Thèse de doctorat de l'université Denis Diderot

Spécialité Chimie de la Pollution Atmosphérique et Physique de l'Environnement

Cyril Messager

# Estimation des flux de gaz à effet de serre à l'échelle régionale à partir de mesures atmosphériques

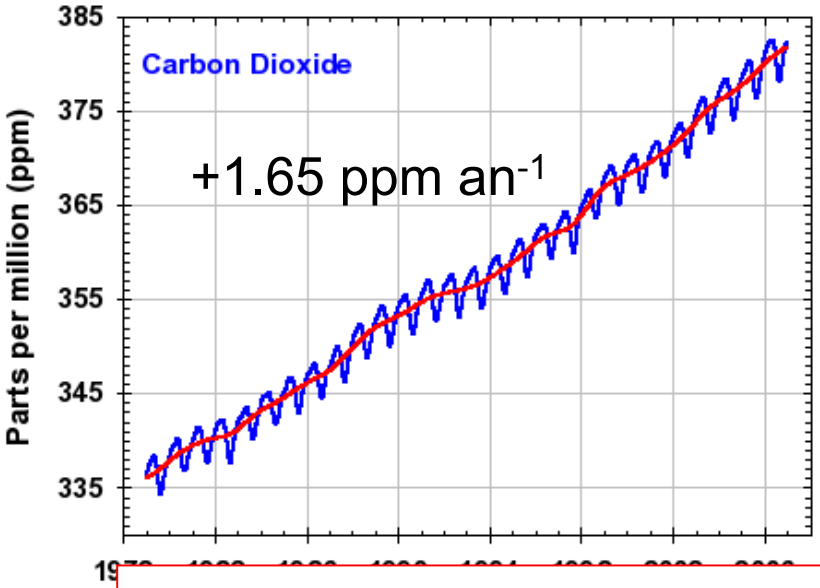
Soutenue le 09 juillet 2007 devant le jury composé de:

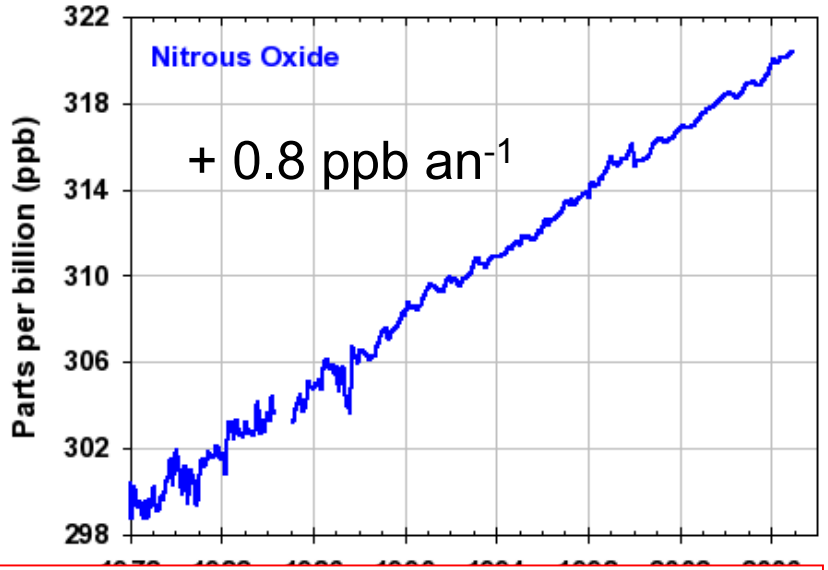
| | |
|---|---|
| Jean-Louis Colin, | Président |
| Paolo Laj, | Rapporteur |
| Robert Delmas, | Rapporteur |
| Philippe Keckhut, | Examinateur |
| Jean-Pierre Fontelle, | Examinateur |
| Martina Schmidt, | Examinateur |
| Philippe Ciais, | Directeur de thèse |

# Programme de la présentation:

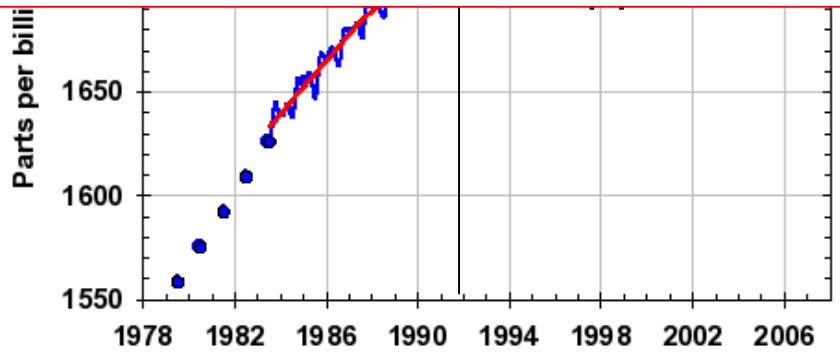
1. Introduction
2. La station de Trainou
   - environnement
   - organisation
   - instrumentation
   - premiers résultats
3. Estimation des flux de GES
   - méthode
   - analyse des données de GIF
   - analyse des données de MHD
4. Conclusions

# Concentrations des principaux GES (moyennes globales)



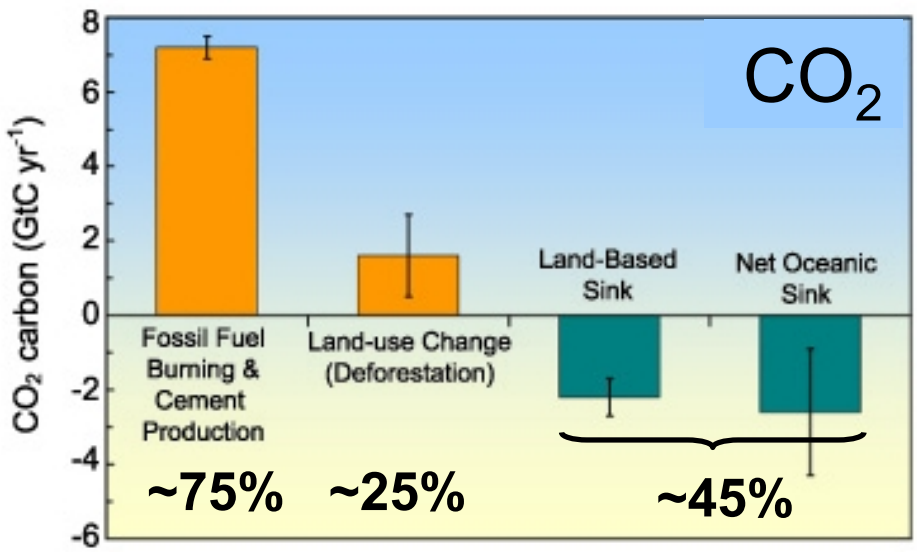



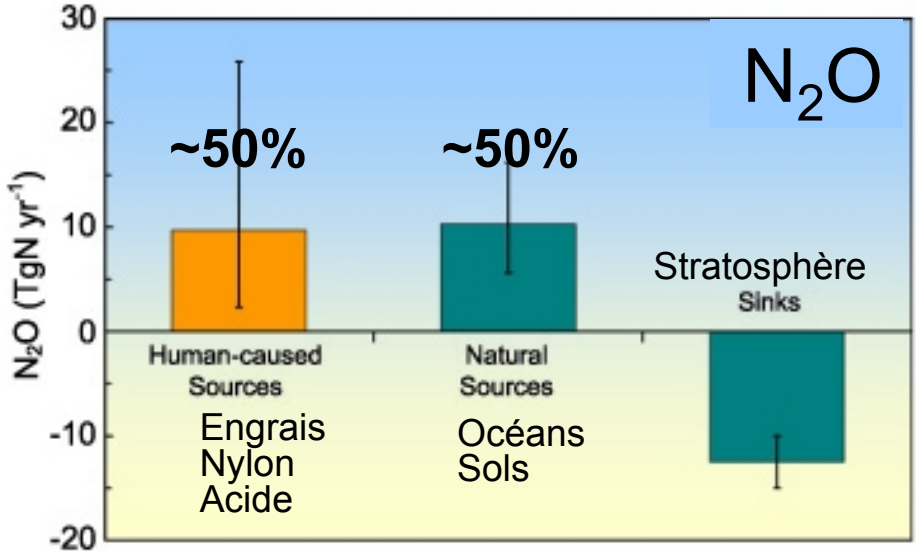

Quels sont les enjeux scientifiques pour comprendre ces tendances?

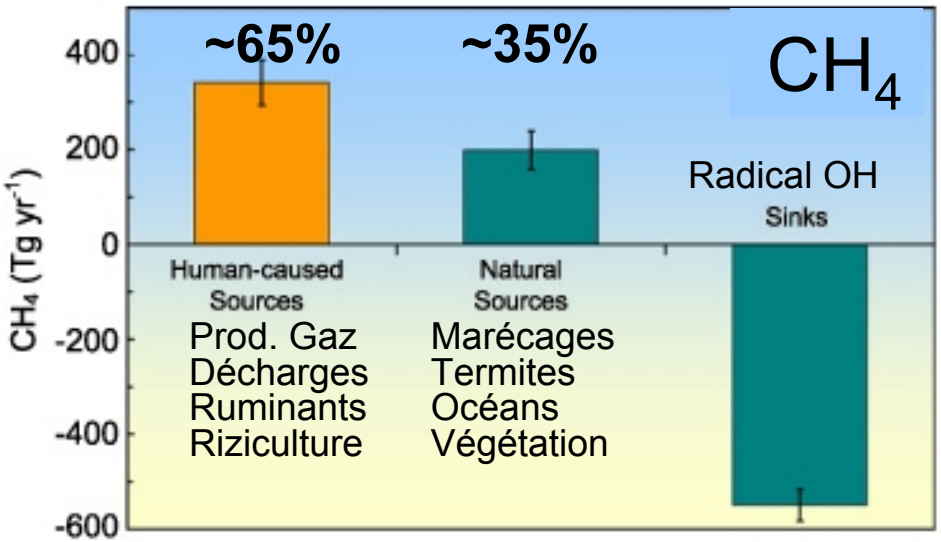



[http://www.esrl.noaa.gov/gmd/aggi/]

# Quelles sont les sources qui contribuent aux changements observés?



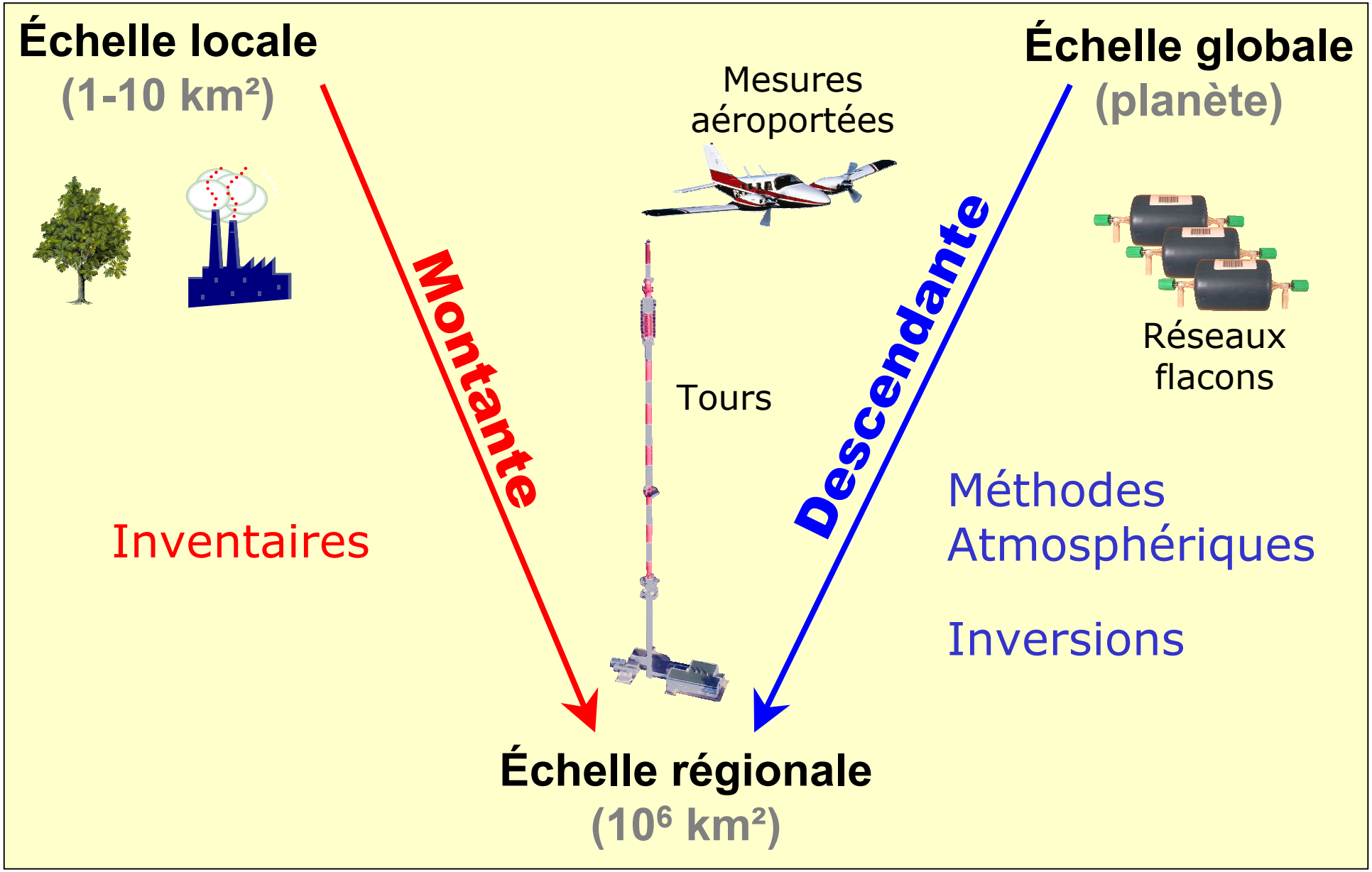




anthropique

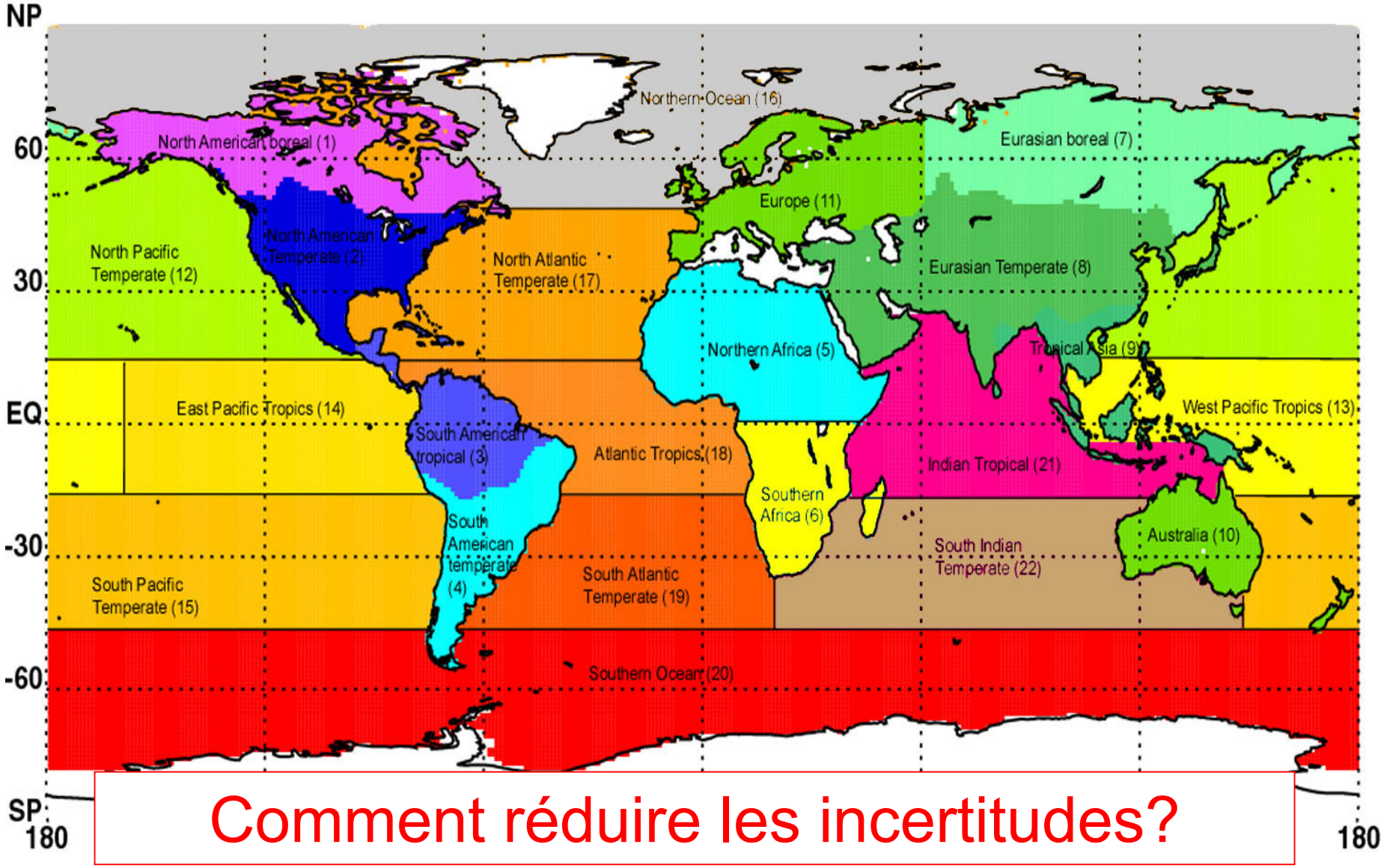
naturel

[IPCC, 2007]

# Comment estimer les flux de GES à l'échelle régionale?

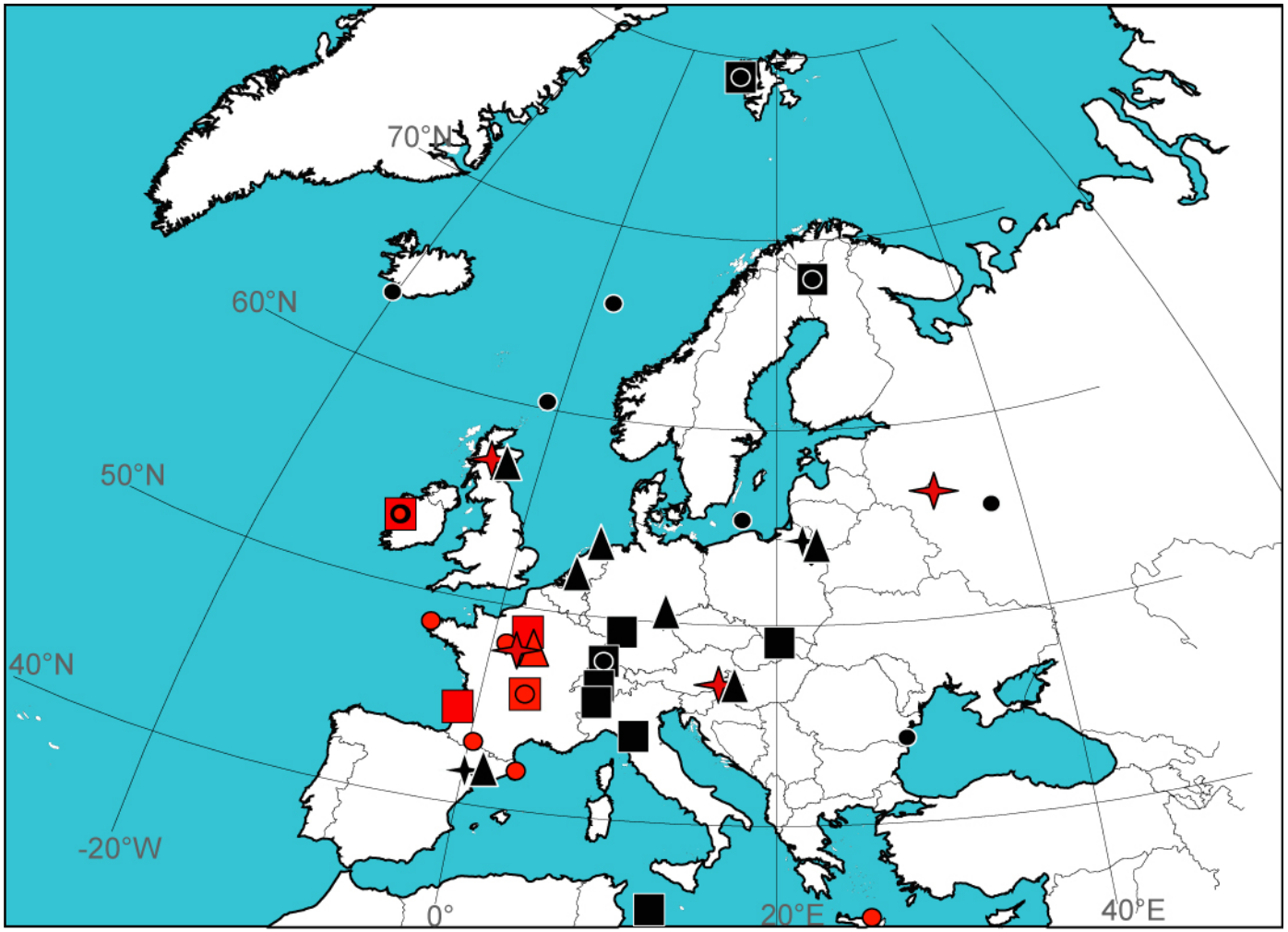


# Le réseau de mesure global




Comment réduire les incertitudes?

# Le réseau de mesure européen




Observatoires
Prélèvements hebdomadaires
Profils aéroportés
Hautes tours (>100m)

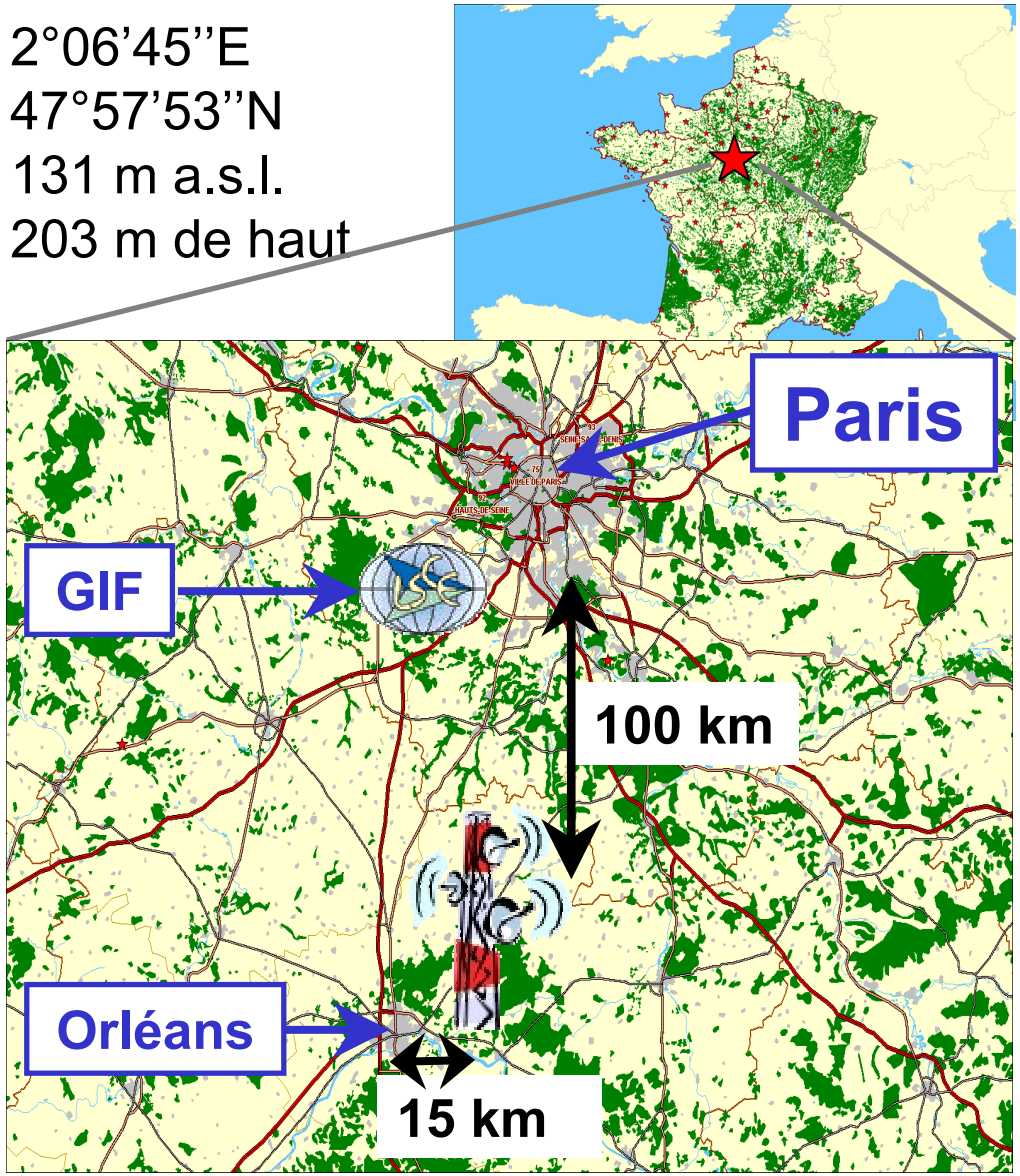
LSCE/RAMCES
GMD/NOAA, MPI-Jena, UBA, ...

# Cahier des charges de la nouvelle station

1. **Trouver une tour (>couche surface, ~200m):**
   - loin des sources de pollution,
   - en plaine (+ facile à modéliser),
   - à proximité Orléans (lien profils ORL).
2. **Développer des instruments de mesure:**
   - plusieurs niveaux,
   - continus, automatiques.
3. **Précision (World Meteorological Organization):**
   - $CO_2 \pm 0.1$ ppm,
   - $CH_4 \pm 2$ ppb,
   - $CO \pm 2$ ppb,
   - $N_2O \pm 0.1$ ppb
4. **Lien échelle calibration internationale**
5. **Transmission de données temps réel, prise de main à distance.**

# La station de Trainou (TRN)

2°06’45’’E
47°57’53’’N
131 m a.s.l.
203 m de haut

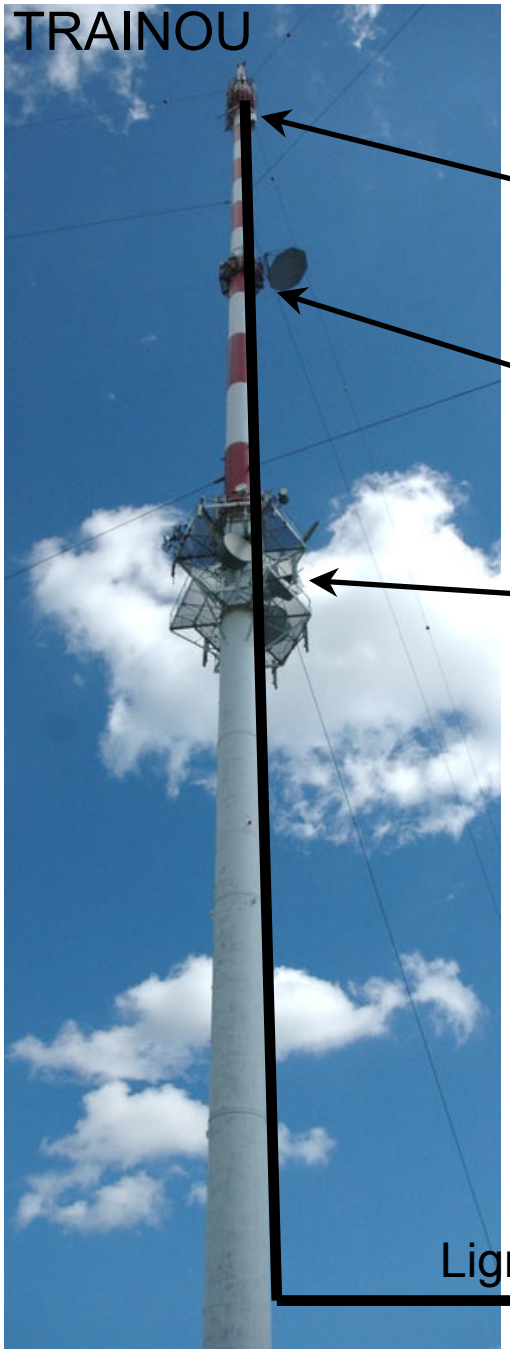



- milieu Europe ouest
- éloignée des sources

  mélange forêts (22%),
  terres agricoles (50%)

- absence relief
- proximité LSCE & Orléans (vols)

**installation retardée de 2 ans** (été 2006)

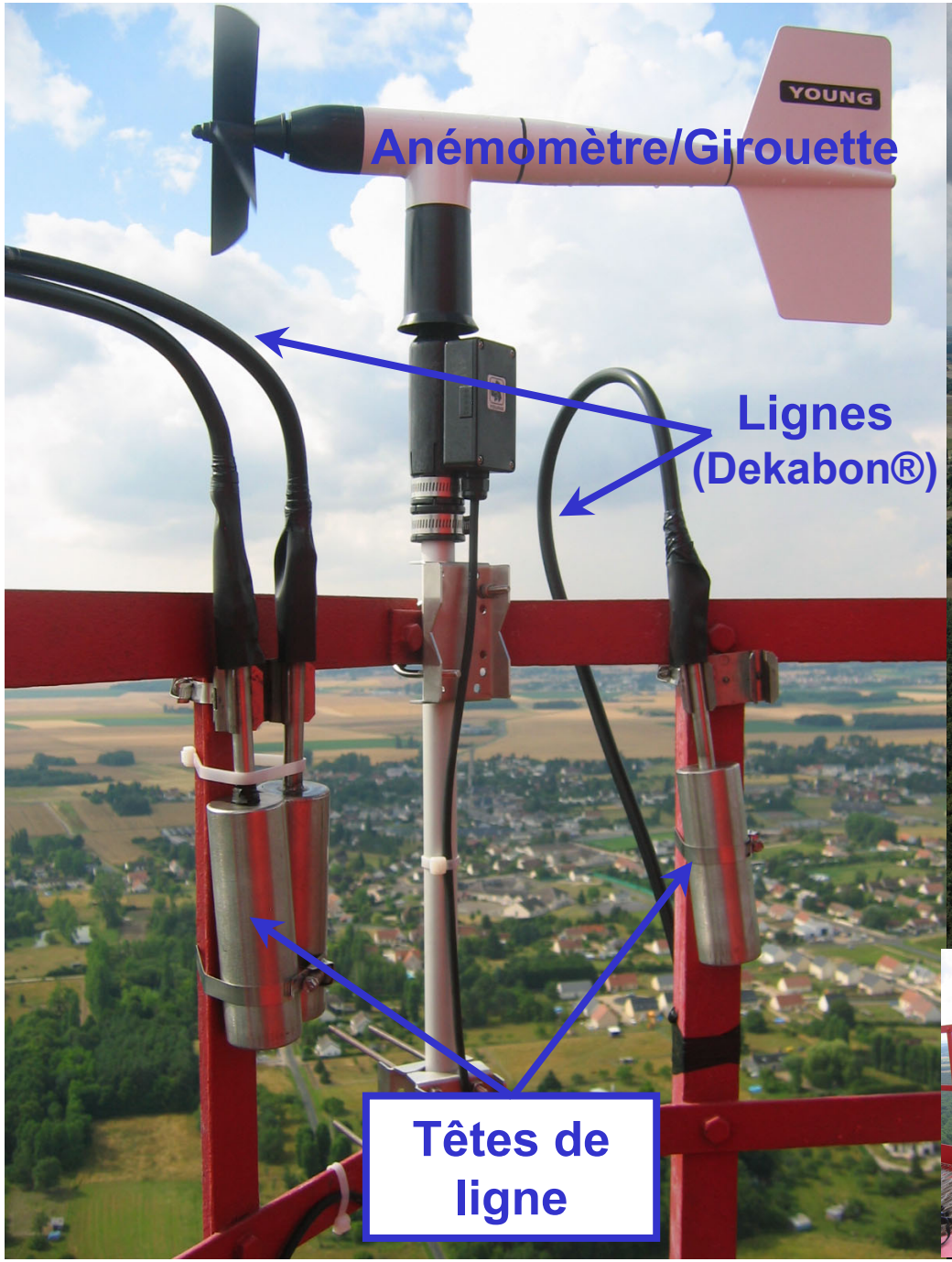


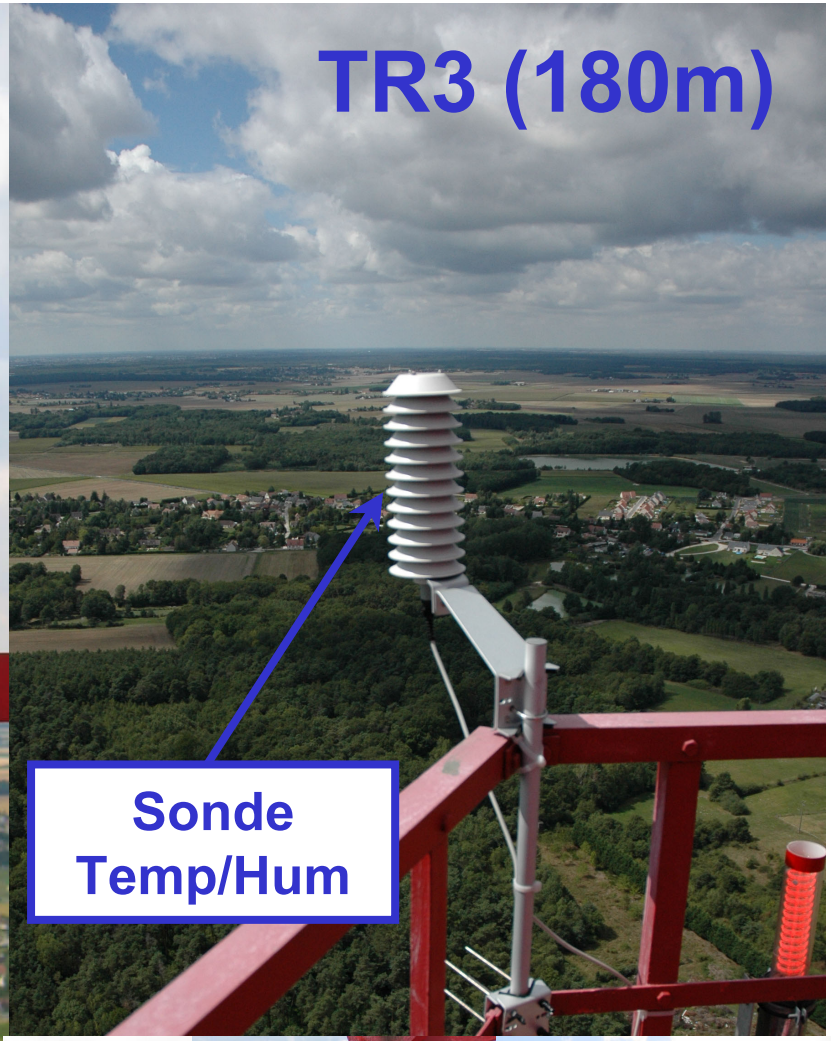

| hauteur (m) | équipements |
|---|---|
| **180** | 3 lignes (+1), T, H, vent |
| **100** | 1 ligne |
| **50** | 1 ligne |
| **0** | T, H, vent, instruments |

Lignes

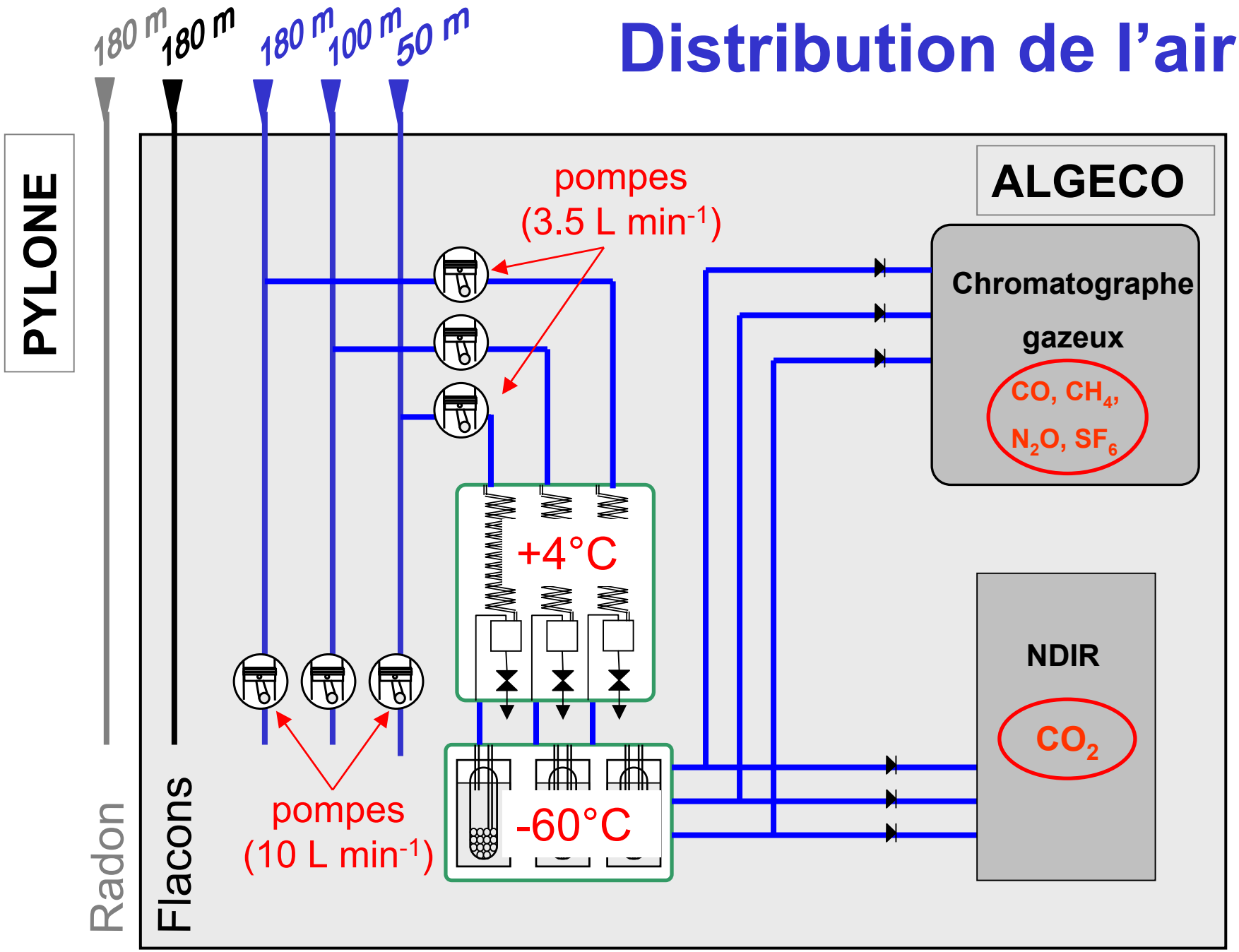
ADSL

GIF

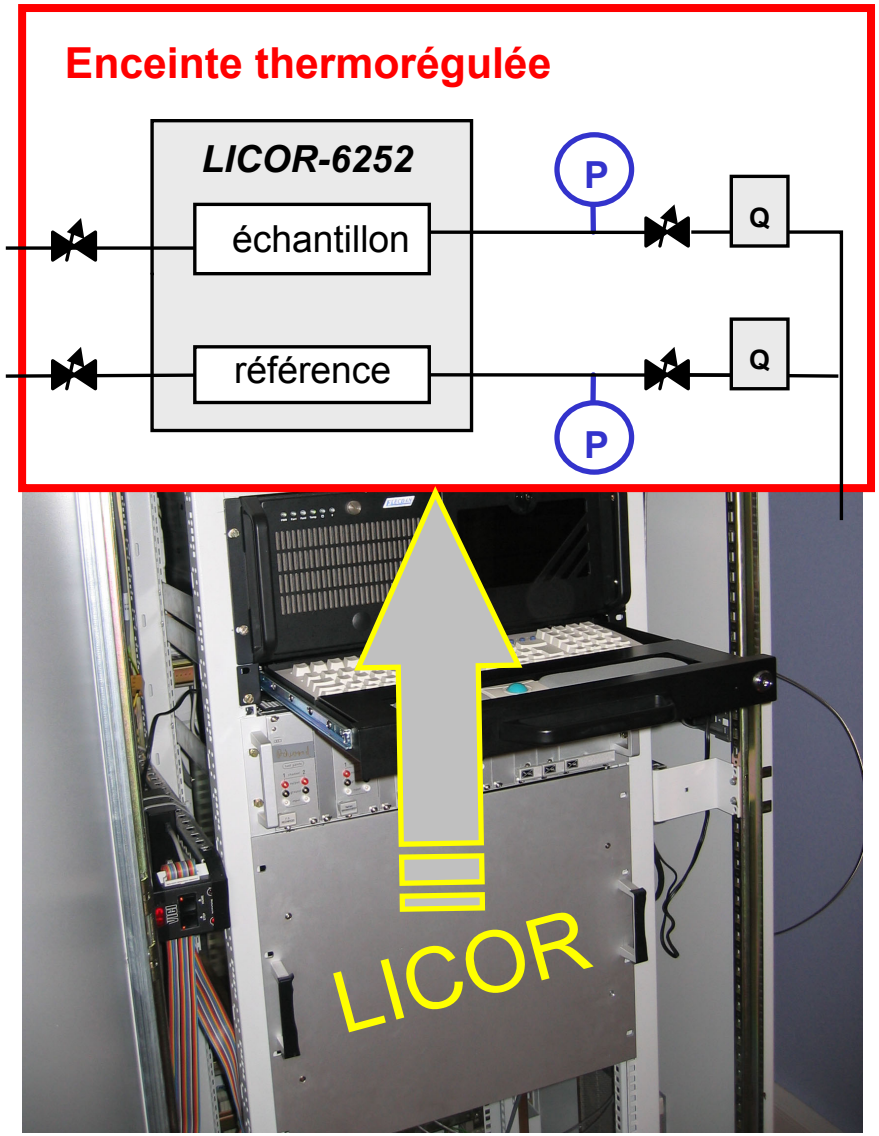

YOUNG
Anémomètre/Girouette
Lignes
(Dekabon®)
Têtes de
ligne


TR3 (180m)
Sonde
Temp/Hum

# Distribution de l'air



# Analyse du $CO_2$: le CARIBOU

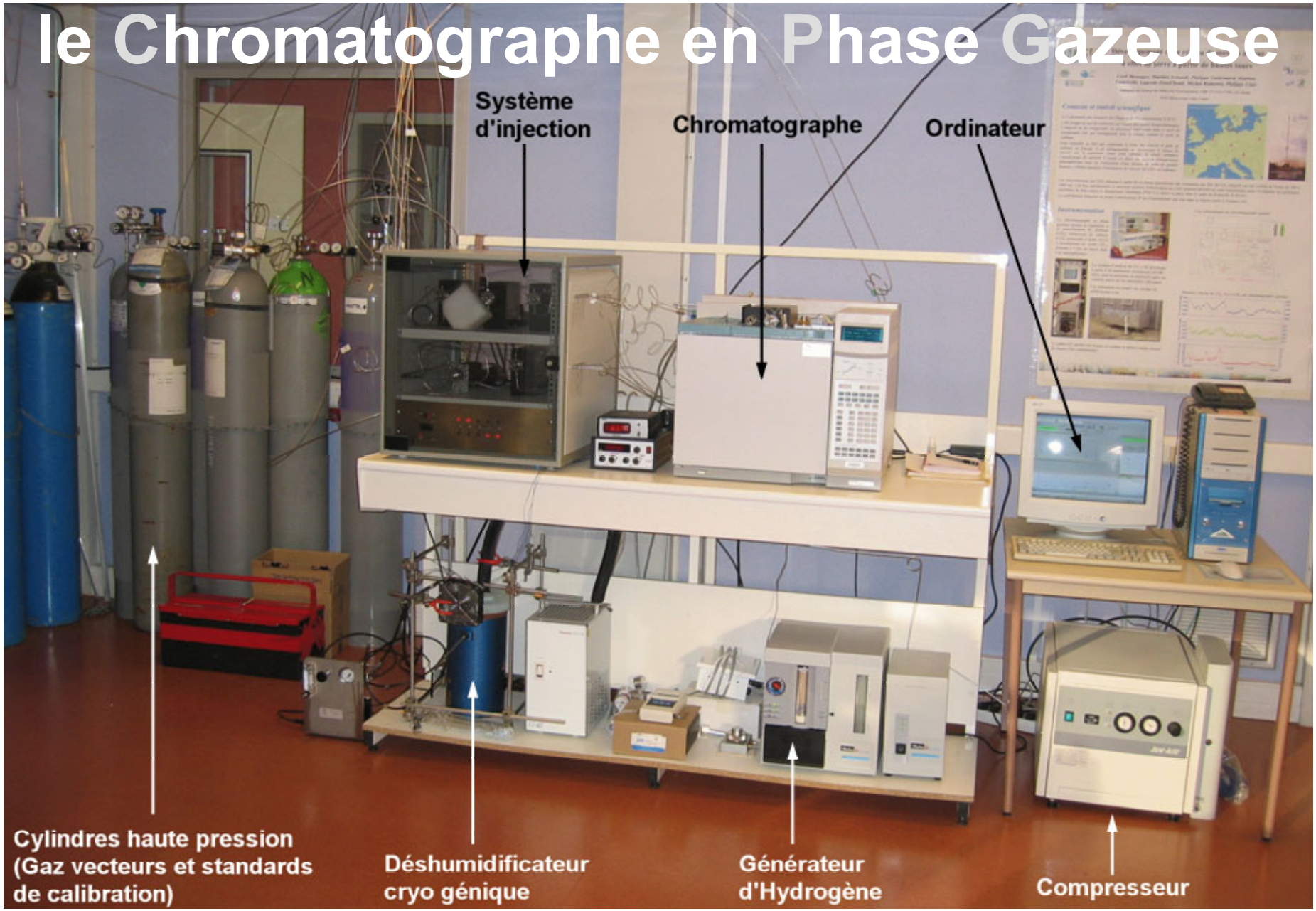



- Développement en collaboration avec le DAPNIA/SIS (CEA/Saclay)
- Gestion pompage 3 niveaux
- Base de LICOR® 6252 (NDIR)
- Précision améliorée d'un facteur 10 par régulation T et P:

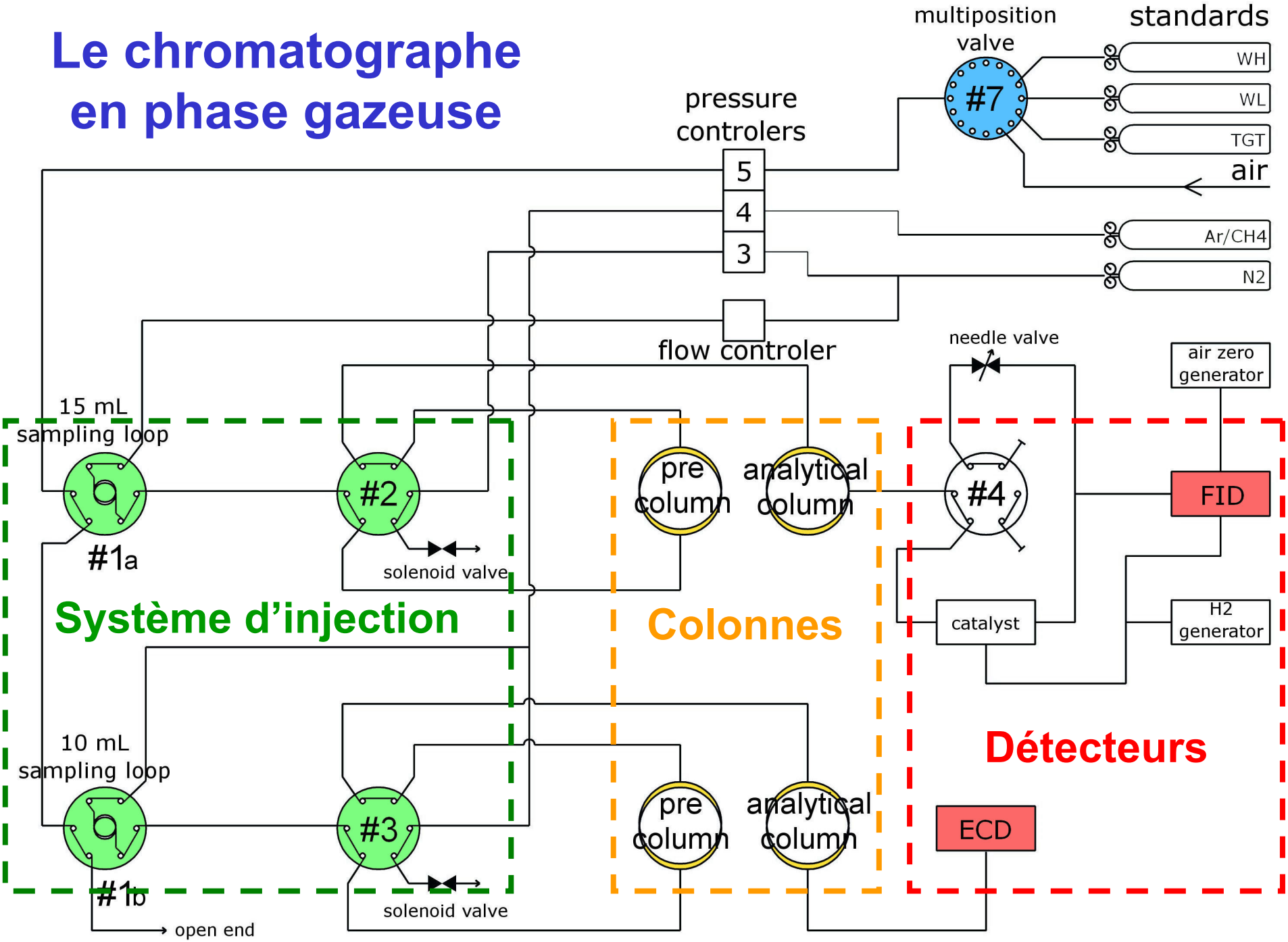
  ± 0.05°C, ± 0.03 hPa

- Reproductibilité: ± 0.05 ppm
- Calibration automatique
- Contrôle distant & transfert de données temps-réel

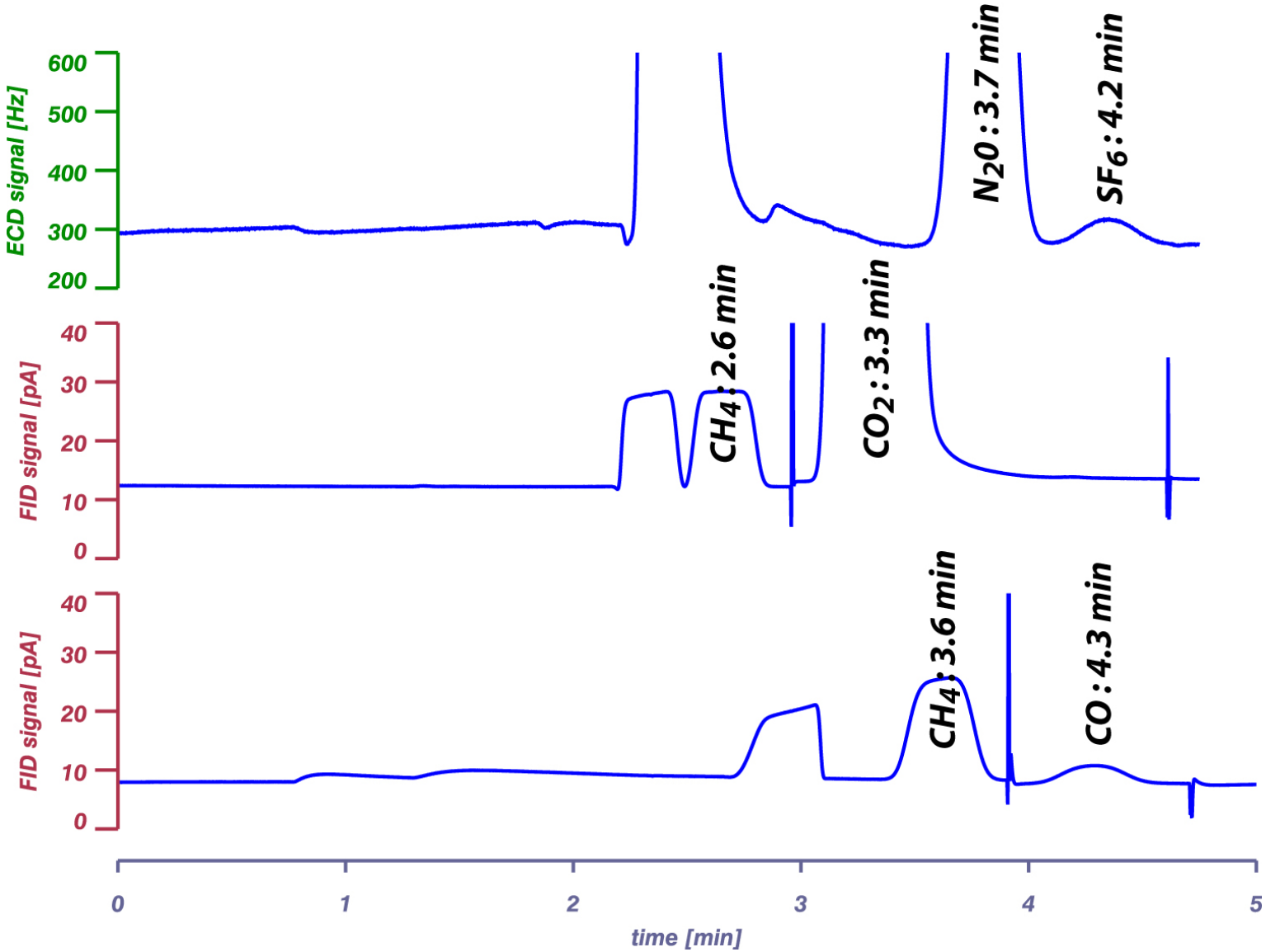
# Analyse du $CO_2$ (ou CO), $CH_4$, $N_2O$ & $SF_6$: le Chromatographe en Phase Gazeuse



# Le chromatographe en phase gazeuse



# Chromatogrammes typiques



# Précision du CPG: de très bons résultats

| Reproductibilités sur 24h | | |
|---|---|---|
| Espèce | Recommandations WMO (*) | Mon système |
| $CO_2$ (ppm) | 0.1 | 0.06 |
| $CH_4$ (ppb) | 2.0 | 0.7 |
| CO (ppb) | 2.0 | 1.4 |
| $N_2O$ (ppb) | 0.1 | 0.2 |
| $SF_6$ (ppt) | N/A | 0.05 |

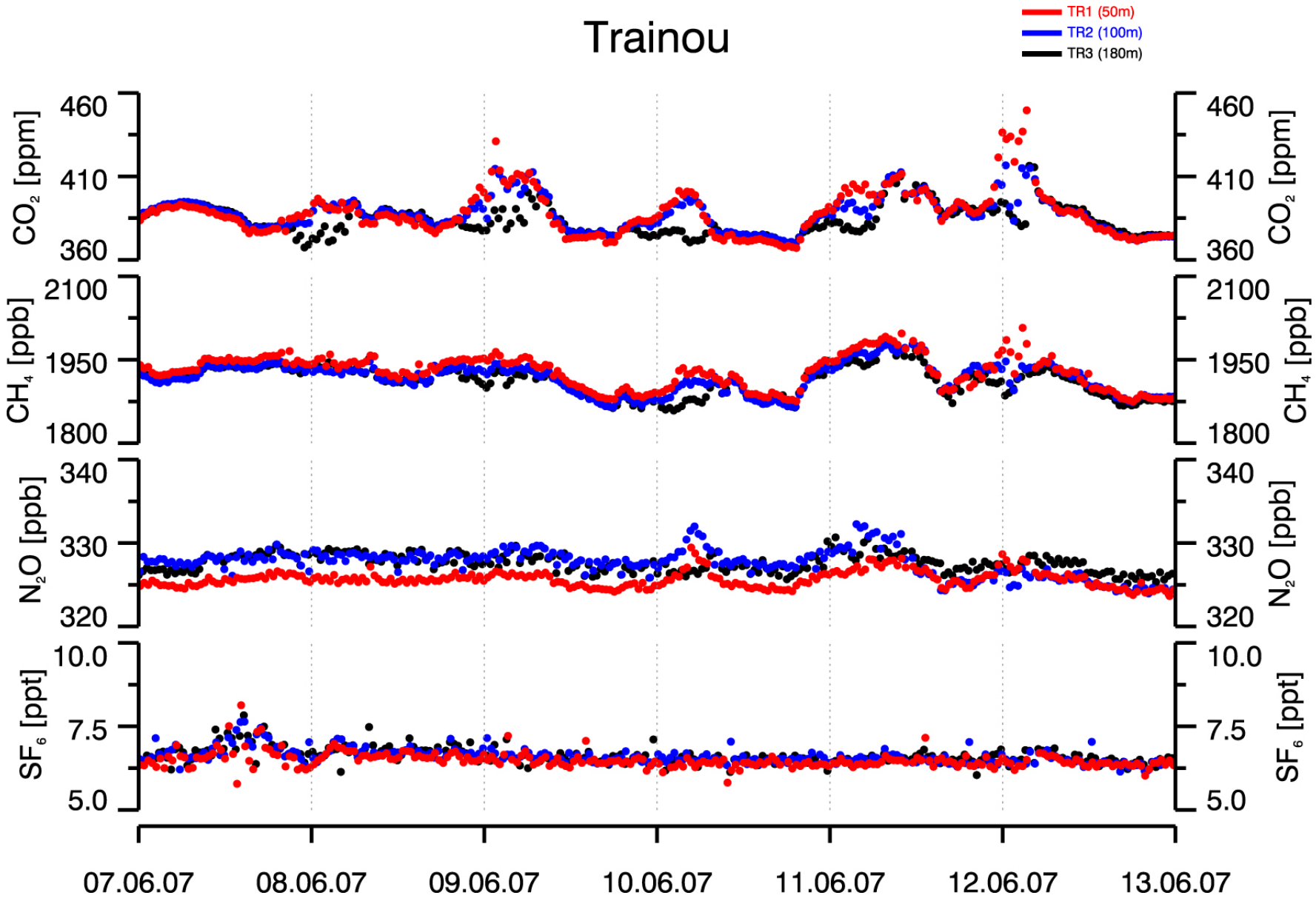
(*) recommandations de comparaison inter-laboratoires
(**WMO** = **W**orld **M**eteorological **O**rganization)

# Comment conserver cette précision sur le long terme?

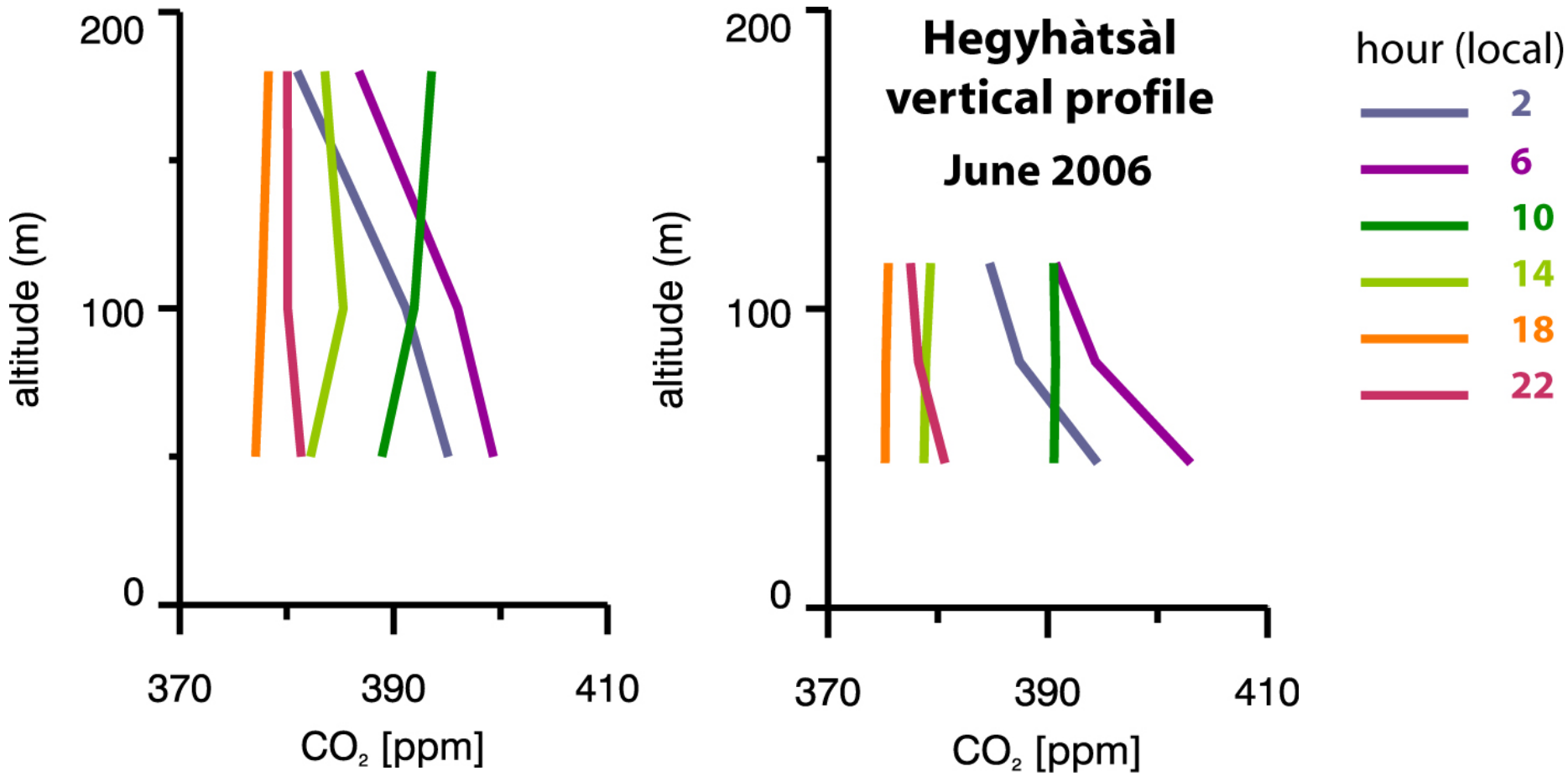
- répétabilité injection
- stratégie calibration, lien échelle NOAA
  (**N**ational **O**ceanic & **A**tmospheric **A**dministration)
- intégration des pics
- régulation température (climatisation)
- pureté gaz (vecteurs, détecteurs),
  piégeage eau
- fuites

☞ Rédaction protocole maintenance

# Station de Trainou: les premiers résultats



# Trainou vertical gradients
(07.06.2007-13.06.2007)



# Instrumentation de la tour de Trainou: bilan

- **Installation:**
  - ✓Cahier des charges rempli
  - ✓Lignes, capteurs et instruments (été 2006)
  - ✓Suivi continu à 3 niveaux opérationnel depuis février 2007
- **Développement instrumental**:
  - ✓Précision atteinte
  - ✓Prise de main à distance, NRT
- **Futur**:
  - ✓Analyse du CO par CPG
  - ✓Analyse du $^{14}CO_2$
  - ✓Installation mesure $^{222}Rn$

# Estimation des flux de GES à partir des mesures atmosphériques:

1. à Gif-sur-Yvette (IDF)

2. à Mace Head (Irlande)

# Analyse des données de Gif-sur-Yvette (2002-2006)

- Cycles saisonniers
- Cycles diurnes
- Concentrations / direction vent
- Estimation des flux

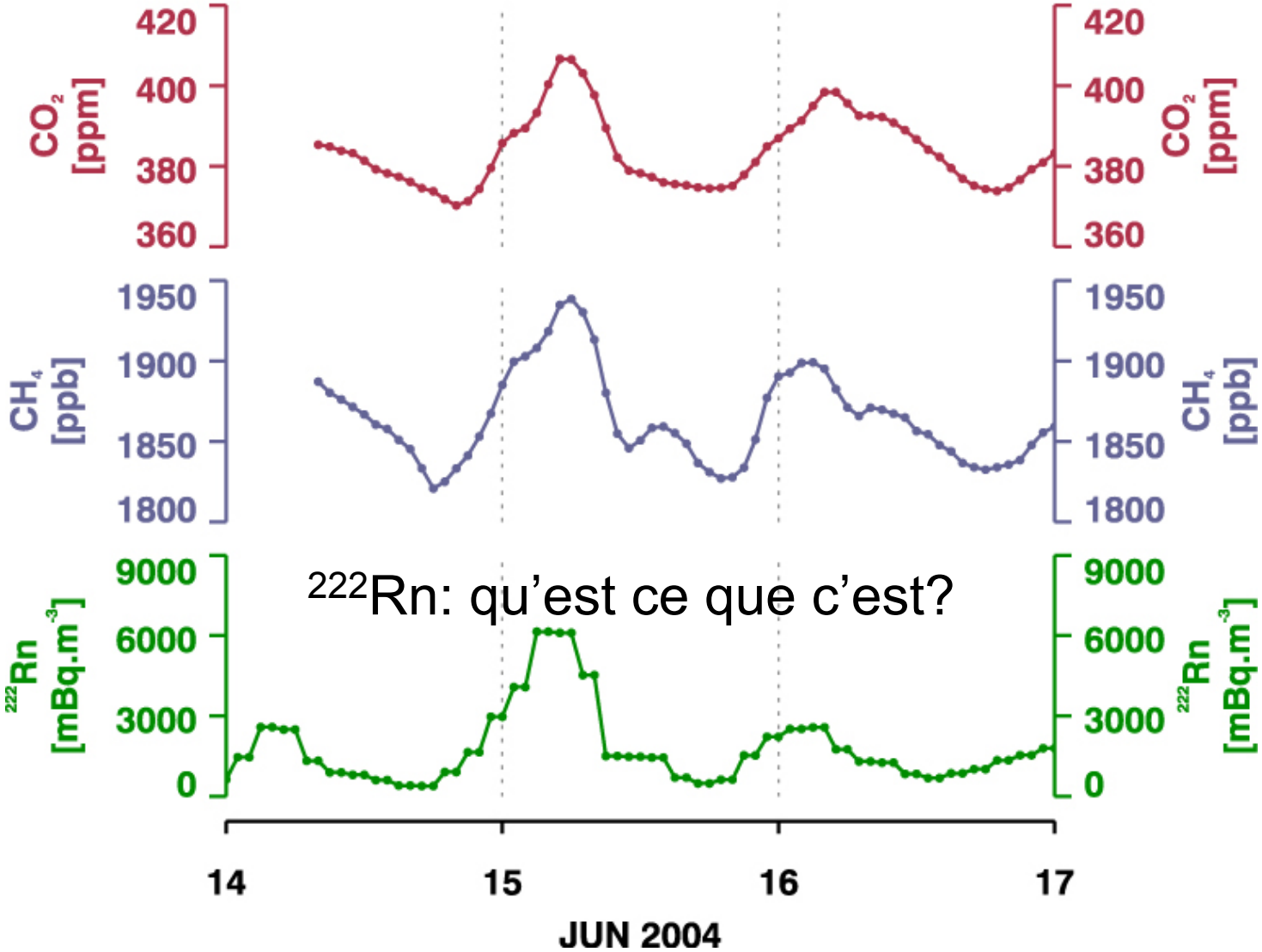
  de $CO_2$, $CH_4$, $N_2O$, $SF_6$

  Méthode Radon

  Méthode bilan de la couche limite

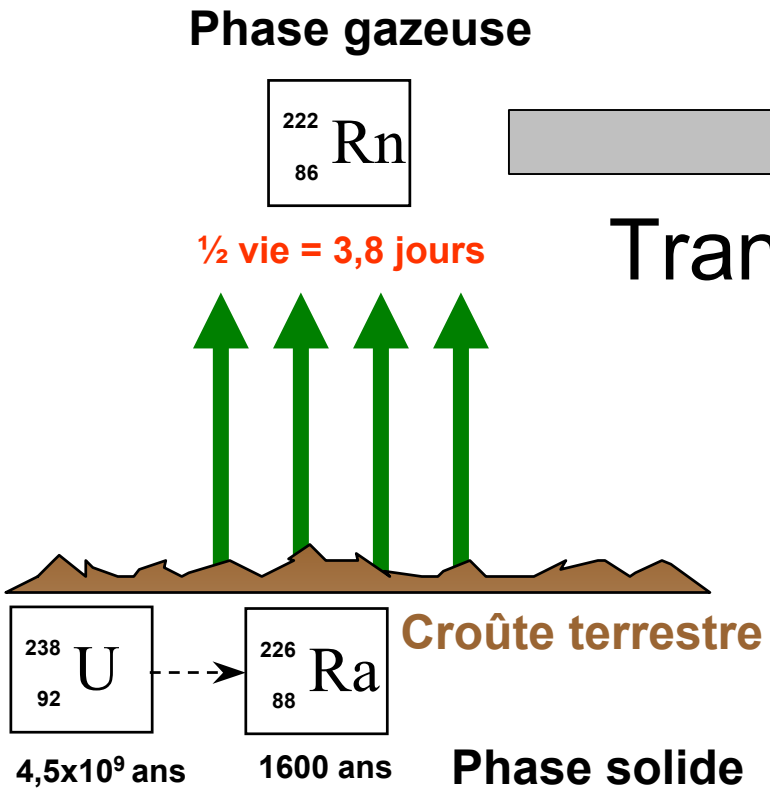
# Gaz traces: de fortes corrélations

## variabilité = flux + transport



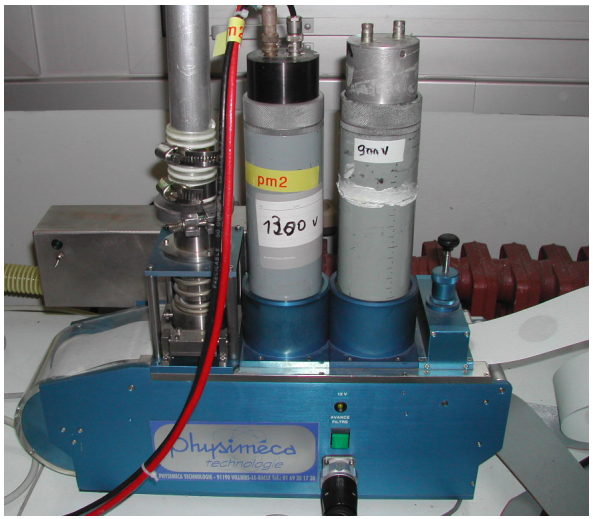

$^{222}Rn$: qu'est ce que c'est?

# Le Radon 222:
## un traceur de masses d'air continentales

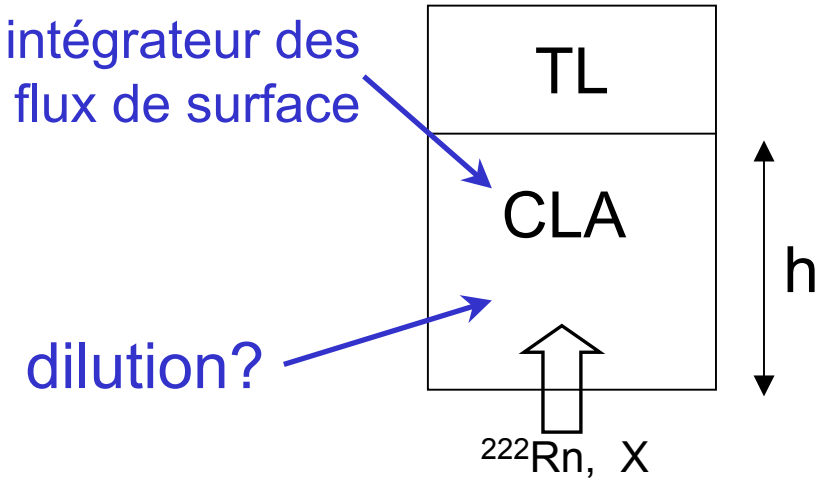



Transport

**Site de mesure**
(MHD, GIF, …)



# Estimation des flux: la méthode radon




X = $CO_2$, $CH_4$, …

Accumulation du Radon (1):

$$\frac{\Delta C_{^{222}Rn}}{\Delta t} = \frac{\overline{j_{^{222}Rn}}}{\overline{h}} - \lambda_{^{222}Rn} \cdot C_{^{222}Rn}$$

Accumulation du gaz X (2):

$$\frac{\Delta C_x}{\Delta t} = \frac{\overline{j_x}}{\overline{h}}$$

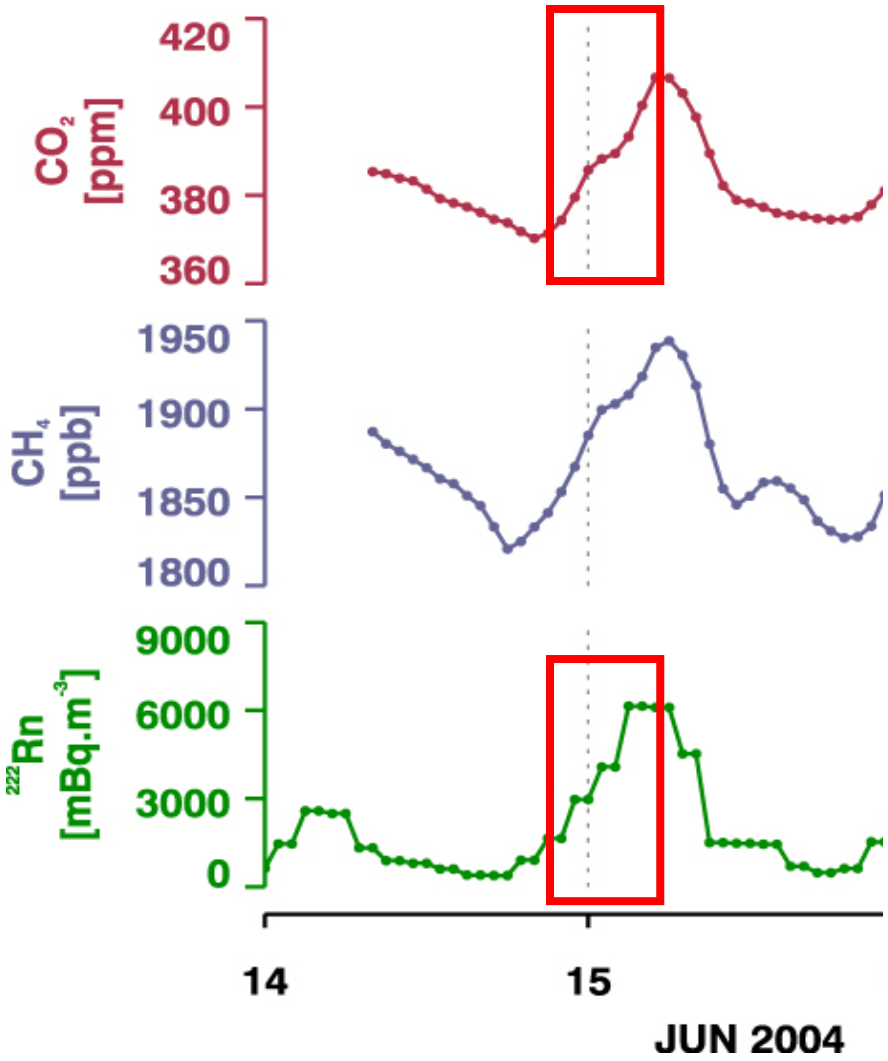
(2)/(1): $$\overline{j_x} = \overline{j_{^{222}Rn}} \frac{\Delta C_x}{\Delta C_{^{222}Rn^*}}$$

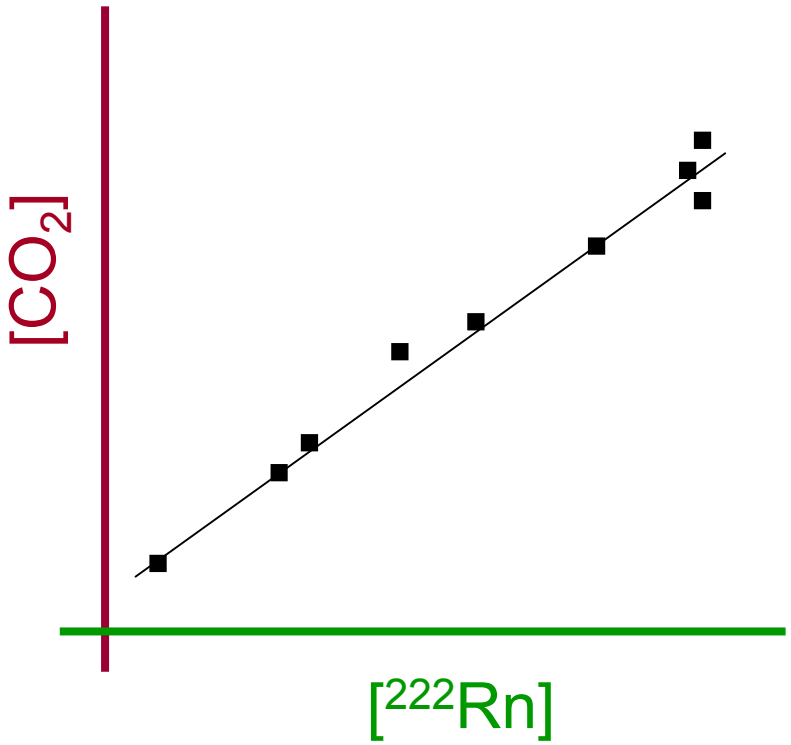
±20%

±10%

**Hypothèses:**

- émissions radon homogènes (temps, espace) et connues
- sources radon et x colocalisées



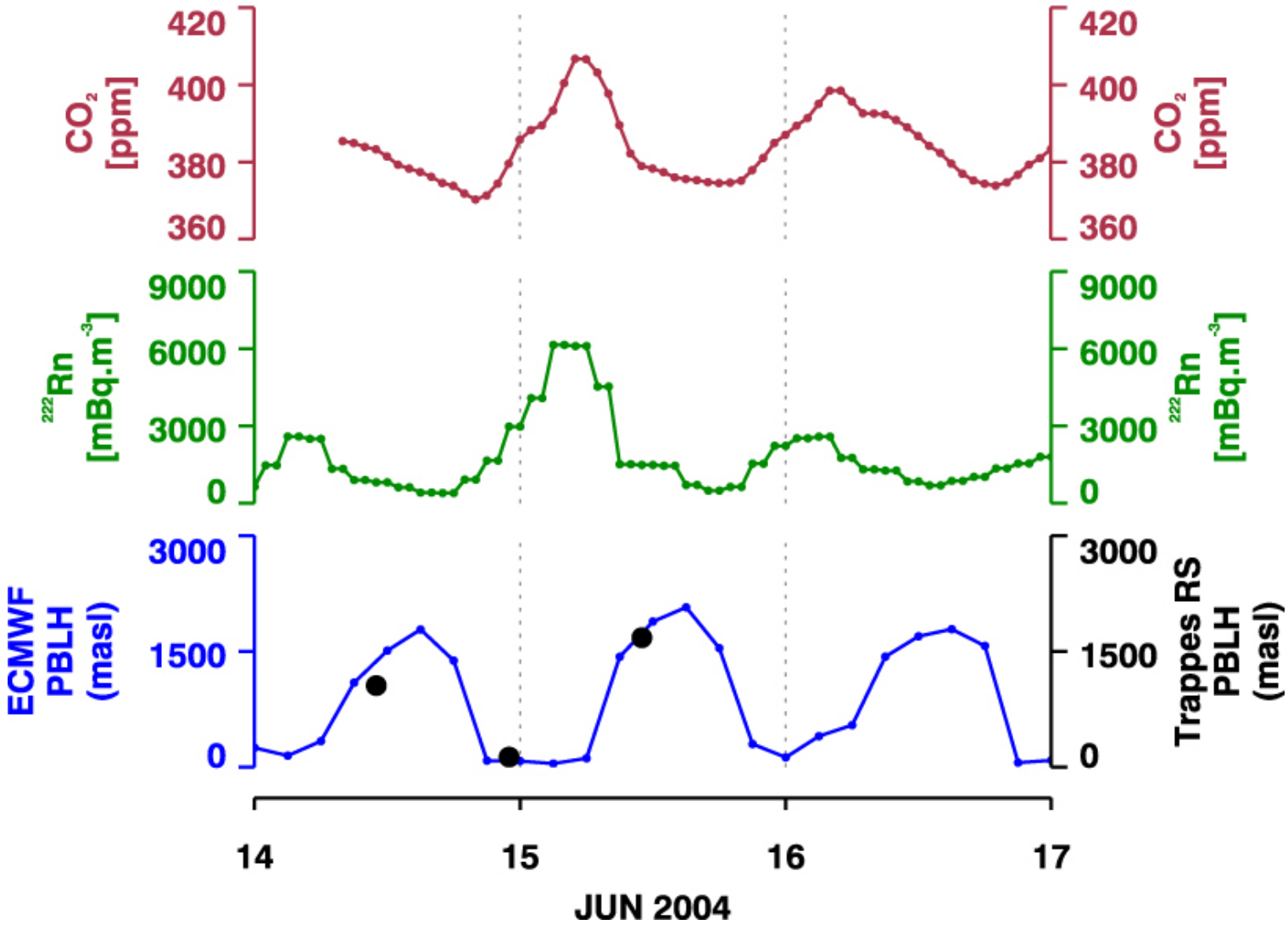




$$\overline{j_{CO_2}} = \overline{j_{^{222}Rn}} \frac{\Delta C_{CO_2}}{\Delta C_{^{222}Rn^*}}$$

Flux($CO_2$) = 80 g C $m^{-2}$ $jour^{-1}$

Flux($CH_4$) = 0.3 g $CH_4$ $m^{-2}$ $jour^{-1}$

# Une autre estimation de la dilution: la hauteur de couche limite



# Estimation des flux: méthode du bilan de la couche limite (nocturne)

**Hypothèses:**

- émissions homogènes
- hauteur de couche limite constante en moyenne
- air bien mélangé dans CLA et pas d'échange avec TL

$$F_X = h \frac{\Delta C_X}{\Delta t}$$

-30% /RS

?

[Gibert et al., 2007]

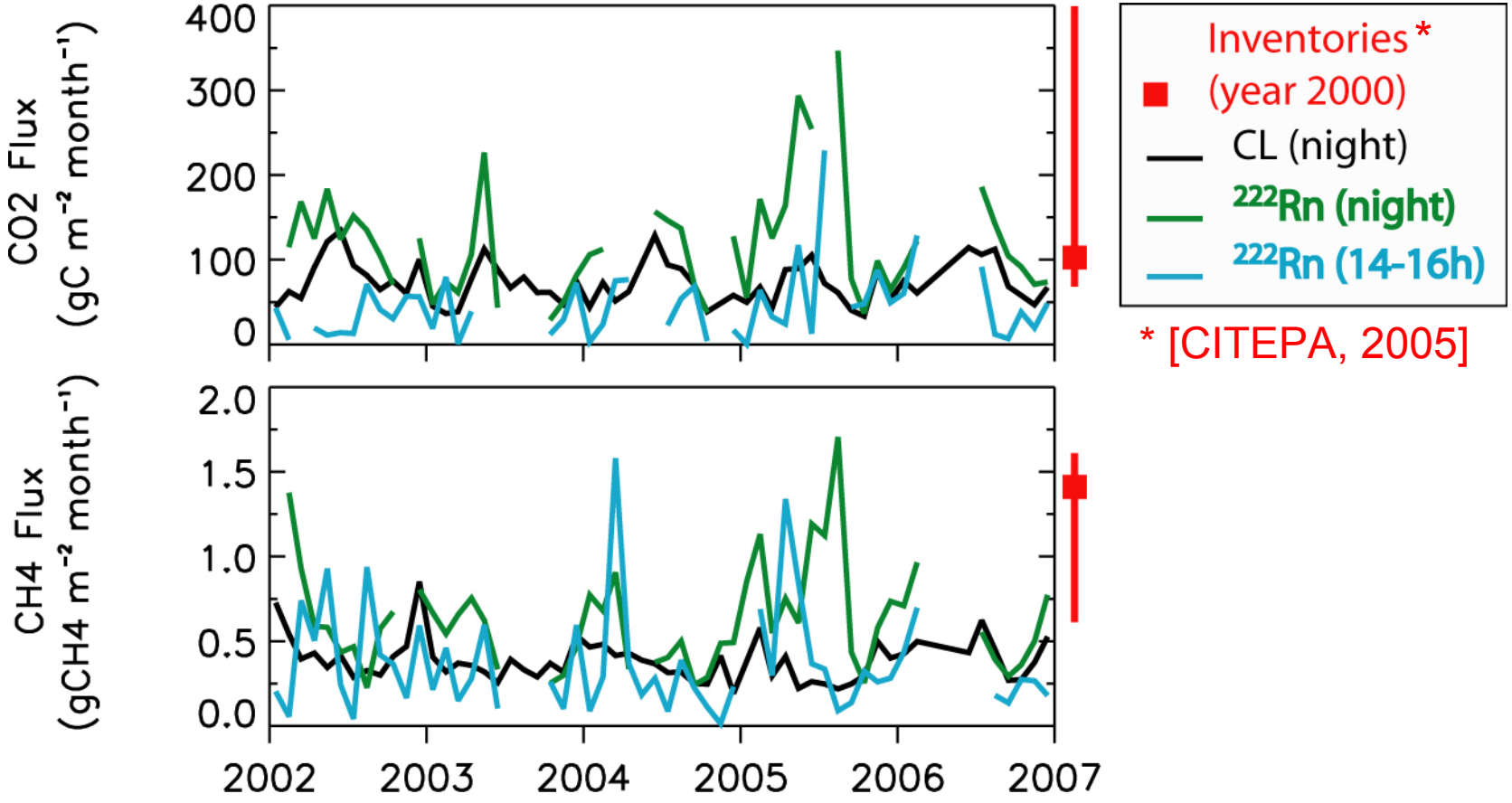
Mesures: incertitudes diminuées

Flux($^{222}Rn$) = 46 Bq $m^{-2}$ $hr^{-1}$

Flux($CO_2$) = 50 g C $m^{-2}$ $jour^{-1}$

Flux($CH_4$) = 0.2 g $CH_4$ $m^{-2}$ $jour^{-1}$

# Estimation des flux en région parisienne: analyse des données de Gif-sur-Yvette



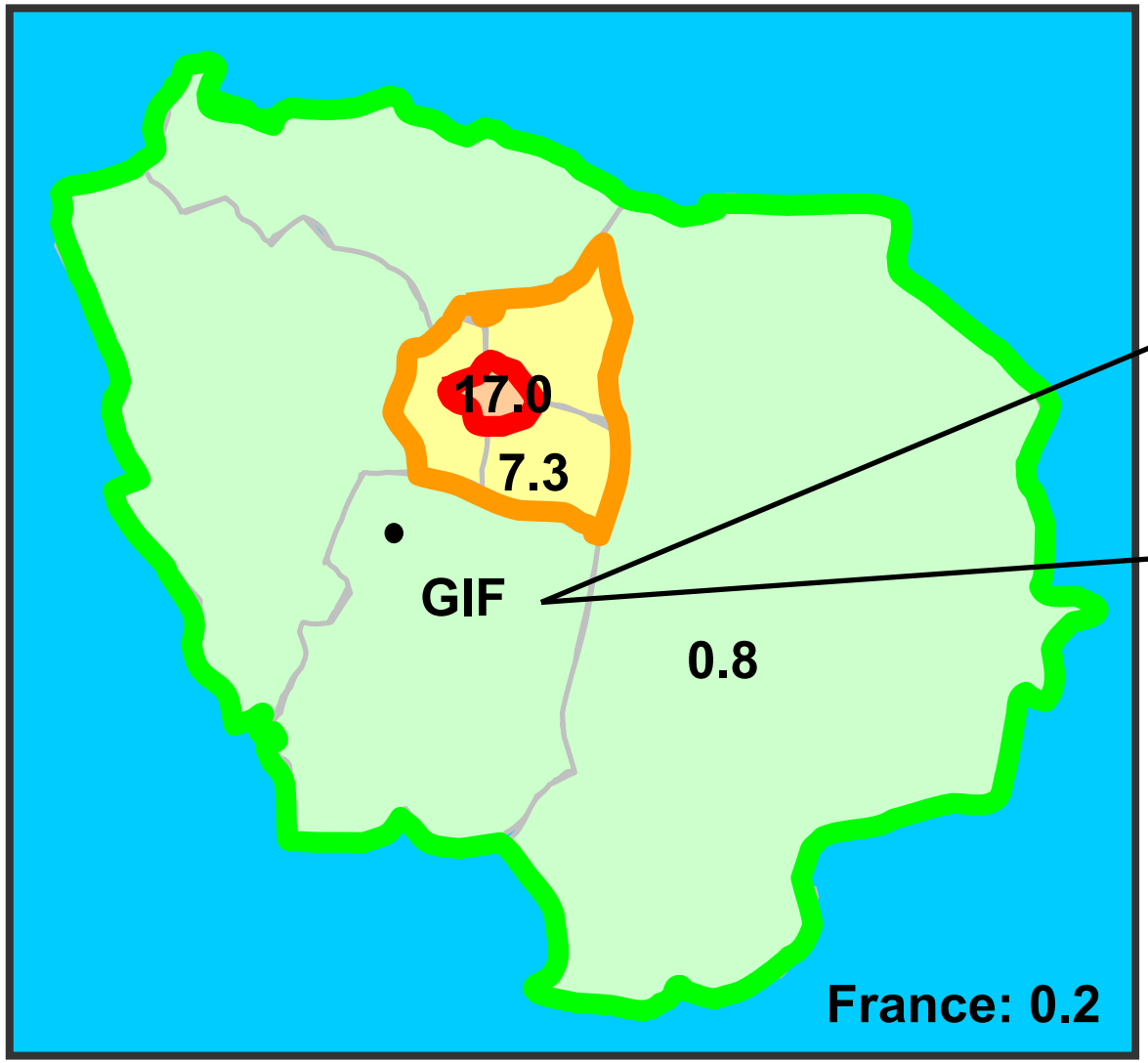

* [CITEPA, 2005]

Difficulté: relier ces estimations à une zone d'influence précise

# Flux de $CO_2$ en région parisienne

(inventaires* et approche atmosphérique)

en $10^3$ g C $m^{-2}$ $yr^{-1}$




<u>Approche atmospherique</u>

(periode 2002-2006)

- méthode CLN

**0.9 ± 0.1**

- méthode radon

nuit: **1.3 ± 0.2**

après-midi: **0.5 ± 0.1**

**Paris**

**Petite couronne**

**Grande couronne**

*** année de référence 2000 [CITEPA, 2005]**

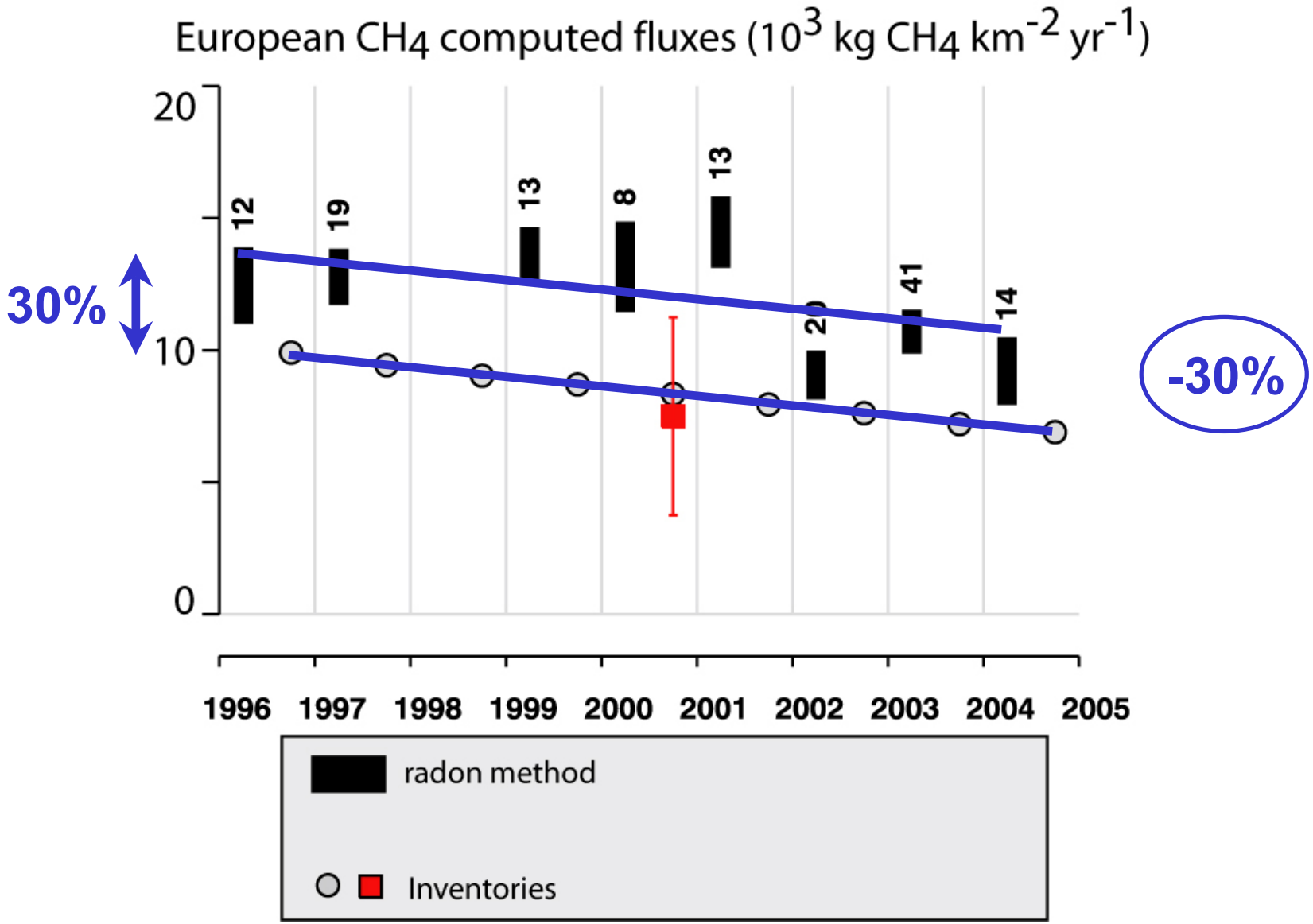
# Analyse des données de Mace Head (1996-2005)

Mace Head

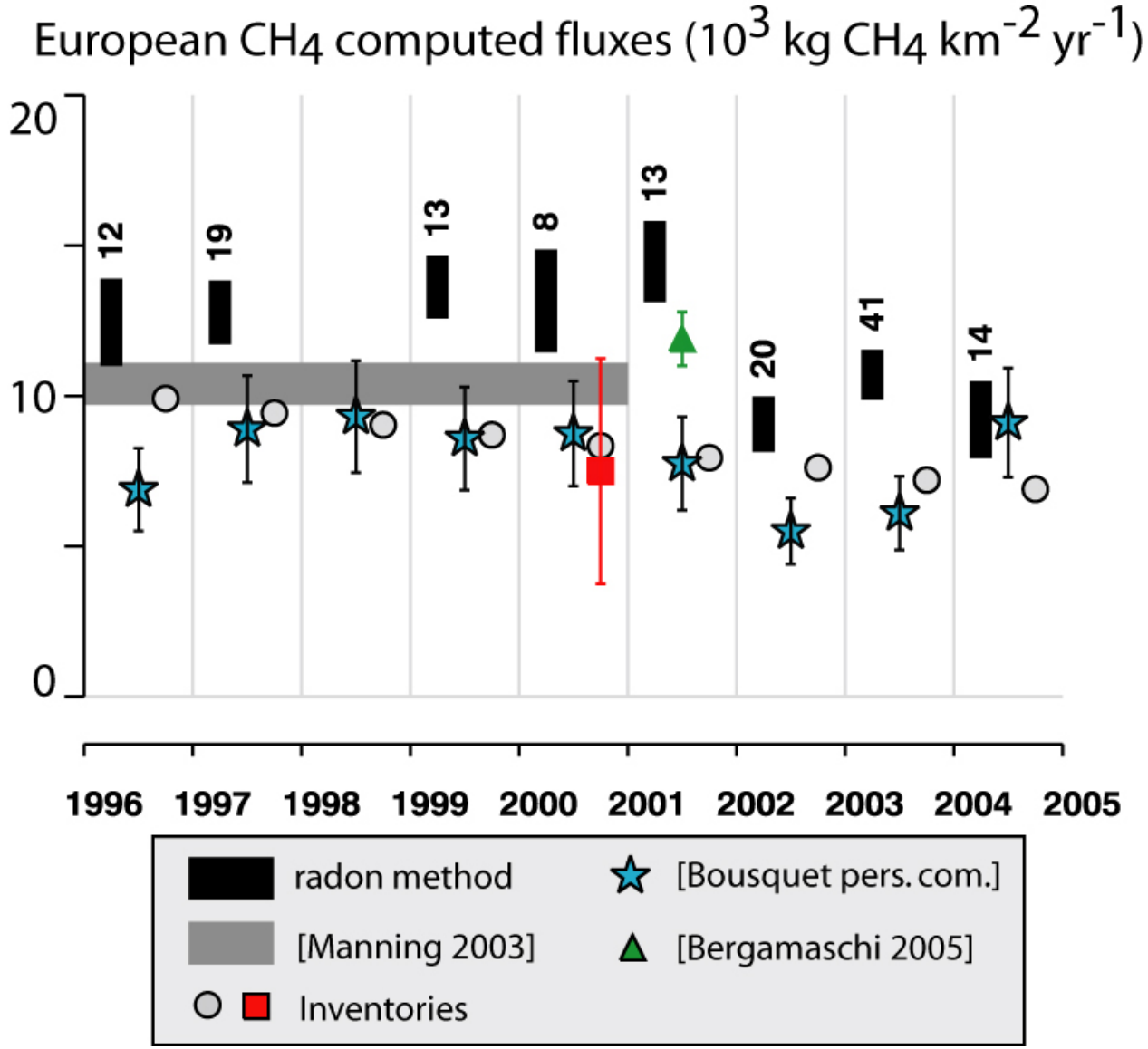
- Sélection de données OCE (30%), EUR (7%) et IRL+UK (6%).
- Estimation des flux (méth. Rn) $CO_2$, $CH_4$, CO, $N_2O$
- Séparation du $CO_2$ fossile

TGlobe 5.0.4 Copyright Graham Knight 1998-2005

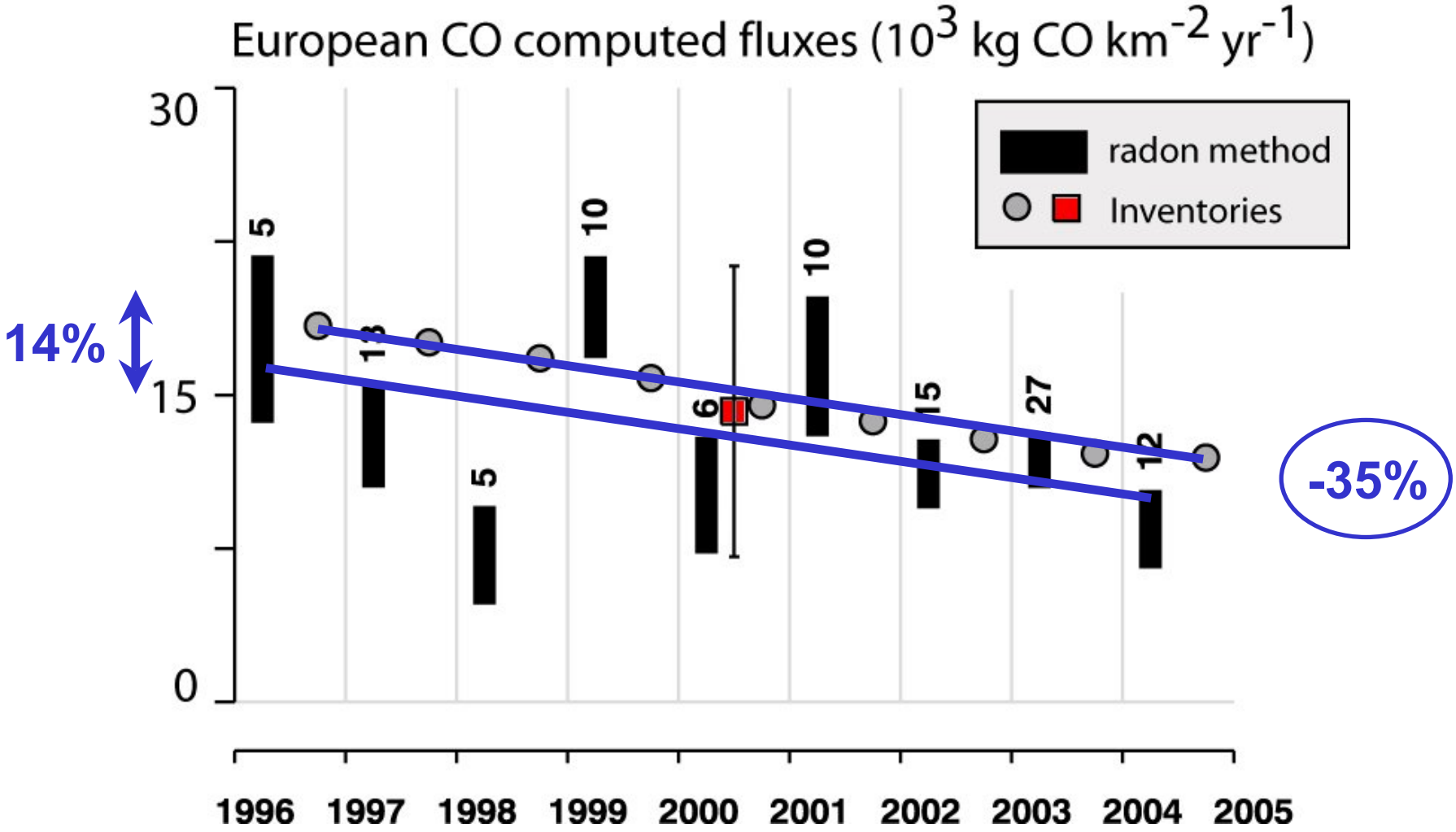
# Flux de $CH_4$ européens



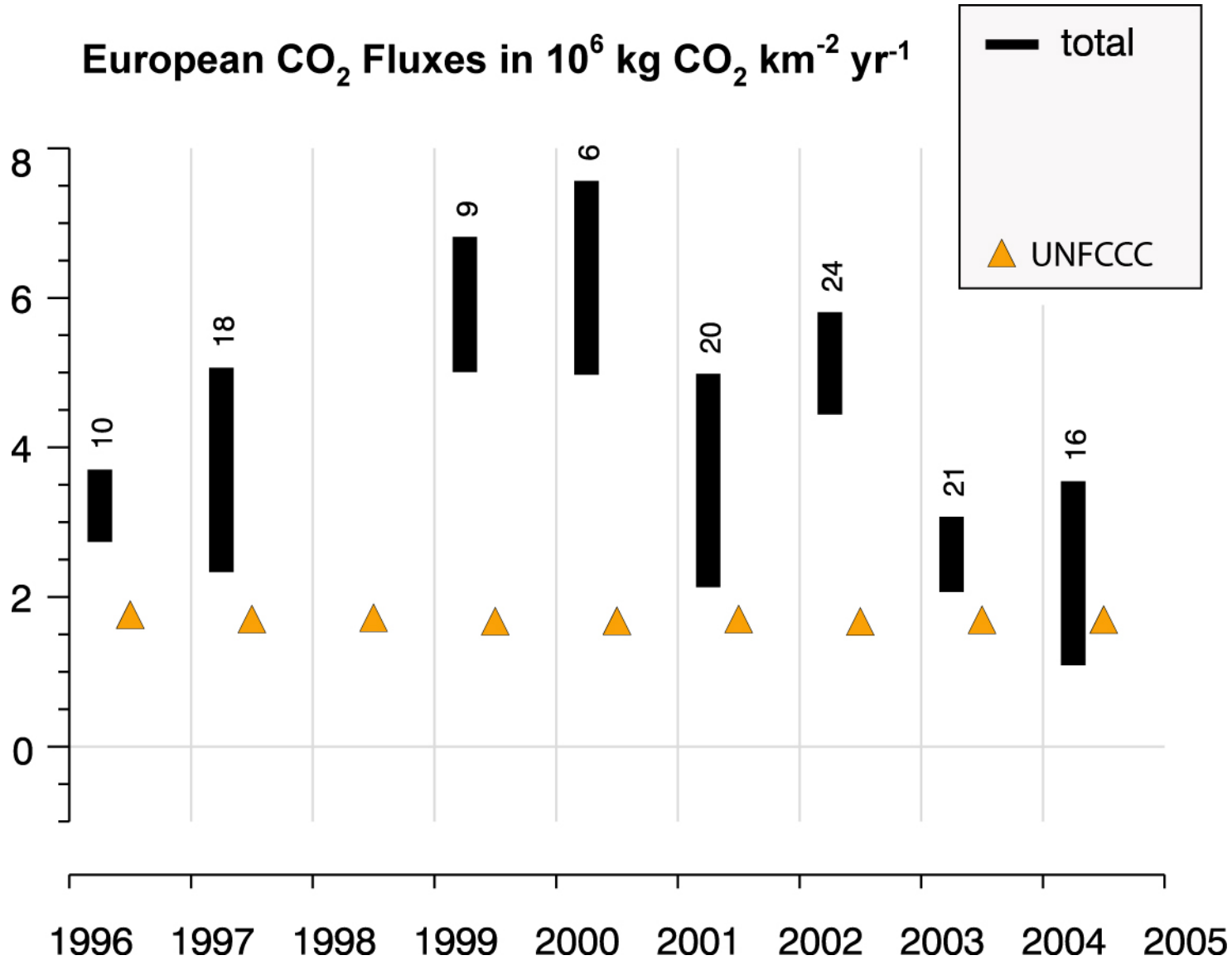
# Flux de $CH_4$ européens



# Flux de CO européens



# Flux de $CO_2$ européens




Comment séparer les différentes contributions du flux total?

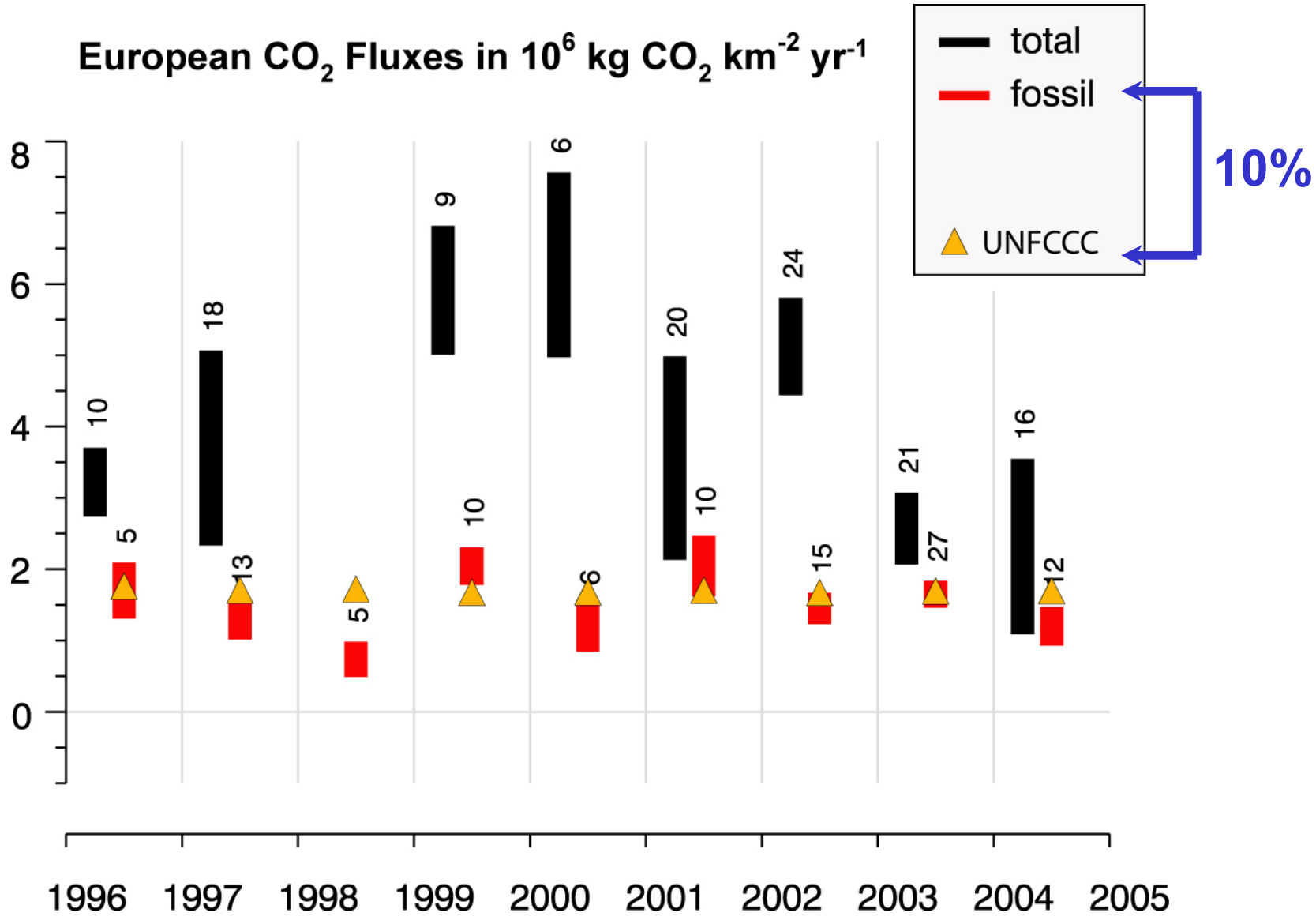
# Estimation des flux européens de $CO_2$ "fossile"

Hypothèses:

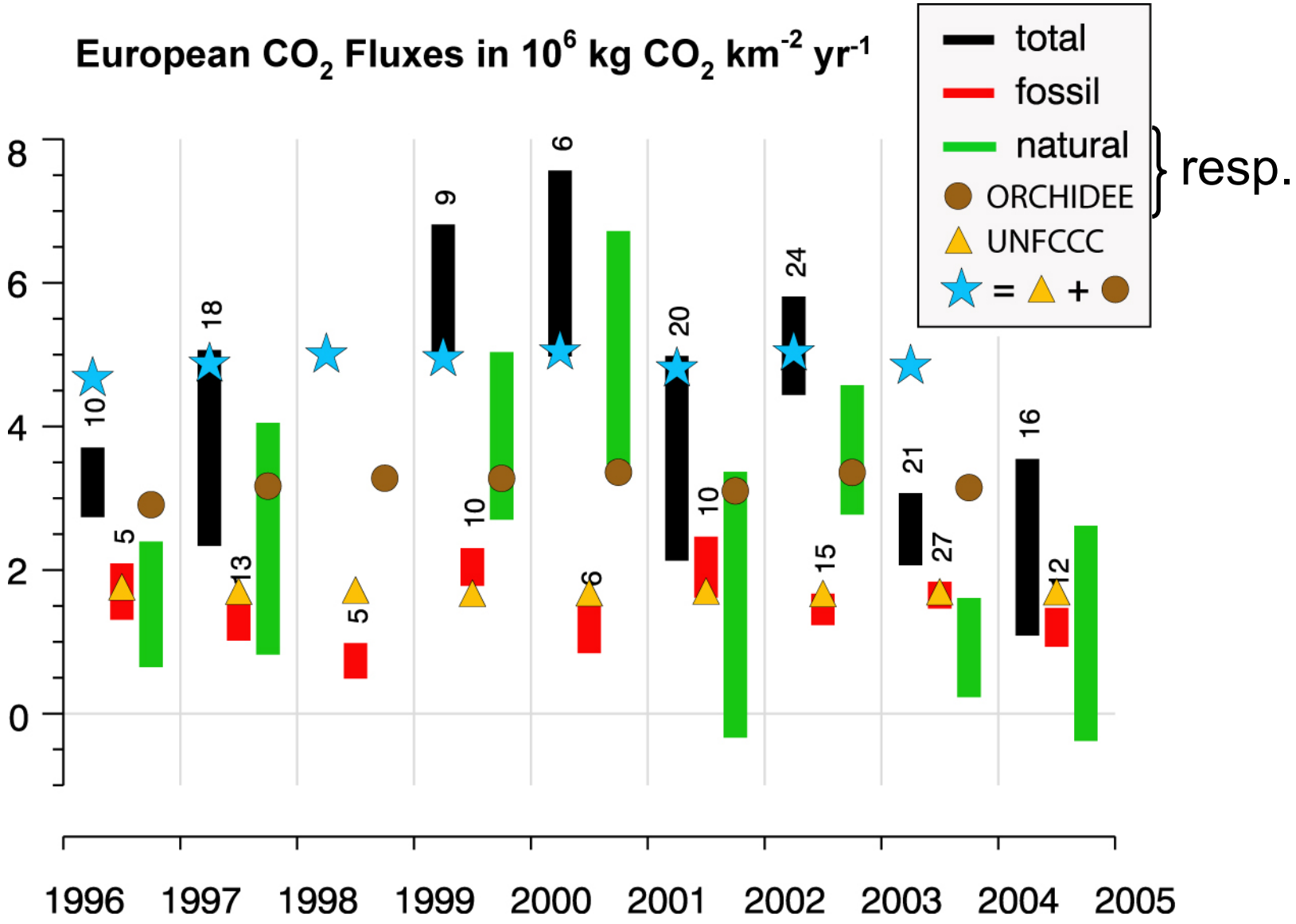
- $CO_2$(total) = $CO_2$(fossile) + $CO_2$(respiration)
- Sources CO (combustions) et $CO_2$(fossile) fortement liées

$$F_{Fossile}(CO_2) = \frac{F\ (CO)}{R_{CO/CO_2}}$$

# Flux de $CO_2$ européens



# Flux de $CO_2$ européens



- **Instrumentation de la station de Trainou**
  - ✓**TRN**: installation capteurs, instruments & bâtiment (été 2006), mesures continues à 3 niveaux (fév. 2007)
- **Estimation des flux régionaux**
  - ✓dév. méthodologies (Radon, NBL)
- **Analyse des données de GIF**
  - ✓climatologie (cycles, tendances)
  - ✓estimation des flux GES en région parisienne
- **Analyse des données de MHD**
  - ✓méthode sélection des données
  - ✓suivi tendances émissions possible: -30% pour $CH_4$ et -35% pour CO européennes
  - ✓$R_{CO/CO2}$ global permet séparation des émissions $CO_2$ fossile.

# Améliorations des estimations de flux, perspectives:

- Modèle transport atmosphérique -> zone influence
- Cartes émissions Radon Européenne à haute résolution (hebdo, 25km) [Szegvary et al., 2007]
- Mesure de flux autour de GIF (validation cartes, campagne cet été)

- Mesure hauteur CL, gradient vertical TRN

- Appliquer la méthodologie développée à TRN