Shiue, and J. Simpson, The tropical rainfall measuring mission (TRMM) sensor package, *Journal of atmospheric and oceanic technology*, 15, 808-816, 1998.

L

- Lacis, A.A., and M.I. Mishchenko, Climate forcing, climate sensitivity, and climate response: A radiative modeling perspective on atmospheric aerosols, in *Aerosol forcing of climate*, edited by R.J. Charlson, and J. Heintzenberg, pp. 416 pp, John Wiley and sons, 1994.
- Lamarque, J.F., B.V. Khattatov, J.C. Gille, and G.P. Brasseur, Assimilation of Measurement of Air Pollution from Space (MAPS) CO in a global three-dimensional model, *Journal of Geophysical Research*, 104 (D21), 26209-26218, 1999.
- Lavoué, D., Transport vers la région Arctique de l'aérosol carboné émis par les feux de biomasse des régions boréales et tempérées, PhD thesis, Université Paris VII, Paris, 2000.
- Lavoué, D., C. Lioussé, H. Cachier, B.J. Stocks, and J.G. Goldammer, Modeling of carbonaceous particles emitted by boreal and temperate wildfires at northern latitudes, *Journal of Geophysical Research - Atmospheres*, 105 (D22), 26871-26890, 2000.
- Le Dimet, F.-X., and O. Talagrand, Variational algorithms for analysis and assimilation of meteorological observations : Theoretical Aspects., *Tellus*, 38A, 97-110, 1986.
- Le Treut, H., M. Forichon, O. Boucher, and Z.-X. Li, Sulfate aerosol, indirect effect and CO₂ greenhouse forcing : Equilibrium response of the LMD GCM and associated feedbacks., *Journal of climate*, 11, 1673-1684, 1998.

- Lioussé, C., C. Devaux, F. Dulac, and H. Cachier, Aging of savanna biomass burning aerosols : consequences on their optical properties, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 22, 1-17, 1995.
- Lioussé, C., J.E. Penner, C. Chuang, J.J. Walton, H. Eddleman, and H. Cachier, A global three-dimensional model study of carbonaceous aerosols, *Journal of Geophysical Research - Atmospheres*, 101 (D14), 19411-19432, 1996.
- Lorenc, A.C., R.S. Bell, and B. Macpherson, The Meteorological Office Analysis Correction Data Assimilation scheme, *Quart. J. R. Meteorol. Soc.*, 117, 59-89, 1991.

M

- Marticorena, B., G. Bergametti, B. Aumont, Y. Callot, C. Ndoume, and M. Legrand, Modeling the atmospheric dust cycle. 2. Simulation of Saharan dust sources, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 102, 4387-4404, 1997.
- Menon, S., A.D. Del Genio, D. Koch, and G. Tselioudis, GCM simulations of the aerosol indirect effect : Sensitivity to cloud parametrization and aerosol burden, *Journal of the atmospheric sciences*, 59 (3), 692-713, 2002.
- Monahan, E.C., D.E. Spiel, and K.L. Davidson, A model of marine aerosol generation via whitecaps and wave disruption in oceanic whitecaps., in *Oceanic whitecaps and their role in air-sea exchange processes*, edited by E.C. Monahan, and G.M. Niocaill, pp. 167-174, Reidel D. Publishing, Dordrecht, Holland, 1986.
- Moulin, C., F. Guillard, F. Dulac, and C.E. Lambert, Long-term daily monitoring of Saharan dust load over marine areas using Meteosat ISCCP-B2 data, 1. Methodology and preliminary results for 1983-1994 in the Western Mediterranean, *Journal of Geophysical Research*, 102, 16947-16958, 1997.
- Murphy, D.M., and D.S. Thomson, Chemical composition of single aerosol particles at Idaho Hill : Negative ion measurements., *Journal of Geophysical Research*, 102, 6353-6368, 1997.
- Myhre, G., F. Stordal, M. Johnsrud, A. Ignatov, M.I. Mischenko, I.V. Geogdzhayev, D. Tanré, J.L. Deuzé, P. Goloub, T. Nakajima, A. Higurashi, O. Torres, and B. Holben, Intercomparison of Satellite Retrieved Aerosol Optical Depth over the Ocean, *American Meteorological Society*, 61, 499-513, 2004.

N

- Nakajima, T., A. Higurashi, N. Takeuchi, and J.R. Herman, Satellite and ground-based study of optical properties of 1997 Indonesian forest fire aerosols, *Geophysical research letters*, 26 (16), 2421-2424, 1999.
- New, M., M. Hulme, and P. Jones, Representing twentieth-century space-time climate variability. Part I: Development of a 1961-90 mean monthly terrestrial climatology, *Journal of Climate*, 12 (3), 829-856, 1999.
- Nightingale, P.D., P.S. Liss, and P. Schlosser, Measurements of air-sea gas transfer during an open ocean algal bloom, *Geophysical research letters*, 27 (14), 2117-2120, 2000.

P

- Parrish, D.F., and J.C. Derber, The National Meteorological Center's spectral statistical interpolation analysis scheme, *Mon. Weather Rev.*, 120, 1747-1763, 1992.

Q

Quaas, J., O. Boucher, and F.-M. Bréon, Aerosol indirect effects in POLDER satellite data and the Laboratoire de Meteorologie Dynamique-Zoom (LMDZ) general circulation model, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 109 (D8), D08205, 2004.

R

Rasch, P.J., W.D. Collins, and B.E. Eaton, Understanding the Indian Ocean experiment (INDOEX) aerosol distributions with an aerosol assimilation, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 106 (D7), 7337-7355, 2001.

Reddy, S., and O. Boucher, A study of the global cycle of carbonaceous aerosols in the LMDZT general circulation model, *Journal of Geophysical Research*, 109 (D14202), doi:10.1029/2003JD004048, 2004.

Remer, L.A., D. Tanré, Y.J. Kaufman, C. Ichoku, S. Mattoo, R. Levy, D.A. Chu, B. Holben, O. Dubovik, A. Smirnov, J.V. Martins, R.-R. Li, and Z. Ahmad, Validation of MODIS aerosol retrieval over ocean, *Geophysical research letters*, 29 (12), 1618, doi:10.1029/2001GL013204, 2002.

Rosenfeld, D., TRMM observed first direct evidence of smoke from forest fires inhibiting rainfall, *Geophysical research letters*, 26, 3105-3108, 1999.

Rosenfeld, D., Suppression of rain and snow by urban and industrial air pollution, *Science*, 287, 1793-1796, 2000.

S

Sadourny, R., and K. Laval, *January and July performance of the LMD general circulation model. in New Perspectives in Climate Modelling*, 173-198 pp., Elsevier Sci., New York, 1984.

Schultz, M.G., On the use of ATSR fire count data to estimate the seasonal and interannual variability of vegetation fire emissions, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2, 387-395, 2002.

Schulz, M., Y.J. Balkanski, W. Guelle, and F. Dulac, Role of aerosol size distribution and source location in a three-dimensional simulation of a Saharan dust episode tested against satellite-derived optical thickness, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 103, 10579-10592, 1998.

Seinfeld, J.H., and S.N. Pandis, *Atmospheric chemistry and physics. From air pollution to climate change*, 1326 pp., Wiley-Interscience, 1997.

Shettle, E.P., and R. Fenn, Models of the atmospheric aerosols and their optical properties, in *AGARD Conference Proceedings*, 1976.

Simon, M., S. Plummer, F. Fierens, J.J. Hoelzemann, and O. Arino, Burnt area detection at global scale using ATSR-2 : the GLOBSCAR products and their qualification, *Journal of Geophysical Research*, 109 (D14S02), doi:10.1029/2003JD003622, 2004.

Smith, M.H., and N.M. Harrison, The sea spray generation function, *J. Aerosol Sci.*, 29 (Suppl. 1), S189-S190, 1998.

Stowe, L.L., R.M. Carey, and P.P. Pellegrino, Monitoring the Mt Pinatubo aerosol layer with NOAA/11 AVHRR data, *Geophysical research letters*, 19, 159-162, 1992.

T

Talagrand, O., Assimilation of observations, an introduction, *J. Met. Soc. Japan, Special issue 75 (1B)*, 191-209, 1997.

- Talagrand, O., A posteriori validation of assimilation algorithms, in *Data assimilation for the Earth system*, edited by R. Swinbank, V. Shutyaev, and W.A. Lahoz, pp. 85-95, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, The Netherlands, 2002.
- Tanré, D., F.-M. Bréon, J.L. Deuzé, M. Herman, P. Goloub, F. Nadal, and A. Marchand, Global observation of anthropogenic aerosols from satellite, *Geophysical Research Letters*, 28 (24), 4555-4558, 2001.
- Tanré, D., J.F. Geleyn, and J. Slingo, *First results of the introduction of an advanced aerosol-radiation interaction in the ECMWF low resolution global model*. In *Aerosols and their climate effects*, 133-177 pp., Deepak Publishing, 1984.
- Tanré, D., Y.J. Kaufman, M. Herman, and S. Mattoo, Remote sensing of aerosol properties over oceans using MODIS/EOS spectral radiances, *Journal of Geophysical Research*, 102, 16971-16988, 1997.
- Tegen, I., and I. Fung, Contribution to the atmospheric mineral aerosol load from land surface modification, *Journal of Geophysical Research*, 100, 18707-18726, 1995.
- Tegen, I., P. Hollrig, M. Chin, I. Fung, D. Jacob, and J.E. Penner, Contribution of different aerosol species to the global aerosol extinction optical thickness : Estimates from model results., *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 102, 23895-23915, 1997.
- Tegen, I., and A. Lacis, Modelling of particle size distribution and its influence on the radiative properties of mineral dust aerosol., *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 101, 19237-19244, 1996.
- Tegen, I., A.A. Lacis, and I. Fung, The influence on climate forcing of mineral aerosols from disturbed soils, *Nature*, 380, 419-422, 1996.
- Tiedtke, M., A comprehensive mass flux scheme for cumulus parametrization in large-scale models, *Mon. Weather Rev.*, 117, 1779-1800, 1989.
- Twomey, S., The influence of pollution on the shortwave albedo of clouds, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 34, 1149, 1977.

V

- Van der Werf, G., J.T. Randerson, G.J. Collatz, and L. Giglio, Carbon emissions from fires in tropical and subtropical ecosystems, *Global Change Biology*, 9, 547-562, 2003.
- Van Leer, B., Towards the ultimate conservative difference scheme. Part IV : A new approach to numerical convection, *J. Comput. Phys.*, 23, 276-299, 1977.

W

- Whitby, K.T., and B. Cantrell, Fine particles, in *International conference on environmental sensing and assessment*, Las Vegas, N.V., institute of electrical and electronic engineers, 1976

Annexe A

may also play an important role in the stabilization of monomers containing $[(P_5)_2M]^+$ units. On this basis, it seems possible that a wide variety of other charged decaphosphametalloenes and related carbon-free sandwich complexes (45) may be accessible species.

References and Notes

1. T. J. Kealy, P. L. Pauson, *Nature* **168**, 1039 (1951).
2. S. A. Miller, J. A. Tebbott, J. F. Tremaine, *J. Chem. Soc.*, 632 (1952).
3. R. B. Woodward, M. Rosenblum, M. C. Whiting, *J. Am. Chem. Soc.* **74**, 3458 (1952).
4. A. Togni, R. L. Halterman, Eds., *Metalloenes: Synthesis, Reactivity, Applications* (Wiley-VCH, Weinheim, Germany, 1998).
5. N. J. Long, *Metalloenes* (Blackwell Science, Oxford, UK, 1998).
6. A. D. Garnovskii, A. P. Sadimenko, M. I. Sadimenko, D. A. Gamovskii, *Coord. Chem. Rev.* **173**, 31 (1998).
7. K. B. Dillon, F. Mathey, J. F. Nixon, *Phosphorus: The Carbon Copy* (Wiley, Chichester, UK, 1998).
8. R. Bartsch, P. B. Hitchcock, J. F. Nixon, *J. Chem. Soc. Chem. Commun.* **1987**, 1146 (1987).
9. ———, *J. Organomet. Chem.* **356**, C1 (1988).
10. P. B. Hitchcock, J. F. Nixon, R. M. Matos, *J. Organomet. Chem.* **490**, 155 (1995).
11. T. Clark et al., *Angew. Chem. Int. Ed.* **39**, 2087 (2000).
12. R. Bartsch et al., *J. Organomet. Chem.* **529**, 375 (1997).
13. F. G. N. Cloke, J. R. Hanks, P. B. Hitchcock, J. F. Nixon, *Chem. Commun.* **1999**, 1731 (1999).
14. F. G. N. Cloke, J. C. Green, J. R. Hanks, J. F. Nixon, J. L. Suter, *J. Chem. Soc. Dalton Trans.* **2000**, 3534 (2000).
15. R. Bartsch et al., *J. Chem. Soc. Dalton Trans.* **2001**, 1013 (2001).
16. M. Al-Ktaifi, J. C. Green, P. B. Hitchcock, J. F. Nixon, *J. Chem. Soc. Dalton Trans.* **2001**, 1726 (2001).
17. M. Baudler et al., *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **27**, 280 (1988).
18. O. J. Scherer, *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **29**, 1104 (1990).
19. E. J. P. Malar, *J. Org. Chem.* **57**, 3694 (1992).
20. A. Dransfeld, L. Nyulaszi, P. v. R. Schleyer, *Inorg. Chem.* **37**, 4413 (1998).
21. M. Baudler, T. Etzbach, *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **30**, 580 (1991).
22. O. J. Scherer, *Acc. Chem. Res.* **32**, 751 (1999).
23. ———, H. Swarowsky, G. Wolmershäuser, W. Kaim, S. Kohlmann, *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **26**, 1153 (1987).
24. J. E. Ellis, D. W. Blackburn, P. Yuen, M. Jang, *J. Am. Chem. Soc.* **115**, 11616 (1993).
25. Details of the syntheses, isolation, and characterization of the $[K(18-Crown-6)]^+$, $(Ph_3P)_2N^+$, and Ph_4P^+ salts of **1** are available on Science Online (46).
26. Electrochemical characterization of $[Cp^*FeP_5]^-$ has been reported by R. F. Winter and W. E. Geiger [*Organometallics* **18**, 1827 (1999)].
27. D. F. Evans, *J. Chem. Soc.*, 2003 (1959).
28. Crystallographic details are available on Science Online (46).
29. L. Weber, *Chem. Rev.* **92**, 1839 (1992).
30. O. J. Scherer, T. Hilt, G. Wolmershäuser, *Organometallics* **17**, 4110 (1998).
31. T. P. Hamilton, Henry F. Schaefer III, *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **28**, 485 (1989).
32. M. D. Fryzuk, T. S. Haddad, D. J. Berg, *Coord. Chem. Rev.* **99**, 137 (1990).
33. J. Perdew, Y. Wang, *Phys. Rev. B* **45**, 13244 (1992).
34. K. Burke, J. P. Perdew, Y. Wang, *Electronic Density Functional Theory. Recent Progress and New Directions*, J. F. Dobson, G. Vignale, M. P. Das, Eds. (Plenum, New York, 1998).
35. C. Adamo, V. Barone, *J. Chem. Phys.* **108**, 664 (1998).
36. W. J. Hehre, L. Radom, P. v. R. Schleyer, J. A. Pople, *Ab Initio Molecular Orbital Theory* (Wiley, New York, 1986).
37. R. Stowasser, R. Hoffmann, *J. Am. Chem. Soc.* **121**, 3414 (1999).
38. C. Elschenbroich, A. Salzer, *Organometallics* (Wiley-VCH, Weinheim, Germany, ed. 1, 1989).
39. A. Haaland, *Acc. Chem. Res.* **12**, 415 (1979).
40. M. Bochmann, *Organometallics* (Oxford Chemistry Primers, Oxford Univ. Press, Oxford, New York, 1994), vol. 2.
41. K. L. T. Wong, H. H. Brintzinger, *J. Am. Chem. Soc.* **97**, 5143 (1975).
42. F. W. S. Benfield, M. L. H. Green, J. S. Ogden, D. Young, *J. Chem. Soc. Chem. Commun.* **1973**, 866 (1973).
43. D. W. Blackburn, D. Britton, J. E. Ellis, *Angew. Chem. Int. Ed.* **31**, 1495 (1992).
44. M. Baudler, D. Düster, D. Ouzounis, *Z. Anorg. Allg. Chem.* **544**, 87 (1987).
45. M. Lein, J. Frunzke, A. Timoshkin, G. Frenking, *Chem. Eur. J.* **7**, 4155 (2001).
46. Supplementary data are available on Science Online at www.sciencemag.org/cgi/content/full/295/5556/832/DC1.
47. Dedicated to Professor Marianne Baudler on the occasion of her 80th birthday. We are grateful to the National Science Foundation (J.E.E.) and the donors of the Petroleum Research Fund administered by the American Chemical Society (J.E.E.) for financial support of this work. We acknowledge B. Chen for the solid-state ^{31}P -NMR spectral measurements.

22 October 2001; accepted 27 December 2001

Aerosol Effect on Cloud Droplet Size Monitored from Satellite

Francois-Marie Bréon,^{1*} Didier Tanré,² Sylvia Generoso¹

Aerosol concentration and cloud droplet radii derived from space-borne measurements are used to explore the effect of aerosols on cloud microphysics. Cloud droplet size is found to be largest (14 micrometers) over remote tropical oceans and smallest (6 micrometers) over highly polluted continental areas. Small droplets are also present in clouds downwind of continents. By using estimates of droplet radii coupled with aerosol load, a statistical mean relationship is derived. The cloud droplet size appears to be better correlated with an aerosol index that is representative of the aerosol column number under some assumptions than with the aerosol optical thickness. This study reveals that the effect of aerosols on cloud microphysics is significant and occurs on a global scale.

Aerosols may reduce the degree of Earth global warming resulting from the increase of greenhouse gases in the atmosphere (1, 2). They directly impact the radiative balance of Earth through a net increase of its albedo, particularly over the oceans (3, 4). Aerosols can also act as cloud condensation nuclei (CCN), increasing the number of droplets in clouds, which tends to decrease the mean droplet size and may increase the cloud albedo (5), depending on the aerosol absorption and cloud optical thickness (6). This process, referred to as the "Twomey effect" or the "first indirect" aerosol radiative forcing, has a net cooling effect on climate. A direct demonstration of the aerosol effect on cloud albedo was provided by the observation of lines of larger reflectance in cloud fields identified as tracks of ship exhaust (7). Indirect observations of this effect can also be made by comparing cloud droplet size and aerosol concentration. Cloud droplet effective radii were derived by using global scale AVHRR (advanced very high resolution radiometer) measurements (8). The results of a global

application (9) indicate a contrast in cloud droplet size of about 2 μm over land and ocean surfaces, as well as a hemispheric contrast of 1 μm , both of which support the Twomey hypothesis. Similar patterns of the aerosol optical thickness and the cloud droplet effective radius, derived from AVHRR measurements, have been observed over the oceans (10). Cases of reduced droplet radii and suppression of rain—the second indirect aerosol effect—in areas of high aerosol load were identified on satellite imagery (11, 12). Furthermore, several in situ measurements have shown a relationship between the aerosol concentration and the cloud droplet size distribution (13–15).

The polarization and directionality of the earth reflectances (POLDER) instrument (16) is well suited for assessing the Twomey hypothesis globally, because its measurements provide a unique opportunity to measure cloud droplet effective radius (hereafter referred to as CDR) (17), as well as aerosol loading (18), over both land and ocean surfaces. The POLDER radiometer was launched aboard the Advanced Earth-Observing Satellite (ADEOS) in August 1996. Continuous monitoring of the solar radiation reflected by the earth, including its polarization and directional signatures, started on 30 October 1996, and ended on 30 June 1997, with the unexpected failure of the satellite solar panel. Monthly maps were generated of an

¹Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, Commissariat à l'Energie Atomique, Gif sur Yvette, France. ²Laboratoire d'Optique Atmosphérique, CNRS, Université des Sciences et Technologies de Lille, Villeneuve d'Ascq, France.

*To whom correspondence should be addressed. E-mail: fmbreon@cea.fr

REPORTS

"aerosol index" that quantifies the atmospheric load by small particles (19). Under some assumptions, the aerosol index is expected to be proportional to the aerosol column number when the widely used optical thickness is proportionally more sensitive to the large particle fraction (20). Spatial and temporal distribution of the index indicate that it is mostly sensitive to aerosols generated by biomass burning and human-generated pollution (21). Similarly, the polarization signature of liquid water clouds was used to derive monthly mean estimates of CDR (22).

A seasonal (March-May) average of these two parameters, aerosol index and CDR, is illustrated in Figs. 1 and 2. The highest values of the aerosol index (Fig. 1) are observed over southeast Asia and India, as well as Central Africa. These presumably reflect the presence of anthropogenic aerosols from industrial activity and biomass burning. Relatively large values are also observed over the sub-Saharan region, Central America, and Eastern Europe. Very low values are apparent over the open oceans. There is a significant land-ocean contrast. The influence of conti-

nental aerosols over the ocean is notable, particularly downwind of regions with high aerosol loading (winds are mostly westward in the tropics, and eastward in mid-latitude regions). Over the oceans, the highest values are observed east of China, over the northern part of the Indian Ocean, downwind of the Sahel, and surrounding Central America. Note also that the atmosphere over southern oceans appears cleaner than over the basins of the Northern Hemisphere.

Cloud droplet radius estimates (Fig. 2) are based on the angular signature of the polar-

Fig. 1. Aerosol index derived from POLDER measurements during the spring of 1997. The aerosol index quantifies the atmospheric loading by small particles.

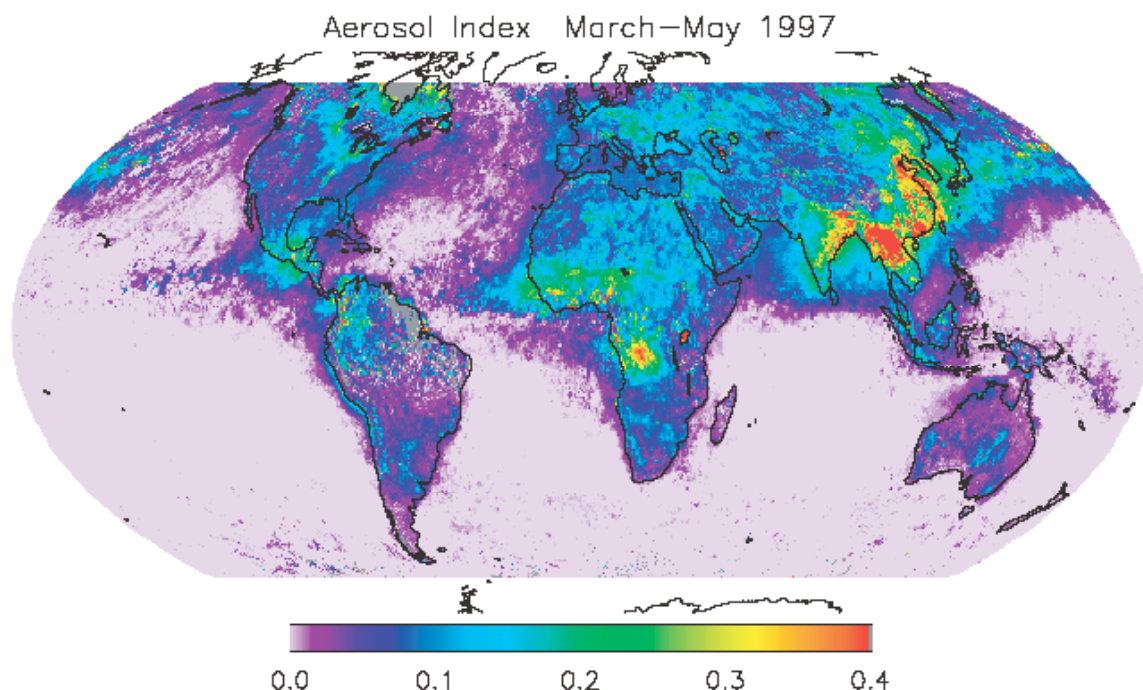
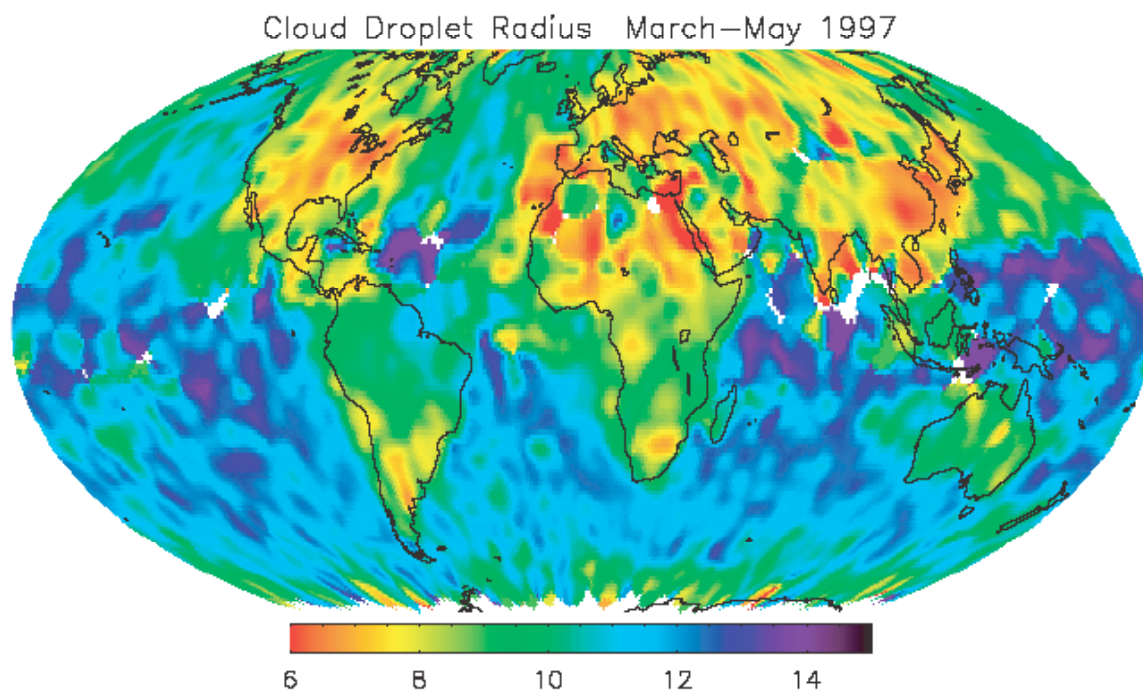


Fig. 2. Cloud droplet radius derived from POLDER measurements during the spring of 1997. The units are microns. White areas correspond to regions where no successful estimate was possible. This image is based upon a compilation of 19,500 estimates.



REPORTS

ized radiance reflected by a cloud field (17). This estimate requires a specific viewing geometry and is only possible when the cloud field is relatively uniform over an area of approximately $150 \times 150 \text{ km}^2$ and when the cloud droplet size distribution is narrow. When these conditions are met, the retrieval is highly reliable with no identified cause for bias (23). The seasonal composite of CDR for the spring of 1997 is shown in Fig. 2. Despite the natural variability, coherent patterns are clearly depicted. Many spatial features are similar to those found in the aerosol index; namely, the smallest CDR values are found over regions of high aerosol index, and the largest values are over the open oceans where the atmosphere is very clean: CDR is between 6 and $10 \mu\text{m}$ over land surfaces, values over the oceans vary between 12 and $14 \mu\text{m}$ in remote areas down to the same low values of $6 \mu\text{m}$ in regions with the highest aerosol index. CDR over areas downwind of land surfaces is clearly affected by continental influences.

A latitudinal gradient is apparent in the southern ocean with smaller droplets occurring toward the pole. This result agrees with previous *in situ* measurements that showed CDR much smaller in polar stratocumulus clouds than in mid-latitude clouds (24). This effect, however, cannot be presently attributed to the presence of aerosols, because this area is known to be very clean, as confirmed by the low aerosol index values. The gradient is apparent during other months, in particular during the December-to-February period when the solar elevation allows observations in the southernmost latitudes (22). The corresponding latitudinal gradient is not apparent in the Northern Hemisphere, presumably because the aerosol impact is then dominant.

The similarities between the spatial distributions of aerosol index and CDR suggest that a more quantitative analysis can be performed. The two estimates are not fully coincident, because the presence of clouds makes the quantitative monitoring of aerosol impossible with a passive technique. Thus, the individual measurements that are used to derive the two seasonal fields may correspond to different meteorological situations. A quantitative analysis requires the use of individual estimates rather than temporal means. In this study, for each individual estimate of CDR, a back-trajectory was computed up to a location where an aerosol index value was available. This procedure yields sets (CDR, aerosol load) that are based on individual and quasi coincident observations. The back-trajectory makes use of the six hourly wind fields from the European Center for Medium-Range Weather Forecast (ECMWF) at 850 hPa, and was limited in time (24 hours) and space (1000 km). Here, we assume that the aerosol estimate remains valid over this time span. Note that more than half of

the sets were obtained from measurements closer than 100 km in space. The study area was restricted to 60°N to 45°S to limit the impact of the latitudinal gradient observed in the Southern Hemisphere that clearly results from a different cloud process than the one analyzed here. Because most significant sources of aerosols are within these boundaries as confirmed by previous studies (25), this region is well suited to explorations of the effect of aerosols on cloud microphysics.

As a result of this procedure a total of 44,066 valid (CDR, aerosol index) sets were available for further analysis, of which 28,686 aerosol estimates were derived from oceanic measurements, and 15,380 from land observations. Recall that the respective algorithms make use of different techniques, and that the results derived over the ocean are more accurate than the ones obtained over land.

The mean and standard deviation of CDRs were computed for sets with a given aerosol index (bins of 0.025; 0.0125 for the first two bins) and while distinguishing between aerosol estimates derived over land and over the ocean (Fig. 3). The curves confirm the relationship apparent on the seasonal maps. On average, CDR is smaller when the aerosol load is larger. Because there is a clear physical process that predicts such a decrease, this observed correlation can be interpreted as a causal connection. The aerosols clearly impact the cloud microphysics, not only for specific cases, as *in situ* and airborne measurements have already shown, but also on a global scale. The aerosol effect on cloud microphysics appears nonlinear: the change in CDR with aerosol index (the derivative) is larger for clean atmospheres than for those with a significant load as already noted in specific cases (11).

The statistical significance of the CDR mean is illustrated by the error bars on the y axis. They represent the confidence level of the mean value, i.e., $\sigma/\sqrt{n-2}$, where n and σ are the number of CDR measurements

within the bin and their standard deviation, if one assumes independent data. Although the observations show a wide range of CDR, the large number of measurements for relatively clean atmospheric areas make the corresponding mean values highly significant.

In the interpretation of the results, one must emphasize that the uncertainty on individual measurements of aerosol index is significant in regard to the x-axis scale in Fig. 3. This uncertainty is larger over land than over the oceans because of the large and variable land surface contribution to the measured radiance. The noise in the aerosol load estimates tends to smooth the curves in Fig. 3 and thus to decrease the apparent impact of the aerosol to the cloud microphysics (26). This may explain the apparent lower impact than over oceanic surfaces. It may also explain the divergence in CDR between ocean and land curves for the smallest values of aerosol index. On the other hand, it is possible that land surfaces naturally generate a low level of aerosol that is not within the capabilities of space-borne passive remote sensing. Thus a "clean" continental atmosphere would not be as pristine as an oceanic one, resulting in a smaller CDR.

The mean slope of the aerosol index-CDR relationship is highly significant for the clean cases, up to an aerosol index of 0.15 to 0.20, as shown by the small error bars. The constant mean CDR observed for aerosol indices greater than 0.15 indicates a saturation effect, although an extension of Twomey's hypothesis as suggested by (27) cannot be rejected. Fluctuations observed above the threshold of 0.15 are not statistically significant because of a limited number of samples.

Because the optical thickness is widely used to characterize the particle concentration, we show the result of a similar processing when the optical thickness rather than the aerosol index is used (Fig. 3). This is limited to ocean observations, because an accurate estimate from POLDER measurements is not possible over land (19). Recall that the aero-

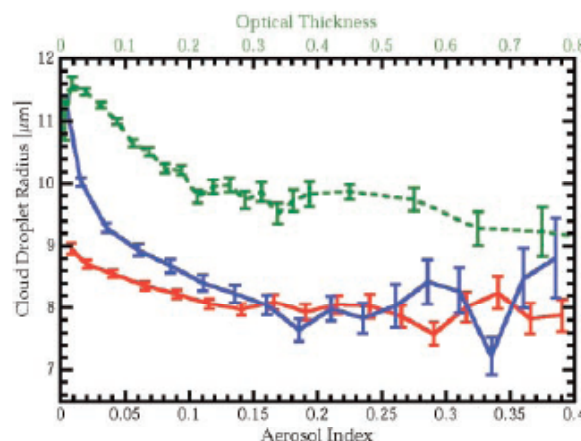


Fig. 3. Mean CDR as a function of aerosol load. The two lower curves show the mean CDR as a function of the aerosol index (lower scale) for land (red) and ocean (blue) retrievals. The upper curve is the same as the latter but as a function of optical thickness (upper scale). The error bars represent the confidence level of the mean value, i.e., $\sigma/\sqrt{n-2}$, where n and σ are the number of CDR measurements within the bin and their standard deviation.

REPORTS

sol index is roughly proportional to the aerosol column number when the optical thickness is affected by the presence of large particles even in limited number, which puts a large weight to the large particle fraction. As shown by the comparison of the blue and green curves (28) in Fig. 3, CDR is more sensitive to the aerosol index than to the optical thickness, which is to be expected, because the aerosol index is a function of the CCN concentration. Aerosol characteristics other than typical size (for instance, their hygroscopicity) may affect the statistical results of Fig. 3.

We now compare the observed statistical relationship to the simple theory originally proposed by Twomey. The number of aerosol particles that may act as CCN, N_a , and the number of cloud droplets, N_d , are approximately related through (29):

$$N_d \approx (N_a)^\alpha \quad (1)$$

Cloud process models and measurements indicate that α is on the order of 0.7. If one assumes a constant liquid water content, these numbers are related to the cloud droplet effective radius through (5, 6, 27):

$$\begin{aligned} \partial \log(r) &= \frac{\partial \log(N_d)}{3} \\ &= \frac{\alpha}{3} \partial \log(N_a) = \frac{\alpha}{3} \partial \log(AI) \end{aligned} \quad (2)$$

Thus, a slope of ≈ 0.23 is expected between the mean radius and the aerosol index on a log-log scale. Figure 4 shows the corresponding plot. Our analysis can be seen as supporting Twomey's hypothesis: There is a linear relationship (in log scale) between a change in aerosol concentration and a change in cloud droplet radius. On the other hand, the value of the slope is much smaller than the 0.23 expected: 0.085 over the oceans and 0.04 over land. The value found here for the oceanic cases is very similar to the one that can be derived from AVHRR data (20) and in the range of recent modeling results (27).

The results of this study clearly demon-

strate a significant impact of aerosols on cloud microphysics at the global scale; however, several limitations discussed below prevent a definite quantitative interpretation of their indirect radiative forcing.

1) The constraints on the CDR retrieval, in particular the spatial homogeneity and the narrow size-distribution criteria, may select particular cloud types (stratiform rather than convective) and/or a specific time in the cloud life cycle. Therefore, the relationship may not be valid for all cloud types and may be biased toward sensitive or insensitive clouds.

2) The parameter of importance for the Twomey effect is the concentration of CCN in the atmospheric layer where cloud droplets are formed. The POLDER retrievals measure an aerosol load index integrated over the vertical, not the CCN concentration. This is a source of uncertainty in the aerosol index-CDR relationship, although it is reasonable to assume that the CCN concentration and the aerosol index are well correlated, because the latter is proportional to the column aerosol number.

The observed relationship of Figs. 3 and 4 is clearly not a spurious result of the inversion algorithms. Although over land surfaces both the aerosol and cloud inversions make use of the polarized radiance measurements, the former is based on the magnitude of the radiance; the latter uses its directional signature. We cannot identify any mechanism in the satellite estimates that would generate a misleading relationship between CDR and the aerosol index. Moreover, the aerosol inversion technique over the oceans is based on the radiance measurement, with limited contribution from polarization.

Because of the various limitations of the remote sensing techniques and the inherent statistical aspect of our results, it is not possible to reliably quantify the aerosol first indirect radiative effect on climate. Nevertheless, the present results provide evidence of a strong effect of aerosols on cloud microphysics at the global scale and

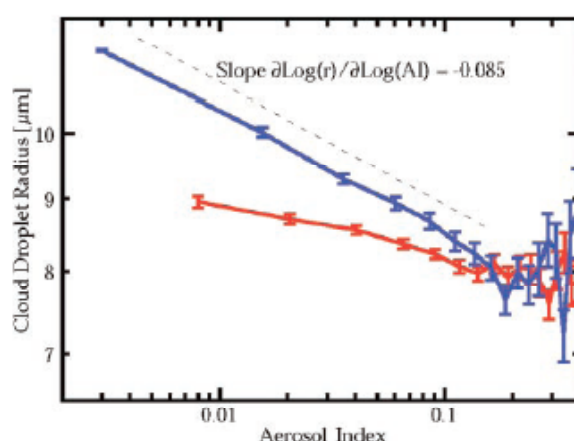
allow the quantification of the effect's magnitude over land and ocean. The observed mean relationship can be used to validate the aerosol-cloud physical mechanisms implemented in models.

Whether the observed impact on cloud microphysics is of anthropogenic origin is a question of importance. The satellite measurement cannot unambiguously distinguish natural and human-generated aerosols. However, the analysis of the spatial and temporal patterns in the aerosol index monthly maps strongly suggests that the bulk of the aerosol load originates from slash-and-burn agriculture practices and from highly polluted areas (25). A large fraction of the observed aerosol effect on clouds is probably an anthropogenic impact.

References and Notes

1. J. E. Penner et al., *Bull. Am. Meteorol. Soc.* **75**, 375 (1994).
2. R. J. Charlson et al., *Science* **255**, 423 (1992).
3. J. Haywood, V. Ramaswamy, B. Soden, *Science* **283**, 1299 (1999).
4. O. Boucher, D. Tanré, *Geophys. Res. Lett.* **27**, 1103 (2000).
5. S. Twomey, *J. Atmos. Sci.* **34**, 1149 (1977).
6. Y. J. Kaufman, R. S. Fraser, *Science* **277**, 1636 (1997).
7. J. A. Coakley, R. L. Bernstein, P. A. Durkee, *Science* **237**, 1020 (1987).
8. T. Nakajima, M. D. King, *J. Atmos. Sci.* **47**, 1878 (1990).
9. Q. Han, W. B. Rossow, A. A. Lacis, *J. Clim.* **7**, 465 (1994).
10. M. A. Wetzel, L. L. Stowe, *J. Geophys. Res.* **104**, 31287 (1999).
11. D. Rosenfeld, *Science* **287**, 1793 (2000).
12. ———, *Geophys. Res. Lett.* **26**, 3105 (1999).
13. R. J. Vong, D. S. Covert, *J. Atmos. Sci.* **55**, 2180 (1998).
14. G. M. Frick, W. A. Hoppel, *Bull. Am. Meteorol. Soc.* **74**, 2195 (1993).
15. J. R. Snider, J.-L. Brenguier, *Tellus* **52**, 828 (2000).
16. P.-Y. Deschamps et al., *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.* **32**, 598 (1994).
17. F.-M. Bréon, Ph. Goloub, *Geophys. Res. Lett.* **25**, 1879 (1998).
18. M. Herman et al., *J. Geophys. Res.* **102**, 17039 (1997).
19. Over land surfaces, the aerosol index is inferred from the polarized radiance that is not fully related to the aerosol optical thickness. Because large particles yield negligible polarization, the index quantifies the load of the accumulation mode, with an effective radius of 0.18 μm . Over the oceans, the aerosol index is defined as the product of the aerosol optical thickness and the Ångström coefficient α . α is close to zero for large particles such as dust, and on the order of 1 to 1.5 for smaller particles such as those generated by biomass burning or industrial activity. The consistency of the index over land and oceans is demonstrated by the observed continuity at the coastal boundaries.
20. T. Nakajima et al., *Geophys. Res. Lett.* **28**, 1171 (2001). For a given optical thickness, the number of particles is much larger for a sub-micronic aerosol (typical for biomass burning smoke and pollution) than for larger sized particles such as dust. On the other hand, the Ångström coefficient decreases as the particle size increases. Thus, the aerosol index (optical thickness $\times$ Ångström coefficient) partly compensates the size effects and is better related than the optical thickness to the number of particles.
21. J.-L. Deuzé et al., *J. Geophys. Res.* **106**, 4913 (2001).
22. F.-M. Bréon, S. Colzy, *Geophys. Res. Lett.* **27**, 4065 (2000).
23. No ground truth validation has been performed, but the agreement between the measured and modeled polarized radiances suggests an RMS accuracy better than 0.5 μm on individual estimates. The noise in the

Fig. 4. Same as Fig. 3 on a log-log scale. Only the curves as a function of aerosol index are shown.



REPORTS

- monthly averages also results from the natural variability when few measurements are available.
24. G. F. Herman, J. Curry, *J. Clim. Appl. Meteorol.* **23**, 5 (1984).
25. D. Tanré et al., *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 4555 (2001).
26. Each point in Fig. 3 shows the average of individual CDR measurements that correspond to a given bin of aerosol load estimates. Because there is a significant uncertainty on the aerosol load, this average is derived from cases with actual loads that may be higher or lower than the bin value. For the lowest load bin,

- only higher loads (smaller CDR) contaminate the estimate. This tends to decrease the average CDR all the more that the uncertainty on the aerosol load is larger.
27. G. Feingold et al., *J. Geophys. Res.* **106**, 22907 (2001).
28. Because the curve as a function of optical thickness (green) is significantly above that as a function of aerosol index (blue), one may get the false impression that they have been obtained from different sets of CDR and aerosol retrievals. In fact, more

than half of aerosol index estimates fall into the lowest load bin when the corresponding optical thicknesses are distributed over a wider range of values. The blue and green curves have been derived from the same sample and have the same overall mean CDR.

29. S. Twomey, in *Atmospheric Aerosols* (Elsevier Science, New York, 1977); see in particular equations 4 to 15.

20 September 2001; accepted 3 January 2002

Evidence for Strengthening of the Tropical General Circulation in the 1990s

Junye Chen,^{1,2*} Barbara E. Carlson,² Anthony D. Del Genio²

Satellite observations suggest that the thermal radiation emitted by Earth to space increased by more than 5 watts per square meter, while reflected sunlight decreased by less than 2 watts per square meter, in the tropics over the period 1985–2000, with most of the increase occurring after 1990. By analyzing temporal changes in the frequency of occurrence of emitted thermal and reflected solar fluxes, the effects of El Niño–Southern Oscillation are minimized, and an independent longer-time-scale variation of the radiation budget is identified. Similar analyses of upper tropospheric humidity, cloud amount, surface air temperature, and vertical velocity confirm that these flux changes are associated with a decadal-time-scale strengthening of the tropical Hadley and Walker circulations. Equatorial convective regions have intensified in upward motion and moistened, while both the equatorial and subtropical subsidence regions have become drier and less cloudy.

The energy exchange between Earth and its environment is determined by the emitted thermal [longwave (LW)] flux and the reflected part of the solar irradiance [shortwave (SW)] flux at the top of the atmosphere (TOA). Equilibrium of Earth's climate requires that the global annual mean net radiation flux at the TOA be approximately zero.

Clouds and the Earth's Radiant Energy System (CERES) (*1*) instruments on the Tropical Rainfall Measuring Mission (TRMM, begun in 1998) satellite and the Earth Observing System Terra (begun in 2000) satellite have observed LW fluxes 5 to 10 W m^{-2} (~ 2 to 4%) higher than those from the Earth Radiation Budget Experiment (ERBE) (2) scanner data (1985–1989). These differences cannot be fully explained by known changes of the satellite observation systems (3–5). The ERBE wide field of view (WFOV) data (1985–1995) span a longer time period though at lower spatial resolution than the ERBE scanner data and clearly show a decadal increase of LW flux, primarily during the first half of the 1990s (3) (Fig. 1).

Local LW changes are weakly positive, about 4 W m^{-2} over 10 years, in most of the tropics (6). Much larger changes occur adjacently with opposite sign (for example, the West Pacific warm pool and Central Pacific region).

Empirical orthogonal function (EOF) analysis decomposes temporal variations into orthogonal spatial patterns that sometimes reveal independent physical mechanisms (7). When EOF analysis is applied to the radiation flux anomalies (8), the first principal component (PC) describing the time evolution of the first spatial pattern is strongly correlated with the NINO3 El Niño–Southern Oscillation (ENSO) index (9), and the first spatial pattern explaining the largest fraction of the temporal variance resembles the West Pacific–Central Pacific dipole. This mode is an embodiment

of the well-known shift of the convection center between the two regions in different ENSO phases (10). But the decadal LW flux increase (Fig. 1) cannot be identified by the spatial-temporal EOF decomposition. Although in 1998 both the ENSO index and the tropical mean LW flux anomalies reach their maximum, the two time series are poorly correlated with each other (Fig. 2A). This implies that the mechanism behind the long-term average LW flux increase is distinct from the ENSO phenomenon. The elevated CERES Terra LW flux in 2000, a non-ENSO year, relative to the ERBE period is further evidence for a longer term flux variation.

Because ENSO primarily involves a spatial redistribution, frequency histograms of SW and LW fluxes covering the entire tropics exhibit much less interannual variability than do the geographical distributions of the fluxes within the tropics. We therefore minimize the ENSO signal by constructing a SW-LW joint frequency distribution (JFD) matrix (11) for each month. We then compute anomalies of the JFD with respect to the climatology and decompose these with EOF analysis (12). The high correlation between the first PC and the tropical mean LW flux anomaly time series means that the first mode of the SW-LW JFD EOF represents the long-term increase in LW flux (Fig. 2A). The first PC shows that the increase begins at the start of the 1990s, and elevated flux levels are still present in 2000. The first JFD EOF pattern (Fig. 2B) shows that occurrences of LW flux values of $\sim 255 \text{ W m}^{-2}$ and SW flux values of $\sim 75 \text{ W m}^{-2}$ decrease over the 1985–2000 time period and are replaced by higher LW fluxes of $\sim 290 \text{ W m}^{-2}$ and lower SW fluxes of $\sim 60 \text{ W m}^{-2}$. To mimic the effect of a worst-case hypothetical calibration shift in

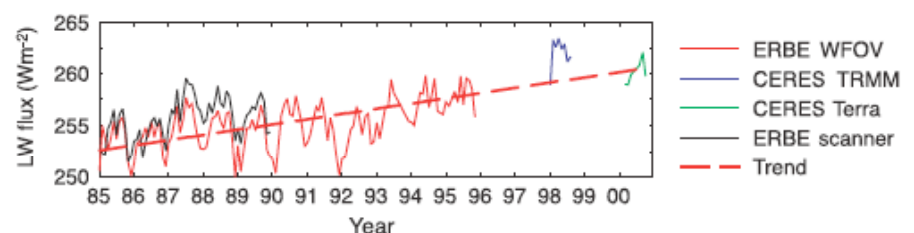


Fig. 1. Tropical mean LW flux time series showing decadal variation averaged over 30°S–30°N. The red dashed line is the linear fit to the ERBE WFOV, CERES TRMM, and CERES Terra data. The slope is 3.7 W m^{-2} per decade.

¹Department of Earth and Environmental Sciences, Columbia University, Palisades, NY 10964, USA.

²NASA/Goddard Institute for Space Studies, 2880 Broadway, New York, NY 10025, USA.

*To whom correspondence should be addressed. E-mail: jchen@giss.nasa.gov

Annexe B

Les figures de cet article sont présentées en couleur au chapitre 3.

Improving the seasonal cycle and interannual variations of biomass burning aerosol sources

S. Generoso¹, F.-M. Bréon¹, Y. Balkanski¹, O. Boucher², and M. Schulz¹

¹Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, CEA/CNRS, Gif-sur-Yvette, France

²Laboratoire d'Optique Atmosphérique, CNRS / Université des Sciences et Technologies de Lille, Villeneuve d'Ascq, France

Received: 31 January 2003 – Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss.: 15 April 2003

Revised: 9 July 2003 – Accepted: 29 July 2003 – Published: 22 August 2003

Abstract. This paper suggests a method for improving current inventories of aerosol emissions from biomass burning. The method is based on the hypothesis that, although the total estimates within large regions are correct, the exact spatial and temporal description can be improved. It makes use of open fire detection from the ATSR instrument that is available since 1996. The emissions inventories are re-distributed in space and time according to the occurrence of open fires. Although the method is based on the night-time hot-spot product of the ATSR, other satellite biomass burning proxies (AVHRR, TRMM, GLOBSCAR and GBA2000) show similar distributions.

The impact of the method on the emission inventories is assessed using an aerosol transport model, the results of which are compared to sunphotometer and satellite data. The seasonal cycle of aerosol load in the atmosphere is significantly improved in several regions, in particular South America and Australia. Besides, the use of ATSR fire detection may be used to account for interannual events, as is demonstrated on the large Indonesian fires of 1997, a consequence of the 1997–1998 El Niño. Despite these improvements, there are still some large discrepancies between the simulated and observed aerosol optical thicknesses resulting from biomass burning emissions.

1 Introduction

Aerosols affect the Earth radiative balance through diverse processes (direct and indirect effects), which are qualitatively well understood (Charlson et al., 1992; Twomey, 1977) but quantitatively still poorly known (Haywood and Boucher, 2000; IPCC, 2001). There are many evidence of a large effect of aerosols on climate both at regional (Léon et al., 2002) and

global (Bréon et al., 2002) scale. Improving our knowledge requires, in particular, a better representation of aerosols in atmospheric models, which requires, among others, an accurate representation of sources (see Fig. 4 of Charlson et al., 1992). In this paper, we focus on biomass burning, which is the main source of carbonaceous aerosols (Black Carbon (BC) and Organic Carbon, OC). The two emission inventories most often used in general circulation models (GCM) are that of Lioussé et al. (1996) and GEIA (Global Emissions Inventory Activity, a part of the International Global Atmospheric Chemistry (IGAC) Project). Although satellite data have been used to describe the monthly distribution of emissions over Africa (Cooke et al., 1996), the seasonal cycles are uncertain in many regions. In addition, interannual variations are not accounted for in these inventories. Satellites are well suited to provide seasonal and inter-annual information because of their global and continuous coverage. The present study describes a method that generates emission maps of biomass burning aerosol, which couples the inventories (Lavoué et al., 2000; Lioussé et al., 1996) to the occurrence of fires as detected by ATSR-2 (Along Track Scanning Radiometer). Recently Schultz (2002) and Duncan et al. (2003) have presented methods that are based on a similar idea. Duncan et al. (2003) use the 20 years TOMS aerosol index to quantify the interannual variability over an extended time period. A major difference of our method is that the biomass burning location is redistributed in space within large regions, as will be discussed in Sect. 2. In addition, the present work shows atmospheric transport simulations of the aerosol loads using both the original and the corrected inventories, which allows a direct analysis of the method impact through a comparison to aerosol load sunphotometer measurement. Finally, we make use of multi-year optical thickness simulation and measurements, which permit an analysis of the seasonal and interannual variability.

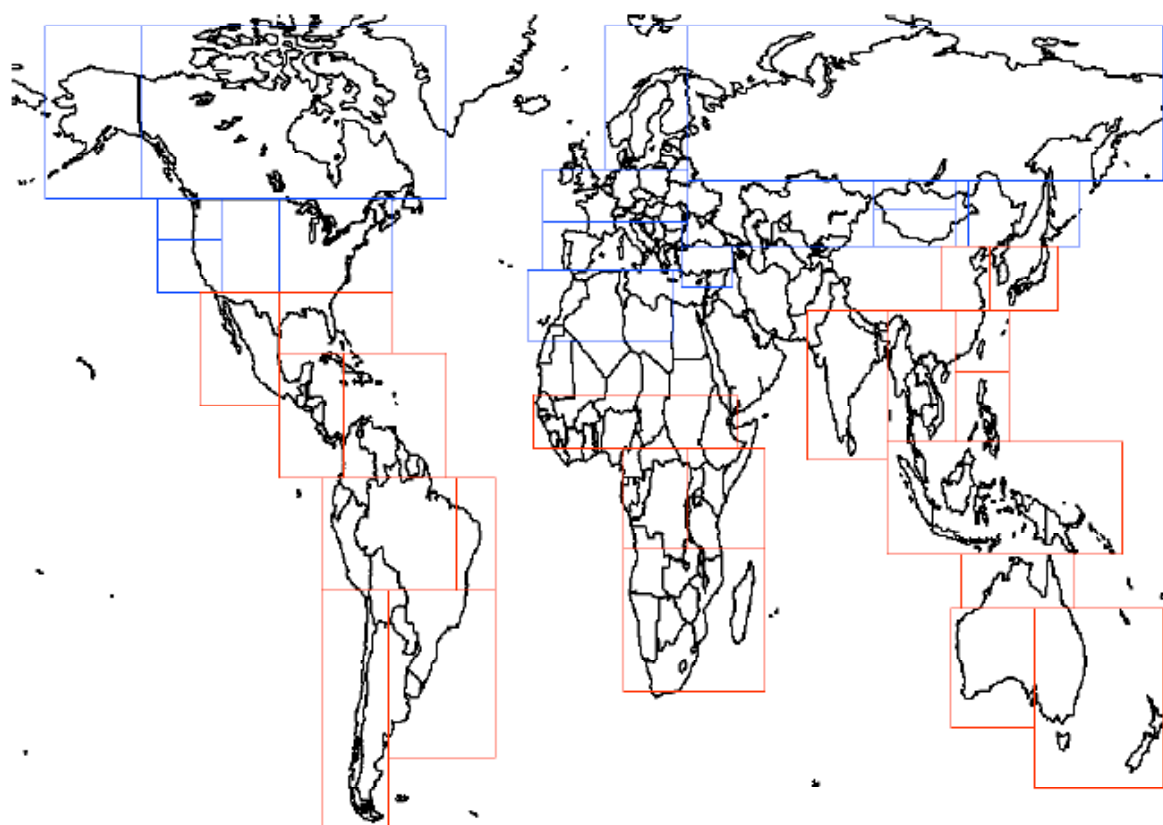


Fig. 1. Regional boxes used to build the emission maps. The boxes have been defined to distinguish areas with a fairly homogeneous vegetation cover and fire seasonal cycle.

2 Method

The monthly emission maps have been created as follow. First, the globe is divided into boxes that contain fairly homogeneous vegetation cover and fire season. The regions have been selected based upon MODIS land cover maps (<http://modis-land.gsfc.nasa.gov/>). In high latitude regions, the boxes follow the work of Lavoué et al. (2000), based on state borders and dominant vegetation (blue boxes in Fig. 1). Within each box, we compute the total annual emission according to the inventories.

Similarly, we compute within each box the total number of fires detected by the ATSR instrument during the period [January 1997–May 1997] U [June 1998–December 2001]. The period from June 1997 to May 1998 was omitted since it is strongly affected by an El Niño event, which resulted in very abnormal fire activity. We also removed from the datasets the “hot-spots” occurring in the same place during several months, as those are likely to be a result of industrial flares. The hot-spots, likely to be agricultural or wild fires, are detected based on a simple 317 K threshold on the $3.7\ \mu\text{m}$ channel on night-time observations (Arino and Melinotte, 1995). This product appears well suited for our needs as it is sensitive to fires that are small compared to the

$1 \times 1\ \text{km}^2$ pixel, and because there is no orbit drift on the platform, which makes possible year-to-year comparisons. On the other hand, it suffers from well-known drawbacks that are discussed in the next section. Since a cloud presence will prevent the satellite detection of an underlying fire, a cloud coverage correction was applied by weighting the number of fires by $(1-C)^{-1}$ where C is the monthly climatological cloud cover (New et al., 1999).

From these two datasets, we compute for each box the ratio between the annual emitted quantities of carbonaceous aerosols (Q) and the annual mean number of detected fires after having applied the cloud cover correction (N). This Emission Constant (EC) is a statistical estimate of the emitted mass per detected fire. It varies depending on the box but is assumed constant within a given box, all through the year and from one year to the next.

Using EC and the monthly hot-spot distributions at the chosen resolution, we compute an emission estimate for all months when ATSR data is available (July 1996 to January 2002 at the time of the study). In the results presented in the following, the resolution was chosen in agreement with the atmospheric model resolution (3.75×2.5 degrees in longitude and latitude, respectively) although the same procedure would apply to finer grids. In order to provide an emission

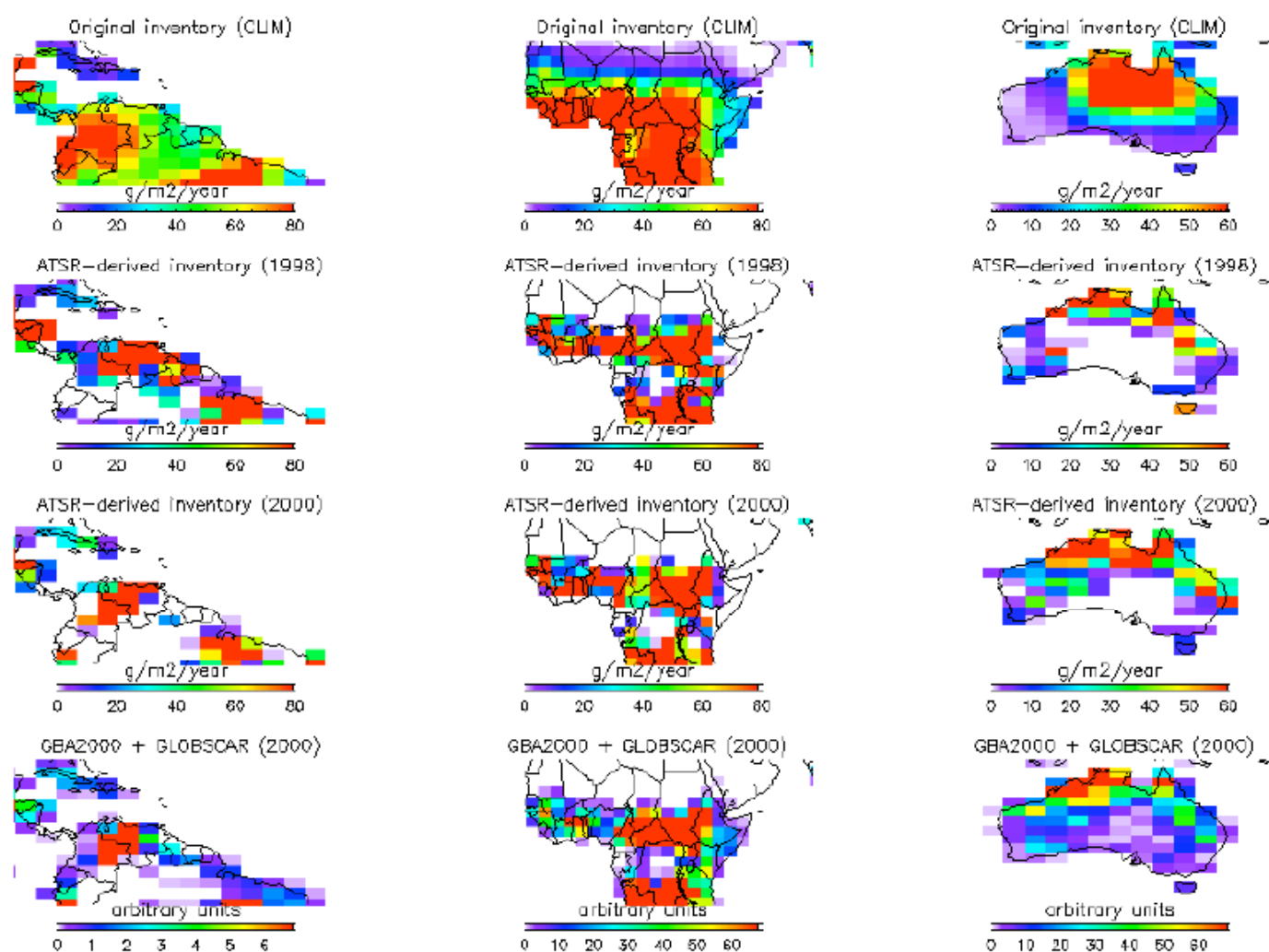


Fig. 2. Several proxies of biomass burning activity over Central and South America (left), Africa (center) and Australia (right). First line is the original inventory (from Lioussé et al., 1996). The two middle lines are the corrected inventories for 1998 and 2000 respectively. The bottom line is a proxy based on the estimates of burnt surfaces by GBA and GLOBSCAR (averaged value of the two is used here).

estimate for the periods when no ATSR data is available, we also computed a “climatological” monthly emission based on the mean number of fires observed during a given month for the same period that excludes El Niño.

In Schultz (2002) and Duncan et al. (2003), the scaling factor is computed for each 1° square grid box, whereas we estimate a value for each of the large regions shown in Fig. 1. In this way, the inventory emissions are redistributed over the season as in the above methods, but also within the boxes of Fig. 1. Figure 2 presents three examples of spatial redistribution. The first one concerns the Northern countries of South America (first row of Fig. 2). The original inventory shows a maximum of the annual estimates that extends from the Western part of Venezuela to Colombia and Ecuador. On the other hand, the ATSR-derived inventory shows for 1998 a maximum area that extends from Venezuela to Suriname, thus largely shifted to the North-East. We also show

the ATSR corrected estimate for 2000 as a fully independent proxy of biomass burning is available for this year. The spatial distribution of burned surfaces (lower figure) is much closer to the ATSR corrected inventory than to the original version (top figure). This is a strong indication of the positive impact of spatial redistribution. When the scaling is applied on boxes that are small in comparison with typical size of biomass burning regions, as in Schultz (2002) the inventories are only corrected for any temporal deficiency. Duncan et al. (2003) proposed a method to account for spatial redistribution, which applies differently in function of the regions. For some regions the distribution of the base inventory is not modified. Other examples are shown in Fig. 2 concerning the Northern part of Africa and Australia. The three cases clearly indicate that the corrected inventory agree much better than the original with the estimates of burnt surfaces.

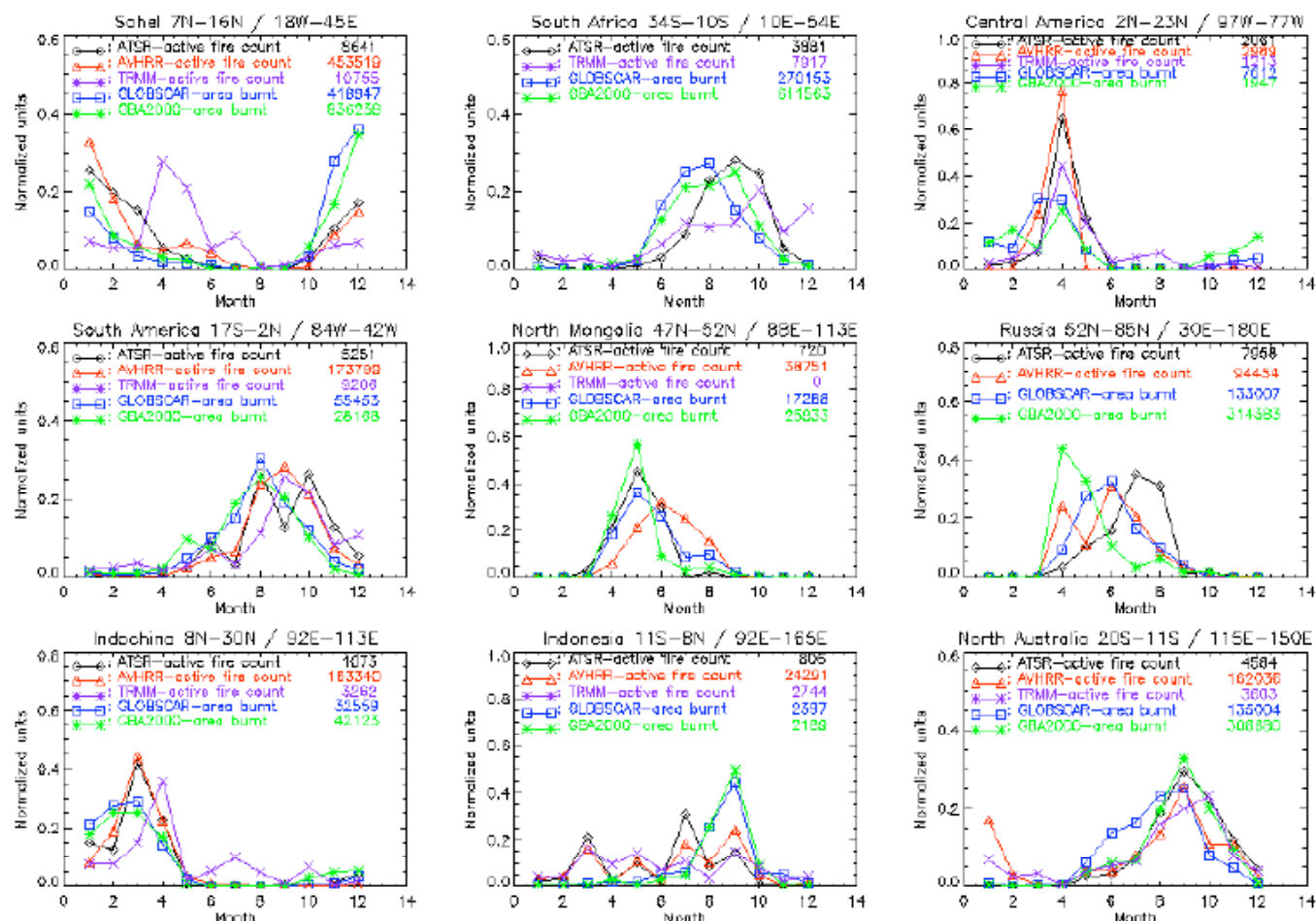


Fig. 3. Comparisons between five global fire products for nine selected regions. The number of fires for ATSR, TRMM and AVHRR and the burnt area for GLOBSCAR and GBA2000 (in arbitrary units) are plotted as a function of time and for the year 2000. Numbers shown close to the name of the datasets correspond to the total number of occurrences (fires for ATSR, TRMM, AVHRR; burnt area for GLOBSCAR and GBA2000) detected in the year in the given region.

3 Discussion

3.1 Representativity of the night-time detection

The method provides a simple way to introduce temporal and spatial variations of biomass burning in the inventories. On the other hand, it requires unproven assumptions. A first assumption stems from the use of night observations only. As a consequence, the emission distribution is only based on fires that extend into the night. This hypothesis does not impact the mean emissions in a box as it is implicitly accounted for in the Emission Constant EC. On the other hand, the method will fail if the ratio between the number of day-time and night-time fires varies significantly, within a box, between months or between the various pixels of the emission grid. To assess the representativity of the night-time fires used in this study, we have compared the global fire count products from the AVHRR (daily) (World Fire Web from the Joint Research Center of the European Commission

available at <http://www.gvm.jrc.it/tem/wfw/wfw.htm>), ATSR (night-time), TRMM (daily) (Giglio et al., 2003, 2000), and the GBA2000 (Grégoire et al., 2003) and GLOBSCAR (Simon et al., 2003) burnt area products. We have plotted the number of fires for ATSR, TRMM and AVHRR and the burnt area for GLOBSCAR and GBA2000 (in arbitrary units) as a function of time and for the year 2000. The comparisons are made within the large regions of Fig. 1.

Figure 3 shows the results for nine selected regions. The same plots were made for all the regions of Fig. 1. We only show a representative sample. There are two main types of proxies. ATSR, AVHRR and TRMM products are based on the detection of active fires (hot-spots). On the other hand, GLOBSCAR and GBA2000 detect the presence of burnt surfaces. In general, there is a good agreement between the different proxies, in particular over the major zones of biomass burning: Sahel (except TRMM), South and Central America, Mongolia, Indochina Peninsula, and Australia (except

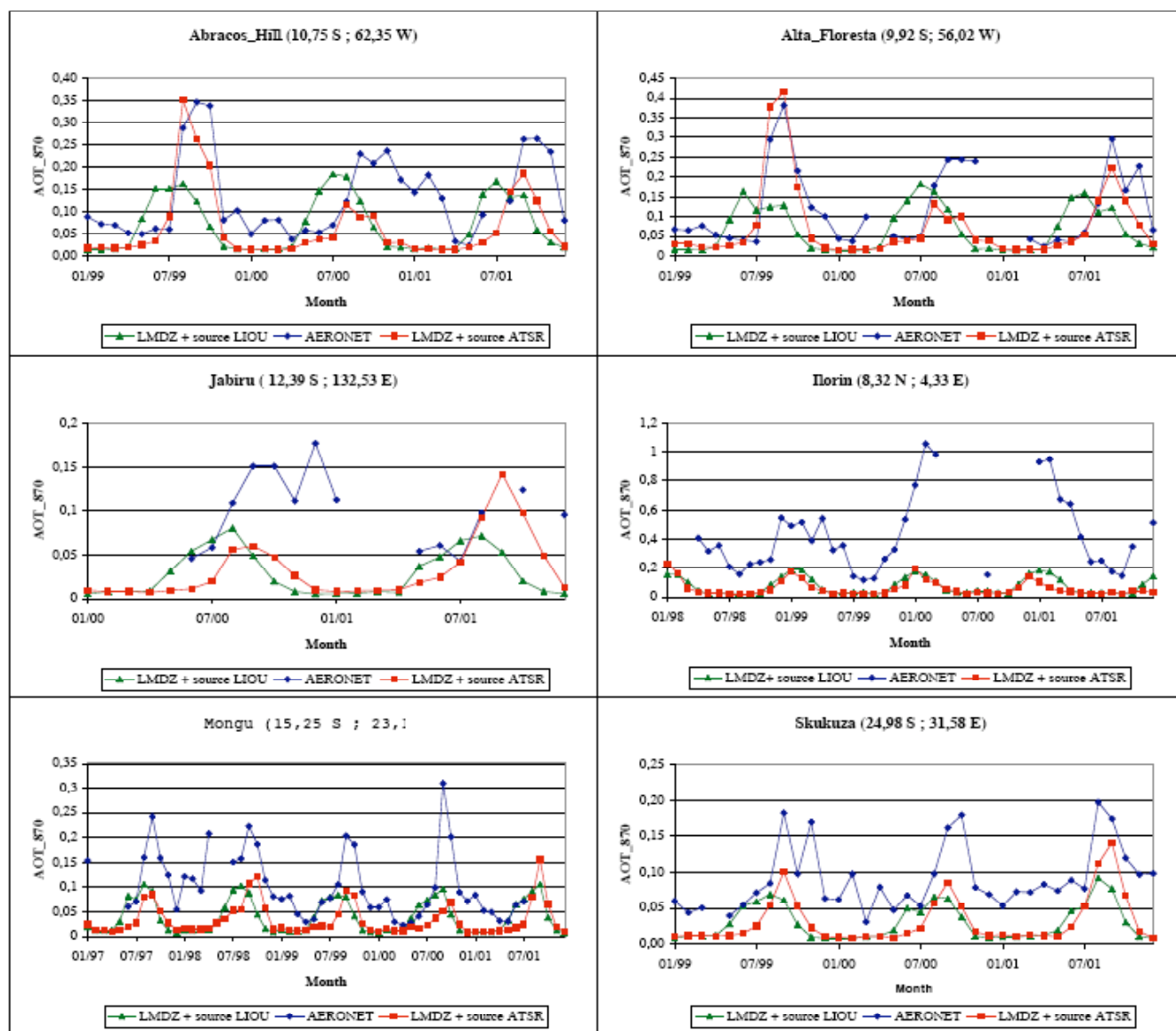


Fig. 4. Aerosol optical thickness measured by AERONET sunphotometer (blue curve) compared to LMDZ estimates with the new sources (red curve) and with the previous sources (green curve).

GLOBSCAR in the northern region). A few regions show significant differences between the proxies however, with the burnt area product showing an earlier season than the hot-spot based products. This feature is strongly apparent over South Africa. Note that, the optical depths – another proxy of biomass burning activity – measured by the AERONET stations Mongu (15°S , 23°E) and Skukuza (24°S , 31°E) are maximum in September and October 2000 (see Fig. 4), thus more in agreement with the hot-spot products than with the burnt area products. Indonesia is another region with strong differences between the proxies. Indeed, both burnt area product show a well-marked seasonal cycle, whereas the hot-spot products detect fire over most of the year. The three products based on the hot-spot show rather similar profiles,

with correlated month-to-month variability, so that the differences cannot be attributed to the night time only detection of the ATSR.

These analyses demonstrate that in most cases, the night-time only ATSR product shows a seasonal cycle that is consistent with the other proxies. In several cases, the burnt area products reach their maximum earlier than the fire count products. The differences between the burnt area products and those based on the hot-spots are not larger when using a night-only proxy (ATSR) than when using a night+day one (AVHRR or TRMM). This indicates that, although all products do have uncertainties, the night time restriction does not appear to be significant.

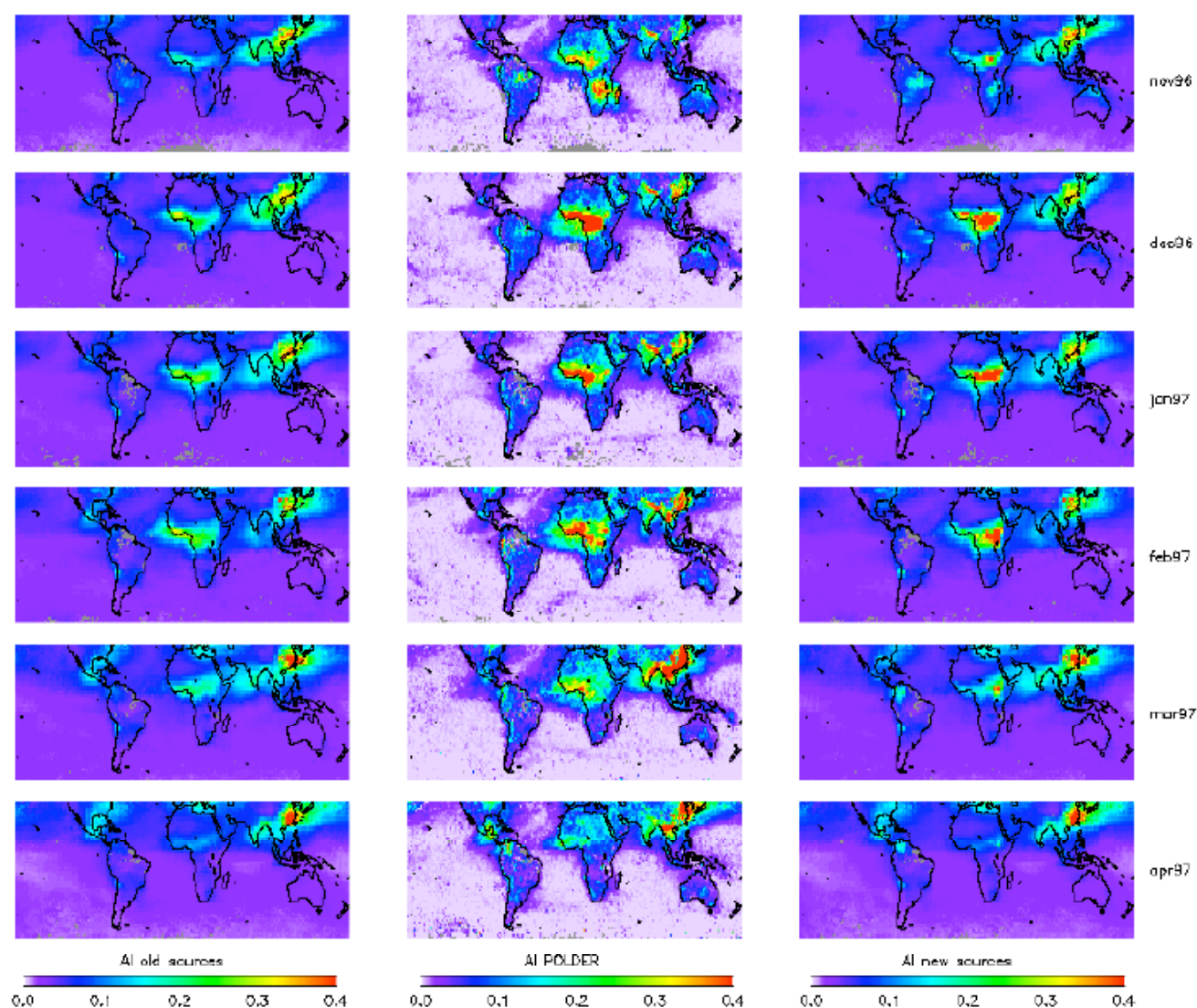


Fig. 5a. Comparisons between POLDER AI and LMDZ AI using both the original and the new sources from November 1996 to April 1997. LMDZ AI is obtained from AOT865 assuming an Angström coefficient equal to 1.5 (Dubovik et al., 2002; Lioussé et al., 1995). Note that all the monthly means are computed for the days when POLDER data are available.

3.2 Other causes of uncertainty

Cloud coverage is also a source of uncertainty as it prevents the detection of surface fires. We have attempted to correct for the cloud coverage using a monthly climatology. Nevertheless significant uncertainty remains as the cloud cover may differ from the climatology (in particular during specific meteorological events) and also because the night-time mean cloud cover may differ from the daily climatology that we use.

Another potential problem results from the satellite coverage that increases with latitude (a high latitude point is sampled more frequently than a low latitude one), augmenting the probability of fire detection. On the other hand, the boxes of Fig. 1 are small enough so that the satellite revisit

frequency does not change significantly within a box. As our method computes EC box by box, the variation of satellite coverage with the latitude is implicitly accounted for.

Moreover, the geo-location precision of the ATSR has been significantly affected during the year 2001 with a misregistration of up to 40 km. This distance is small in comparison with the sizes of our boxes and typical size of areas affected by biomass burning. As a consequence, misregistration shall have a small impact to our results, except for areas affected by industrial flares as our detection and removal procedure is based on a persistent signal within a 3 km radius.

Finally, these maps have been made assuming that in each box, the emission efficiency of fires for BC or OC has no seasonal or interannual variation (EC is constant). This is

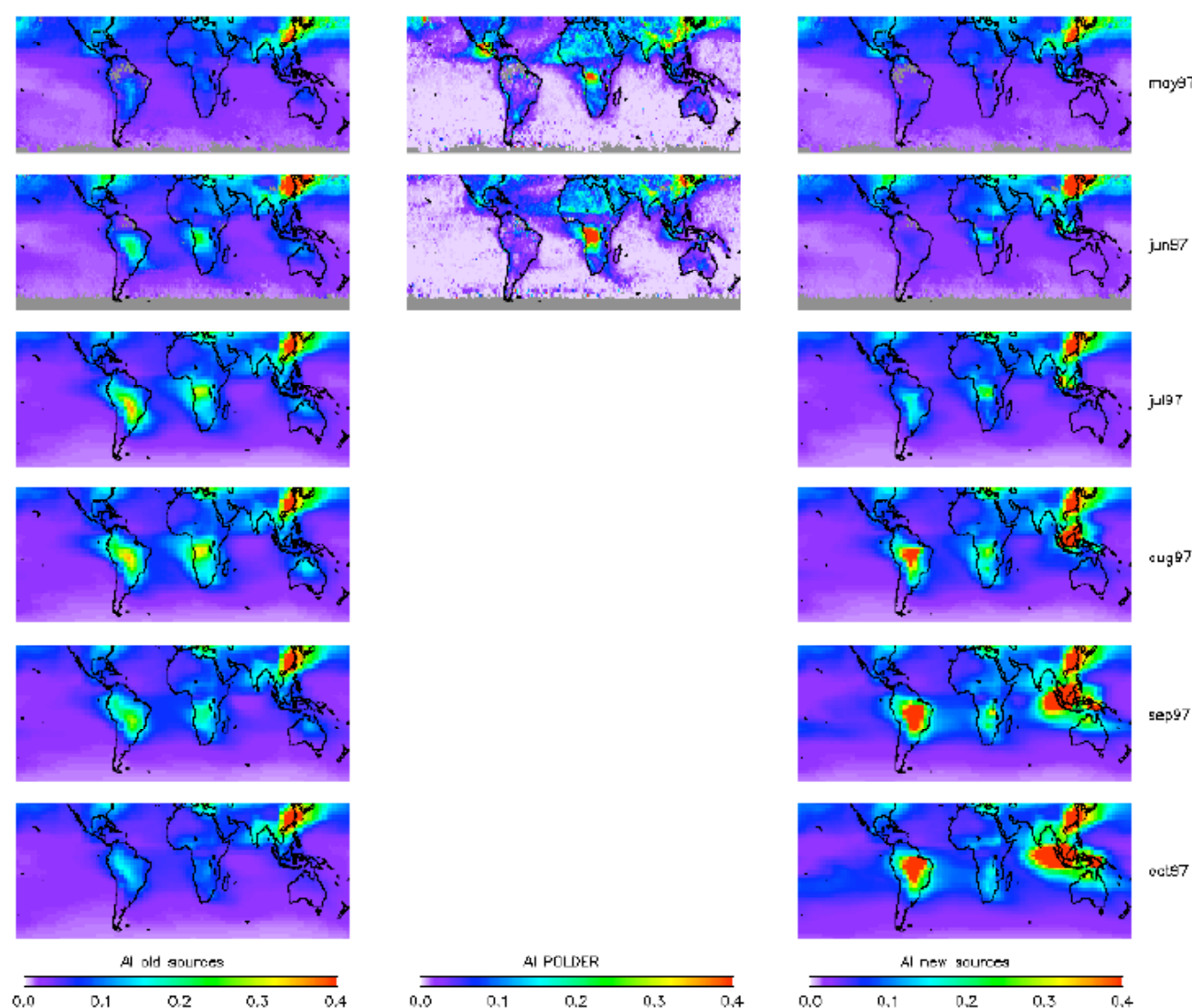


Fig. 5b. Comparisons between POLDER AI and LMDZ AI using both the original and the new sources from May 1997 to October 1997. LMDZ AI is obtained from AOT865 assuming an Angström coefficient equal to 1.5 (Dubovik et al., 2002; Lioussé et al., 1995). Note that all the monthly means are computed for the days when POLDER data are available.

a rather strong assumption as, for a given vegetation type, the emitted quantities depend on several parameters such as ground humidity, vegetation state or burns history, that vary with the season.

4 Results and validation

Both original and satellite-corrected emission maps have been used as input of the Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMD) General Circulation Model, LMDz, coupled with INCA (Interaction with Chemistry and Aerosols) which is an emission/chemistry model (<http://www.ipsl.jussieu.fr/~dhaer/inca/>). We use the model with a resolution of 96×72 (3.75×2.5 degrees in longitude and latitude) and 19 hybrid vertical levels. Only carbonaceous aerosols were analyzed

in this study. The model can include its own dynamics, although we nudged here the meteorological fields from the 6-hourly ECMWF reanalysis. It generates fields of aerosol load [$\text{g} \cdot \text{m}^{-2}$] that are converted into optical thicknesses at 865 nm using constant factors ($3.5 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ for OC and $4.5 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ for BC, (Dubovik et al., 2002; Lioussé et al., 1995, 1996) based on typical size distributions of biomass burning aerosols.

4.1 Seasonal cycle

Ground-based measurements from AERONET (Holben et al., 1998) stations in South America, Africa and Australia are used to validate our simulations. Chin et al. (2002) evaluates the simulations of the GOCART aerosol transport model, using biomass burning emissions from Duncan et al. (2003),

for the different aerosol components through a comparison to AERONET data. More than 20 AERONET sites are used for the comparison, although only five of them are significantly affected by biomass burning emissions. Here, we show several seasonal cycles whereas Chin et al. (2002) only analyze a mean cycle. These year-to-year comparisons are essential as there is significant interannual variability, which results both from the emissions and the meteorology. Comparisons are also made with satellite observations from the POLDER (POLarization and Directionality of the Earth Reflectances, Deschamps et al., 1994) spaceborne instrument, which is well suited to study aerosols and in particular biomass burning aerosols. The Aerosol Index (AI) from POLDER (Deuzé et al., 2001), available both over land and ocean, is an indicator of submicronic aerosol load only, thus mainly sulfate, BC and OC. The analysis of POLDER retrievals (Tanré et al., 2001) provides a rough identification of the aerosol origin.

Figure 4 shows the mean AERONET Aerosol Optical Thickness at 870 nm (AOT870) (in blue), the simulation results using the new sources (red) and those using the previous sources from Liousse et al. (1996) (in green) at six different AERONET sites. Two type of information are shown in Fig. 4. First, the information on the phase of the burning season. The improvements to the seasonal cycle are given by the phasing of the simulated curves (red and green) with the observation curve (blue). The other information concerns the aerosol load, which is directly linked to the amplitude of the curves. The method presented here only impacts the spatial and temporal distribution of fires but not the mean emitted quantities as we assume the total annual estimates of the original inventory to be correct averaged estimates.

In a first step, we discuss the results over South America, where Alta Floresta (9° S, 56° W) and Abracos Hill (10° S, 62° W) are selected because long-time series of data are available. AERONET data show the impact of the biomass burning activity from August to November with a maximum value generally in September during three consecutive years from 1999 to 2001. The correction of the emission inventories using the satellite data shift the period with a large aerosol load by typically two months. Although there are some disagreement in terms of optical thickness between the simulations and the sunphotometer measurements, in particular during the later part of the burning season, the cycle is clearly improved. The observed aerosol load cycle for the year 2000 is clearly different than for the other years. It is not reproduced by the simulation. On the other hand, none of the biomass burning proxies (see Fig. 3) shows a significant burning activity during the later part of the year, while a large aerosol load is observed. Therefore, none method based on these satellite products would reproduce this specific event.

Over Australia, Jabiru (12° S, 132° E) is the only site in the North with sufficient amount of data. Although the seasonal cycle is not complete, the maximum aerosol load appears to be in September and October. In addition, the comparisons of the diverse global fire products (see Fig. 3) show that

the burning season starts in May/June and ends in November with the maximum of detected fire from August to October. Note that only GLOBSCAR show relatively large amount of fire earlier (in June and July) in disagreement with GBA2000 and all fire count products. Hence, methods based on the other fire products (except GLOBSCAR) would have reproduced a similar seasonal cycle. The corrected emission maps lead to a better agreement of the seasonal cycle with the different biomass burning proxies over North Australia although the magnitude of the optical depth is somewhat too small.

Over the African continent there are two main areas of biomass burning. One extends along 10° of latitude with the main activity between November and February. The other large burning area of Africa extends over the southern subtropics, with an activity that starts in June in the western part of the area, moves to the East and Madagascar, and ends in November. Figure 4 shows the comparison results over Ilorin (8° N, 4° E), Mongu (15° S, 23° E) and Skukuza (24° S, 31° E) sites, which were chosen for their extended time series. These comparisons indicate that the original emission maps show a satisfactory seasonal cycle that is not improved nor degraded using the information from the ATSR. On the other hand, the modeled optical thicknesses are much smaller than the observations, which can be a result of an underestimate of the emission fluxes, although the factor used to convert masses to optical thicknesses can also be blamed. Chin et al. (2002) show that Ilorin is also influenced by dust aerosols, which are not included in the simulations.

In order to have a global view of the representation of carbonaceous aerosols in the model, we show on Figs. 5a and b a comparison between POLDER AI (a good index for carbonaceous and sulfate aerosols) and LMDZ AI. The simulation overlaps the period of the POLDER data, i.e. from November 1996 to October 1997. For consistency with the satellite measurements, the model simulates the source and cycle of carbonaceous and sulfate (Boucher et al., 2002) aerosols. The global picture confirms several findings of the AERONET comparisons. Figure 5a shows that both inventories depict correctly the phase of the aerosol load seasonal cycle in Western Africa, although the maximum of the aerosol index is shifted to the East in February in the simulation (new sources). In South Africa, the model seems to under predict the aerosol index in June (Fig. 5b). The satellite data confirm that there is no significant aerosol load over South America from May to June (see middle panel on Fig. 5b). The model predictions using the ATSR-derived inventory are in agreement with observations, contrary to what the model predicts with the original sources in May and June. The use of information from ATSR fires brings about an even larger change in the phasing of biomass burning over North Australia. The original sources yield a significant aerosol load from May to September, when the corrected sources indicate that the fire activity starts in September.

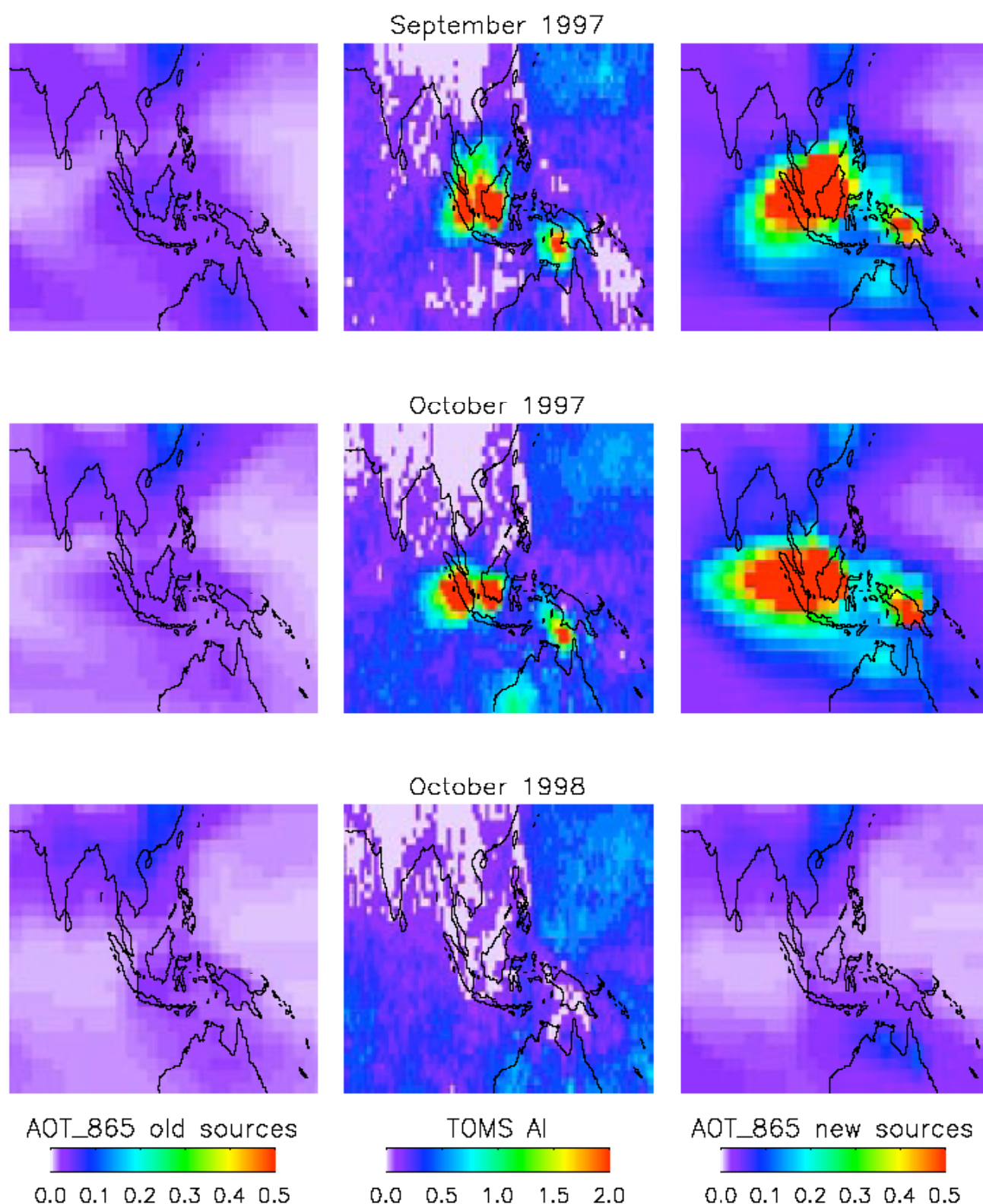


Fig. 6. Comparison of the aerosol index from the Earth-Probe TOMS (middle panels) with simulated aerosol optical depths at 865 nm simulated with Lioussé et al. (1996) inventory (left panels) and newly derived sources from ATSR fire counts (right panels). Color scales were chosen from 0 to 2 for TOMS AI and from 0 to 0.5 for LMDZ AOT in order to be consistent with the assumed value of 5 for the slope of the fit between the TOMS AI and the AOT at 865 nm based upon the Chiappello et al. (2000) study.

Table 1. Quantities of carbonaceous aerosols emitted by biomass burning (including savanna, forest and agricultural fires) in the ATSR-derived inventory. BC emissions are in Tg of Carbon (TgC) per year and OC emissions are in Tg of mass (Tg) per year. BC and OC (blue) correspond to the emissions of the blue boxes of Fig. 1 (boreal latitudes) and BC and OC (red) to the emissions of the red boxes

	BC (blue)	BC (red)	TOTAL BC	OC (blue)	OC (red)	TOTAL OC
1997	0.10	7.00	7.10	1.37	59.41	60.78
1998	0.41	6.09	6.50	7.55	51.64	59.19
1999	0.15	3.79	3.94	2.47	31.26	33.73
2000	0.16	3.20	3.36	2.70	26.45	29.15
2001	0.11	3.09	3.20	1.97	25.48	27.45

4.2 Interannual variability

Table 1 summarizes the emitted quantities of carbonaceous aerosols in the new ATSR-derived inventory for each year of ATSR observations. We have assumed that the total annual estimates of the original inventories (Lioussé et al., 1996 and Lavoué et al., 2000) – as climatological averaged values – are correct. In the original Lioussé et al. (1996) inventory, emissions represent 35.2 Tg of OC and 4.63 Tg of BC (including savanna, tropical forests and agricultural fires; excluding domestic fuels). Year 1999 compares well with these estimates whereas years 1997 and 1998 are a factor 1.5–1.7 larger than the averaged values. This increase in the emissions is mostly due to the Indonesian fires event of September/October 1997. On the other hand, emissions of 2000 and 2001 are smaller (factor of 0.65 to 0.75) than those of the climatological year.

In order to show that the proposed method accounts for large interannual variations, we now focus on the particular event of Indonesian fires that took place in September/October 1997 (Nakajima et al., 1999), thought to be a consequence of 1997/1998 El Niño. This phenomenon was well captured by the Earth-Probe TOMS (Herman et al., 1997). Figure 6 shows a comparison between TOMS AI and LMDZ AOT865 based upon the Lioussé et al. (1996) inventory and upon the ATSR-derived inventory. Note that although an exact quantitative comparison is difficult, the emissions from these fires are reproduced qualitatively through the use of ATSR fire counts. TOMS measurements indicate a large aerosol load over Indonesia in September and October 1997. The consequence of the abnormal fire activity is not depicted with the original inventory, as one would expect for a climatological source. By contrast, the use of ATSR-based emission maps leads to an aerosol index significantly larger than for other years (i.e. October 1998 in Fig. 6). We note also that the spatial distribution of the aerosol loads compares well with the TOMS observations. In addition, Nakajima et al. (1999) have estimated from the AVHRR data that the region of optical thickness at 500 nm larger than 0.5 reaches the Indian and Australian coasts and covers an area such as $2000 \times 5000 \text{ km}^2$. Such high optical depths have been observed from September to November 1997. Hence, the spatial distribution of the fire

event reproduced by the simulation seems correct although the optical depths appear overestimated. This comes from an overestimation of the emissions due to a high EC computed for the Indonesian region. A possible explanation is that too low fires are detected during “normal years”, which might be due to high cloud cover (65% to 85%) over Indonesia.

5 Conclusions

The method described in this paper provides a simple way to introduce biomass burning seasonal cycles into already existing inventories and to take into account interannual variations. The comparison of the aerosol transport simulations to in-situ and satellite measurements clearly shows an improvement when using the fire count information. In particular, the aerosol load seasonal cycle over South America and Australia, which are not well represented in the original inventories, are now better depicted. The comparison with POLDER products provides a global and qualitative validation of the seasonal cycle of biomass burning aerosol. Due to the rather short observing period of POLDER-1, the analysis of the seasonal cycle is incomplete, and we are expecting additional information from the recently launched POLDER-2 instrument onboard ADEOS-II. The comparison of the model simulations with AERONET data allows more quantitative comparison over specific sites. These comparisons confirm the improvement when using the fire count data to constrain the seasonal cycle and the inter-annual events, although significant discrepancies were found in the amplitude of the aerosol load in particular toward the end of the biomass burning season.

The present study focuses on the use of ATSR data because a five years period was available at the time of our analysis. A comparison of this biomass burning proxy to others, limited to the year 2000, indicate a general good agreement. The derivation of aerosol emission from burnt surfaces requires less assumption than from hot-spot counts. Global inventories of aerosol emission from such datasets as GLOBSCAR (Hoelzemann et al., 2003) will be of particular interest when multi-year estimates become available.

Acknowledgements. The emission factors are based on the ATSR World Fire Atlas managed by the European Space Agency (ESA). We thank Cathy Lioussé for providing the OC and BC emission inventories. We thank the principal investigators Brent Holben, Paulo Artaxo, Ross Mitchell and Rachel Pinker and the AERONET program team for providing the ground-based aerosol data used in this work. The satellite data come from the POLDER instrument developed by the Centre National d'Etudes Spatiales onboard the ADEOS platform developed by NASDA.

References

- Arino, O. and Melinotte, J. M.: Fire index atlas, Earth observation quarterly, 50, 1995.
- Boucher, O., Pham, M., and Venkataraman, C.: Simulation of the atmospheric sulfur cycle in the Laboratoire de Météorologie Dynamique General Circulation Model. Model description, model evaluation, and global and European budgets, Note scientifique de l'IPSL, 23, 2002 (available at <http://www.ipsl.jussieu.fr/poles/Modelisation/NotesSciences.htm>).
- Bréon, F.-M., Tanré, D., and Generoso, S.: Aerosol effect on cloud droplet size monitored from satellite, *Science*, 295, 834–838, 2002.
- Charlson, R. J., Schwartz, S. E., Hales, J. M., Cess, R. D., Coakley, J. A. J., Hansen, J. E., and Hofmann, D. J.: Climate forcing by anthropogenic aerosols, *Science*, 255, 423–430, 1992.
- Chiapello, I., Goloub, P., Tanré, D., Marchand, A., Herman, J., and Torres, O.: Aerosol detection by TOMS and POLDER over oceanic regions, *Journal of Geophysical Research – Atmospheres*, 105, 7133–7142, 2000.
- Chin, M., Ginoux, P., Kinne, S., Torres, O., Holben, B. N., Duncan, B. N., and Martin, R. V., Logan, J. A., Higurashi, A., and Nakajima, T.: Tropospheric aerosols optical thickness from the GOCART model and comparisons with satellite and sun photometer measurements, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 59, 461–483, 2002.
- Cooke, W. F., Koffi, B., and Grégoire, J.-M.: Seasonality of vegetation fires in Africa from remote sensing data and application to a global chemistry model, *Journal of Geophysical Research*, 101, 21 051–21 065, 1996.
- Deschamps, P.-Y., Bréon, F.-M., Leroy, M., Podaire, A., Bricaud, A., Buriez, J.-C., and Sèze, G.: The POLDER mission: instrument characteristics and scientific objectives, *IEEE Transactions on geoscience and remote sensing*, 32, 598–615, 1994.
- Deuzé, J. L., Bréon, F.-M., Devaux, C., Goloub, P., Herman, M., Lafrance, B., Maignan, F., Marchand, A., Nadal, F., Perry, G., and Tanré, D.: Remote sensing of aerosols over land surfaces from POLDER-ADEOS-1 polarized measurements, *Journal of Geophysical Research*, 106, 4913–4926, 2001.
- Dubovik, O., Holben, B., Eck, T. F., Smirnov, A., Kaufman, Y. J., King, M. D., Tanré, D., and Slutsker, I.: Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 59, 590–608, 2002.
- Duncan, B. N., Randall, V. M., Staudt, A. C., Yevich, R., and Logan, J. A.: Interannual and seasonal variability of biomass burning emissions constrained by satellite observations, *Journal of Geophysical Research*, 108, 4040, doi:10.129/2002JD002378, 2003.
- Giglio, L., Kendall, J. D., and Mack, R.: A multi-year active fire data set for the tropics derived from the TRMM VIRS, *International Journal of Remote Sensing*, in press, 2003.
- Giglio, L., Kendall, J. D., and Tucker, C. J.: Remote sensing of fires with the TRMM VIRS, *International Journal of Remote Sensing*, 21, 203–207, 2000.
- Grégoire, J.-M., Tansey, K., and Silva, J. M. N.: The GBA2000 initiative: Developing a global burned area database from SPOT-VEGETATION imagery, *International Journal of Remote Sensing*, 24, 1369–1376, 2003.
- Haywood, J. and Boucher, O.: Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: a review, *Reviews of Geophysics*, 38, 513–543, 2000.
- Herman, J. R., Bhartia, P. K., Torres, O., Hsu, C., Seftor, C., and Celanier, E.: Global distribution of UV-absorbing aerosols from Nimbus 7/TOMS data, *Journal of Geophysical Research*, 102, 16 911–16 922, 1997.
- Hoelzemann, J. J., Brasseur, G. P., Granier, C., Schultz, M. G. and Simon, M.: The Global Wildfire Emission Model GWEM: a new approach with global area burnt data, *Journal of Geophysical Research*, submitted, 2003.
- Holben, B. N., Eck, T. F., Slutsker, I., Tanré, D., Buis, J. P., Setzer, A., Vermote, E., Reagan, J. A., Kaufman, Y. J., Nakajima, T., Lavenu, F., Jankowiak, I., and Smirnov, A.: AERONET – A federated instrument network and data archive for aerosol characterization, *Remote Sensing of Environment*, 66, 1–16, 1998.
- IPCC, Climate change 2001: The scientific basis, contribution of working group I to the third assessment. Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge university press, New York, USA, 881 pp. 2001.
- Lavoué, D., Lioussé, C., Cachier, H., Stocks, B. J., and Goldammer, J. G.: Modeling of carbonaceous particles emitted by boreal and temperate wildfires at northern latitudes, *Journal of Geophysical Research*, 105, 26 871–26 890, 2000.
- Léon, J.-F., Chazette, P., Pelon, J., Dulac, F., and Randriamiarisoa, H.: Aerosol direct radiative impact over the INDOEX area based on passive and active remote sensing, *Journal of Geophysical Research*, 107, 10129, doi:10.1029/2000JD000116, 2002.
- Lioussé, C., Devaux, C., Dulac, F., and Cachier, H.: Aging of savanna biomass burning aerosols: consequences on their optical properties, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 22, 1–17, 1995.
- Lioussé, C., Penner, J. E., Chuang, C., Walton, J. J., Eddleman, H., and Cachier, H.: A global three-dimensional model study of carbonaceous aerosols, *Journal of Geophysical Research*, 101, 19 411–19 432, 1996.
- Nakajima, T., Higurashi, A., Takeuchi, N., and Herman, J. R.: Satellite and ground-based study of optical properties of 1997 Indonesian forest fire aerosols, *Geophysical Research Letters*, 26, 2421–2424, 1999.
- New, M., Hulme, M., and Jones, P.: Representing twentieth-century space-time climate variability. Part I: Development of a 1961–90 mean monthly terrestrial climatology, *Journal of Climate*, 12, 829–856, 1999.
- Schultz, M. G.: On the use of ATSR fire count data to estimate the seasonal and interannual variability of vegetation fire emissions, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2, 387–395, 2002.
- Simon, M., Plummer, S., Fierens, F., Hoelzemann, J. J., and Arino, O.: Burnt area detection at global scale using ATSR-2: the GLOBSCAR products and their qualification, *Journal of Geo-*

- physical Research, submitted, 2003.
- Tanré, D., Bréon, F.-M., Deuzé, J. L., Herman, M., Goloub, P., Nadal, F., and Marchand, A.: Global observation of anthropogenic aerosols from satellite, *Geophysical Research Letters*, 28, 4555–4558, 2001.
- Twomey, S.: The influence of pollution on the shortwave albedo of clouds, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 34, 1149, 1977.

