# Variations climatiques et variations du cycle hydrologique aux basses latitudes au cours du Quaternaire : une approche combinant modèle et données

Thomas Extier

▶ **To cite this version:**

Thomas Extier. Variations climatiques et variations du cycle hydrologique aux basses latitudes au cours du Quaternaire : une approche combinant modèle et données. Sciences de la Terre. Université Paris Saclay (COmUE), 2019. Français. NNT : 2019SACLV056 . tel-02986449

**HAL Id: tel-02986449**
**https://theses.hal.science/tel-02986449**

Submitted on 3 Nov 2020

**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.

université PARIS-SACLAY

UNIVERSITÉ DE VERSAILLES ST-QUENTIN-EN-YVELINES

université PARIS-SACLAY

NNT : 2019SACLV056

Thèse de doctorat

# Variations climatiques et variations du cycle hydrologique aux basses latitudes au cours du Quaternaire : une approche combinant modèle et données

Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay
Préparée à l'Université de Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines

Ecole doctorale n°129 Sciences de l'Environnement d'Ile-de-France (SEIF)
Spécialité de doctorat : Océan, Atmosphère, Climat et Observations Spatiales

Thèse présentée et soutenue à Gif-sur-Yvette, le 18 octobre 2019, par

**Thomas Extier**

Composition du Jury :

| | |
|---|---|
| Valérie Daux<br>Professeure, UVSQ, LSCE | Présidente du jury |
| Anne Alexandre<br>Directrice de recherche, CNRS, CEREGE | Rapporteure |
| Frédéric Parrenin<br>Directeur de recherche, CNRS, IGE | Rapporteur |
| Bruno Malaizé<br>Maître de conférences, Université de Bordeaux, EPOC | Examinateur |
| Amaelle Landais<br>Directrice de recherche, CNRS, LSCE | Directrice de thèse |
| Didier Roche<br>Directeur de recherche, CNRS, LSCE | Co-directeur de thèse |

# Remerciements

Cette aventure formidable se termine après trois années passées au sein du LSCE et je tiens à remercier toutes les personnes qui y ont pris part.

Je souhaite commencer par remercier Amaelle Landais, ma directrice de thèse, qui m'a permis de réaliser cette thèse dans les meilleurs conditions possibles. Ton énergie débordante et ton enthousiasme étaient toujours très communicatifs. Merci pour ta confiance, ta gentillesse, ta bienveillance et pour tout ce que tu m'as appris. Ta porte était toujours grande ouverte pendant ces trois années et je t'en remercie.

Je remercie ensuite Didier Roche, mon co-directeur de thèse et deuxième acteur de ce duo de choc avec Amaelle. Merci de m'avoir fait découvrir le monde merveilleux des modèles de climat et pour ton aide précieuse, aussi bien quand ça marchait que quand ça ne marchait pas. Tu étais aussi toujours disponible pour discuter de science, mais pas que, et c'était un plaisir.

Je n'aurais pas pu espérer meilleurs encadrants. Un grand merci à tous les deux !

Merci également aux rapporteurs et autres membres du jury d'avoir accepté de relire ce manuscrit, d'avoir fait le déplacement pour ma soutenance (ce qui n'a pas été évident quand les transports s'en mêlent), ainsi que pour leurs remarques constructives et leurs questions.

Je tiens ensuite à remercier les professeurs et enseignants chercheurs Philippe Bousquet, Valérie Daux, Christophe Grenier, Edwige Pons-Branchu et Marielle Saunois de m'avoir fait confiance pour reprendre leurs enseignements. Cela aura été une expérience très enrichissante que j'espère pouvoir continuer dans le futur.

Un grand merci à toutes les personnes avec qui j'ai partagé mon bureau pendant ces trois années, Sébastien, Lise, Anta, Hayoung, Vincent, Margaux, et plus généralement aux thésardes, thésards, post-docs, stagiaires, ingénieurs... de l'ancien couloir du 701 et de l'étage du nouveau bâtiment. Marie, Julia, Fanny, Audrey, Lise, Anta, Sophie, Kristan et Tristan merci pour tous les moments partagés ensemble, que ce soit pour discuter, pour les moments de détente, de dégustation et autres... Le bureau d'angle (pour ne pas le citer) est le coin bonne humeur et c'était toujours un plaisir de venir vous voir ! Bon courage à vous qui êtes plus ou moins loin de la fin.

Les journées n'auraient pas été pareilles sans la pause thé du matin. Jean-Yves, Aurélien, Christophe, Gaele, Fabienne, Sylvie, merci à vous pour ces moments partagés ensemble et pour les fous rires quotidiens, souvent rythmés par les blagues de Jean-Yves. Je souhaite d'ailleurs te remercier pour ton aide, que ce soit pour des questions informatiques, Python ou pour de bons

conseils cinématographiques. Un grand merci à Aurélien pour nos discussions diverses et variées, pour ton soutien et pour avoir pris le temps de m'aider pendant ces trois années dès que j'avais une question.

Merci à toutes les personnes de l'équipe CLIM que je n'ai pas encore citées : Nathaelle, Masa, Didier P., Sarah, Florence, Pierre, Jean-Claude, Gilles et Camille. C'était toujours un plaisir de discuter avec vous et la bonne ambiance générale m'a fait passer trois ans très agréables !

Je remercie aussi l'équipe GLACCIOS de m'avoir accueilli de temps en temps, pour des réunions ou moments de convivialité. Merci à Anaïs, Cécile, Frédéric, Elise, Jean, Margaux, Christophe, Camille, Aymeric et Antoine.

Merci à Lucie Bazin, pour tes conseils et ton aide, déjà même avant que je commence la thèse et tout du long. Je remercie également Louis François de m'avoir aidé à adopter le modèle de végétation et pour son aide technique.

Je tiens aussi à remercier l'équipe informatique et l'équipe administrative (Catherine Huguen, Laurence Bayard, Camille Cornu et Cécile Tessier), toujours disponibles en cas de problème ou de question.

Mais je pense que je ne serais pas là aujourd'hui sans un certain cours de première année de licence auquel j'ai assisté il y a de cela plusieurs années, qui m'a donné envie de me lancer dans cette aventure et qui m'a amené là où j'en suis aujourd'hui. Bruno, un grand merci pour m'avoir transmis ta passion, pour ta gentillesse et pour m'avoir suivi tout au long de ces années. Merci également aux autres personnes que j'ai eu la chance de côtoyer à EPOC tout au long de mon parcours : Thibaut Caley, Linda Rossignol-Malaizé, Marie-Hélène Castera et Frédérique Eynaud.

Cela m'amène à mes amis de longue date de Bordeaux (mes amis d'enfance, mes amis de fac et ma deuxième famille, les Grandjean) que je ne remercierais jamais assez. Merci à vous pour tous les super moments partagés ensemble et pour votre soutien. Merci de m'avoir permis de penser à autre chose que la thèse le temps d'un week-end, toujours autour d'un bon repas !
On aura commencé et fini ensemble : tous mes encouragements à Cassandra, Pierre, Marjolaine et Eleanor pour la fin de votre thèse et pour la suite.

Un grand merci à ma famille (cousins, oncles, tantes, grands-parents) de m'avoir encouragé et d'avoir été curieux, parce que c'est vrai que faire une thèse sur des carottes et du modèle, dit comme ça ça peut paraître étrange.
Je termine par mes parents et mes soeurs, qui ont toujours été là pour moi, qui m'ont soutenu pendant ces trois années et qui m'ont supporté (parce que je sais que je peux être râleur). Merci à vous !

# Table des matières

**Introduction** **13**

**1 La composition isotopique de l'oxygène atmosphérique** **29**
1.1 Définitions . . . 29
1.2 Cycle de l'oxygène et processus de fractionnement . . . 35
1.2.1 Processus associés à la biosphère terrestre . . . 35
1.2.1.1 Cycle hydrologique et photosynthèse . . . 35
1.2.1.2 Quantification des flux d'oxygène . . . 38
1.2.1.3 Les mécanismes de respiration . . . 41
1.2.1.4 Fractionnement isotopique lié aux processus de respiration . 43
1.2.2 Processus de respiration dans les océans . . . 47
1.2.3 Echanges avec la stratosphère . . . 48

**2 Les carottes de glace comme archives climatiques** **51**
2.1 Paramètres mesurés dans la phase glace . . . 53
2.1.1 Les isotopes de l'eau . . . 53
2.1.2 La concentration en aérosols . . . 53
2.2 Proxies mesurés dans la phase gaz . . . 54
2.2.1 La concentration en gaz à effet de serre . . . 54
2.2.2 Les isotopes de l'argon et de l'azote . . . 56
2.2.3 $\delta^{18}O_{atm}$ . . . 58
2.2.4 $\delta O_2/N_2$ . . . 59
2.3 Les fractionnements isotopiques . . . 60
2.3.1 Le fractionnement gravitationnel . . . 61
2.3.2 Le fractionnement thermique . . . 61
2.3.3 Fractionnement par perte de gaz . . . 62
2.4 Datation de la carotte de glace d'EPICA Dome C . . . 62
2.4.1 Les chronologies EDC1 et EDC2 . . . 64
2.4.2 La chronologie EDC3 . . . 66
2.4.3 L'échelle d'âge commune AICC2012 . . . 67
2.5 Mesures du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta O_2/N_2$ . . . 71
2.5.1 Protocole expérimental . . . 71
2.5.2 Corrections . . . 72

**3 Amélioration des contraintes chronologiques apportées par le $\delta^{18}O_{atm}$ 75**
3.1 Mesures du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta O_2/N_2$ entre 153 et 375 ka . . . 76
3.2 Développement d'une nouvelle chronologie . . . 78
3.2.1 Méthode d'alignement entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta^{18}O_{calcite}$ . . . 78
3.2.2 DATICE . . . 81
3.3 Application de la nouvelle chronologie à différents enregistrements . . . 82
3.3.1 Lors d'évènements de Dansgaard-Oeschger observés à NGRIP . . . 82
3.3.2 Application au cours des derniers 640 ka à EDC . . . 83
3.4 Etude de la capacité de la méthode à réduire les incertitudes . . . 84
3.5 Article 1 : On the use of $\delta^{18}O_{atm}$ for ice core dating . . . 88
3.6 Variations de l'effet Dole . . . 103
3.7 Etude de la dynamique de la Terminaison 3 . . . 106
3.8 Conclusions et perspectives . . . 110

**4 Développement d'un couplage capable de simuler le $\delta^{18}O_{atm}$ 113**
4.1 Description du modèle de climat iLOVECLIM . . . 113
4.2 Description du modèle de végétation CARAIB . . . 116
4.3 Interaction entre le modèle de climat et de végétation . . . 120
4.3.1 Procédure de couplage . . . 120
4.3.1.1 Paramètres climatiques . . . 121
4.3.1.2 Transfert de la végétation . . . 122
4.3.2 Paramétrisation pour des simulations à l'équilibre . . . 122
4.3.3 Paramétrisation pour des simulations transitoires . . . 123
4.4 Validation du couplage au pré-industriel . . . 124
4.5 Implémentation des isotopes de l'oxygène atmosphérique . . . 126

**5 Modélisation des isotopes de l'oxygène atmosphérique à l'échelle orbitale et millénaire 129**
5.1 Article en préparation : Model-based estimation of atmospheric oxygen isotopic composition between the Last Glacial Maximum and the Pre-Industrial . . . 130
5.2 Etude de la composition isotopique de l'oxygène au cours d'un évènement de Heinrich . . . 167
5.2.1 Simulation d'un évènement de Heinrich . . . 168
5.2.2 Evolution de la productivité et de la composition isotopique de l'oxygène 170
5.2.3 Séquence des évènements pendant l'évènement de Heinrich 1 . . . 177
5.2.3.1 Description dans les données . . . 177
5.2.3.2 Comparaison modèle-données . . . 180
5.3 Conclusions . . . 184

**6 Etude des variations du $\delta^{18}O_{atm}$ au cours du stade isotopique 5 187**
6.1 Définition du dernier interglaciaire . . . 187
6.2 Séquence des évènements entre la fin de la Terminaison 2 et le stade 5c . . . 189
6.3 Paramètres climatiques de la simulation . . . 191
6.4 Simulation transitoire de la végétation et de la composition isotopique de l'oxygène . . . 193
6.4.1 Evolution de la productivité de la biosphère terrestre . . . 193
6.4.1.1 Résultats du modèle . . . 193

6.4.1.2 Comparaison avec les données . . . . . 198
6.4.2 Relation entre $\delta^{18}O_{atm}$, $\delta^{18}O_{calcite}$ et insolation . . . . . 199
6.4.2.1 $\delta^{18}O_{atm}$ mesuré vs modélisé . . . . . 200
6.4.2.2 $\delta^{18}O_{atm}$ vs insolation . . . . . 202
6.4.2.3 $\delta^{18}O_{calcite}$ mesuré vs simulé . . . . . 203
6.4.2.4 Décomposition du signal de $\delta^{18}O_{atm}$ . . . . . 205
6.5 Conclusions . . . . . 206

**Conclusions et perspectives** **209**

**Bibliographie** **217**

**Table des figures** **247**

**Liste des tableaux** **251**

**Annexes** **253**
1. Article : A two-million-year-long hydroclimatic context for hominin evolution in southeastern Africa . . . . . 253
2. Article : Unveiling the anatomy of Termination 3 using water and air isotopes in the Dome C ice core, East Antarctica . . . . . 273
3. Article : Exceptionally high biosphere productivity at the beginning of Marine Isotopic Stage 11 . . . . . 285

# Notations

| Paramètre | Unité | Définition |
|---|---|---|
| $CO_2$ | ppm | Concentration en dioxyde de carbone atmosphérique |
| $\delta^{18}O$ | ‰ | Teneur en isotopes lourds/légers d'un échantillon ($R_{échantillon}$) par rapport à la teneur d'un standard ($R_{standard}$) exprimée comme $\delta$ = [ $R_{échantillon}$ / $R_{standard}$ − 1] * 1000 |
| $\delta^{18}O_{feuille}$ | ‰ | Composition isotopique de l'oxygène dans l'eau des feuilles |
| $\delta^{18}O_{atm}$ | ‰ | Composition isotopique de l'oxygène atmosphérique |
| DE | ‰ | Effet Dole, DE = $\delta^{18}O_{atm}$ - $\delta^{18}O_{eaudemer}$ |
| h | % | Humidité relative au niveau de la surface de la feuille |
| $T_{new}$ | °C | Température de l'air corrigée de l'amplitude des températures journalières |
| $\Gamma^*$ | ppm | Point de compensation du $CO_2$, soit la concentration en $CO_2$ lorsque la carboxylation est égale à l'oxygénation |
| $C_i$ | ppm | Pression en $CO_2$ dans le milieu intercellulaire |
| f | - | Fraction du flux d'oxygène associée aux processus de respiration |
| $\alpha$ | - | Coefficient de fractionnement associé aux processus de respiration |
| $\varepsilon$ | ‰ | Enrichissement isotopique défini comme ($\alpha$-1)*1000 |
| GPP | PgC/an | Productivité primaire en carbone de la biosphère terrestre |
| $GPPO_2$ | $PgO_2$/an | Productivité primaire en oxygène de la biosphère terrestre |

# Introduction

## Contexte

Le cinquième rapport du GIEC (Groupe d'Experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat) publié en 2013 affirme qu'il est extrêmement probable (plus de 95 % de chance) que les activités humaines soient responsables du changement climatique actuel. Cela se traduit par une température moyenne du globe 1°C plus élevée et par une hausse du niveau marin d'environ 20 cm par rapport à la période pré-industrielle (définie comme la période avant 1750). Mais les conséquences de ce changement climatique sont bien plus larges et impactent la distribution des précipitations, la biodiversité terrestre et marine, la récurrence des évènements extrêmes et les hommes, notamment via l'accès à l'eau et à la nourriture. Comprendre les interactions entre climat, cycle hydrologique et productivité de la biosphère est donc aujourd'hui indispensable.
La mousson, directement reliée au cycle hydrologique, impacte des milliards d'individus et présente des enjeux économiques et sociétaux importants (agriculture, hydroélectricité, besoins humains...). Cependant, les scénarios futurs ont du mal à estimer les changements de précipitation dans les zones clés des basses latitudes [Turner and Annamalai, 2012]. La productivité de la biosphère a également une importance majeure dans la régulation du $CO_2$ atmosphérique, pouvant permettre le stockage de carbone ou au contraire devenir une source. Toutefois, les facteurs qui contrôlent les variations du cycle hydrologique et du stockage du carbone pour des périodes dont le climat est différent du nôtre sont mal quantifiés. Pour répondre à ce problème, les périodes passées plus froides (glaciaires) ou chaudes (interglaciaires) enregistrées dans les archives climatiques à différentes latitudes peuvent être étudiées sur plusieurs centaines de milliers d'années. Des périodes de réchauffement abrupt observées lors de la dernière période glaciaire au Groenland représentent également l'exemple le plus récent de déstabilisation rapide

du climat.

Être capable de comprendre et reproduire les changements hydrologiques et de productivité de la biosphère pour des périodes passées permettra d'aborder de façon cohérente l'impact à grande échelle de ces phénomènes dans le cadre du changement climatique actuel et futur.

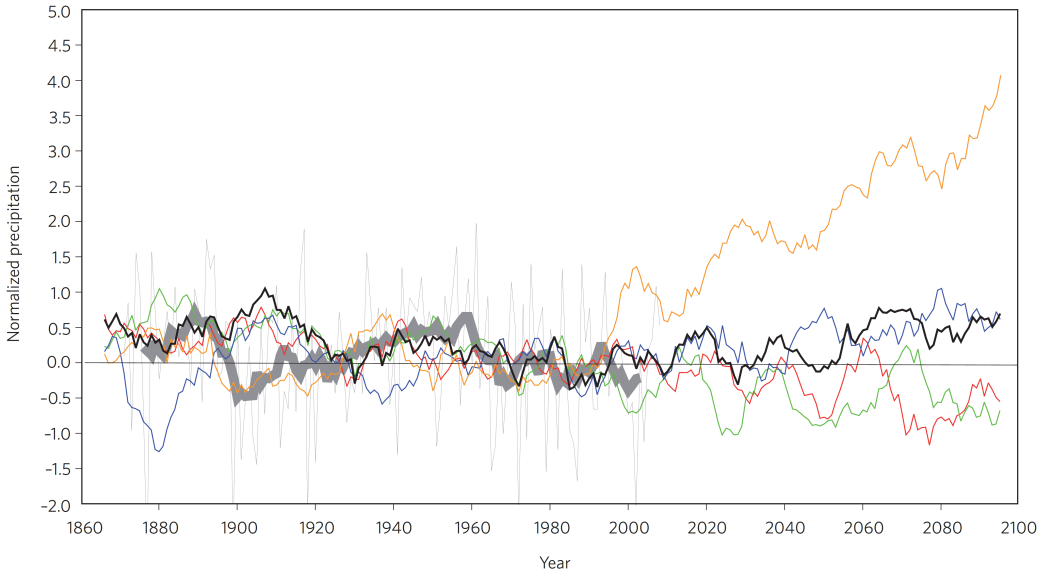



FIGURE 1 – Données historiques et projections futures des précipitations entre juin et septembre sur le Sud de l'Asie, simulées à partir de quatre modèles de climat : le modèle MRI-CGCM2.3.2 en jaune, le modèle MPI-ECHAM5 en bleu, le modèle GFDL-CM2.0 en rouge et GFDL-CM2.1 en vert. La courbe grise épaisse représente les observations après traitement du signal (normalisation et moyenne glissante) et la courbe grise très fine est celle des données avant lissage du signal. La courbe noire représente la moyenne de l'ensemble (figure modifiée d'après Turner and Annamalai [2012]).

# Les outils de reconstitution du climat

## Enregistrements paléoclimatiques

La reconstitution du climat repose sur l'analyse d'archives climatiques qui enregistrent les variations passées de l'histoire de la Terre sur des échelles de temps allant du jour à plusieurs centaines de millions d'années. Ces archives terrestres et océaniques regroupent différents types d'enregistrements tels que des archives historiques, des enregistrements sédimentaires (lacustres ou marins), glaciologiques, les cernes d'arbres, les coraux ou encore les spéléothèmes (concrétions calcaires retrouvées dans les grottes). Les archives et indicateurs climatiques ter-

restres tels que les carottes de glace, les pollens, les cernes d'arbres, les concrétions calcaires et les sédiments lacustres permettent d'obtenir des informations sur l'évolution du climat (température, précipitation...), de la végétation, du niveau des lacs, des propiétés physico-chimiques d'un environnement ou encore du cycle hydrologique. Les archives marines telles que les sédiments marins (dans lesquels sont retrouvés des foraminifères et autres micro-organismes et où sont analysés les éléments traces et la composition minéralogique) ainsi que les récifs de coraux permettent de reconstituer les variations de la température et de la salinité des océans (dans les eaux de surface et en profondeur), du niveau marin global, du volume de glace continentale ou encore de la circulation océanique. Selon le type d'archive et sa composition, celle-ci est datée en utilisant une des méthodes de datation existantes (comme par exemple le comptage de couches annuelles ou une datation "orbitale" - voir Chapitre 2). Les cernes d'arbres couvrent ainsi une période maximale de quelques milliers d'années, les récifs coraliens de plusieurs dizaines de milliers d'années, les carottes de glace et les spéléothèmes jusqu'à plusieurs centaines de milliers d'années, tandis que les sédiments marins permettent de remonter jusqu'à plusieurs dizaines de millions d'années (Figure 2).

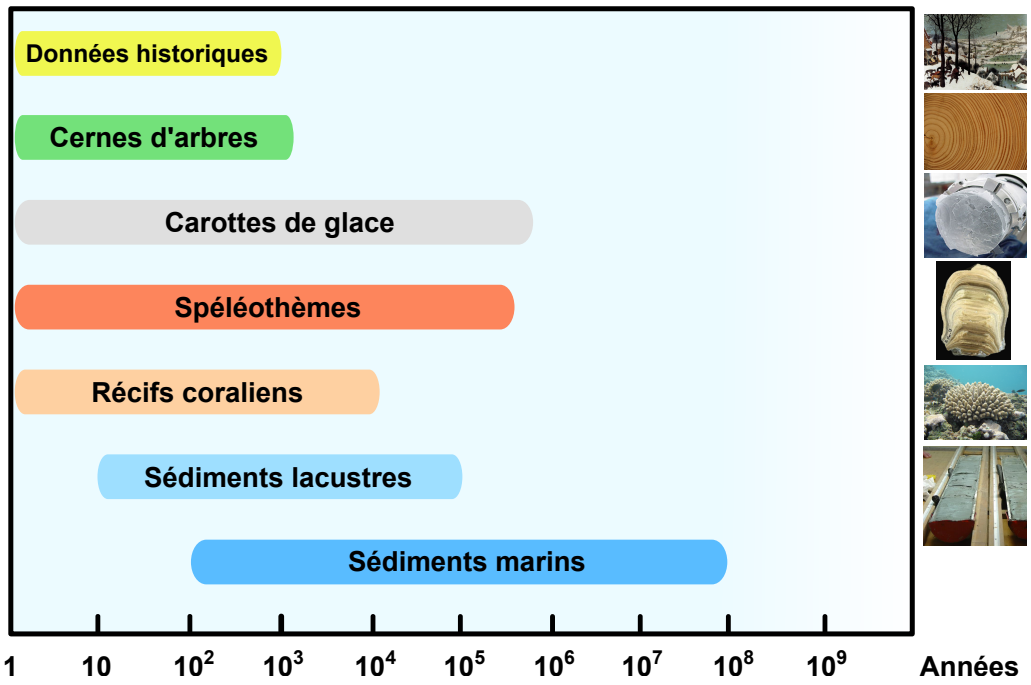



FIGURE 2 – Schéma de la durée couverte par différentes archives paléoclimatiques (adapté de Ruddiman [2008]).

Dans le cadre de cette thèse, je vais m'intéresser à la carotte de glace d'EPICA Dome C en Antarctique de l'Est permettant d'étudier les variations de plusieurs proxies (gaz à effet de serre, composition isotopique, aérosols...) sur la même échelle d'âge au cours de plusieurs cycles climatiques jusqu'à 800 ka (kiloyear before present ou milliers d'années avant 1950). Cette panoplie de proxy permet ainsi d'étudier précisément et de relier entre eux les changements environnementaux aux hautes et basses latitudes avec les changements climatiques.

## Modélisation du climat

Toutes ces données mesurées dans les archives climatiques peuvent être mises en regard avec les résultats issus de l'utilisation de modèles climatiques allant des modèles conceptuels simples aux modèles de circulation générale de l'atmosphère et de l'océan (GCM pour General Circulation Model), en passant par des modèles de complexité intermédiaire (EMIC pour Earth system Models of Intermediate Complexity) (Figure 3). Ces modèles sont fondés sur des équations de la mécanique des fluides plus ou moins simplifiées selon la complexité du modèle pour représenter différentes composantes du système terrestre (atmosphère, océan, végétation, calottes de glace...), de même que les isotopes du carbone, de l'oxygène ou encore des traceurs géochimiques.

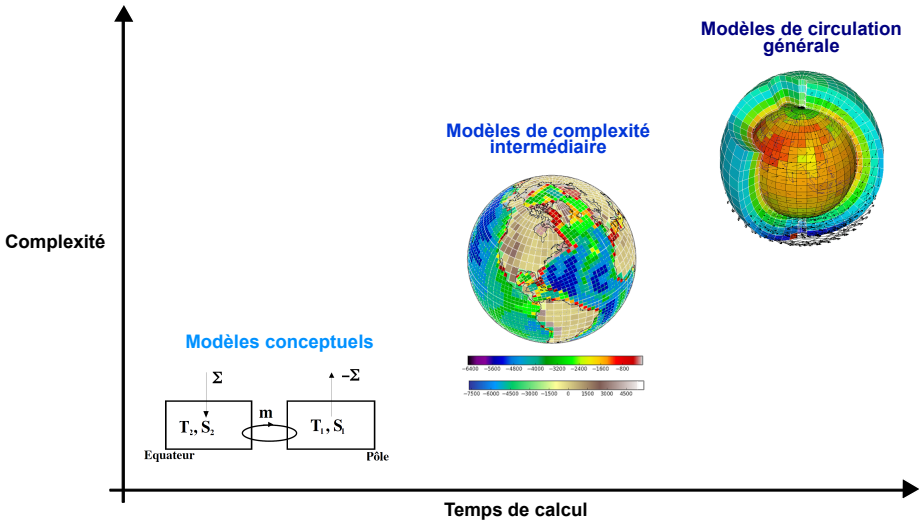



FIGURE 3 – Représentation des différents types de modèles climatiques allant des modèles les plus simples (modèles conceptuels, e.g. Paillard [1998]), aux modèles de compléxité intermédiaire (iLOVECLIM, CLIMBER...) aux plus complexes (modèles de circulation générale, e.g. modèle de l'IPSL) (schéma modifié d'après Bouttes [2010]).

Ces modèles permettent d'étudier et de mieux comprendre les mécanismes qui contrôlent les variations climatiques ainsi que les relations entre les différentes composantes du système Terre pour des périodes climatiques passées. Des applications ont par exemple été réalisées au cours de l'Holocène (derniers 11,7 ka) et du Dernier Maximum Glaciaire (il y a 21 ka) avec le modèle de complexité intermédiaire iLOVECLIM et le modèle de circulation générale LMDZ de l'IPSL. L'avantage du modèle iLOVECLIM est la possibilité de réaliser des simulations sur plusieurs milliers d'années à l'échelle du dernier million d'années, avec par exemple l'étude d'une déglaciation, d'une entrée en glaciation ou même de plusieurs cycles climatiques. Sa résolution est plus faible que celle du modèle de l'IPSL, plus complexe en termes des processus représentés et donc plus coûteux en temps de calcul, ce qui n'est pas idéal pour étudier les changements du climat en continu sur plusieurs dizaines de milliers d'années. Le modèle de l'IPSL peut toutefois être utilisé sur des périodes de temps spécifiques, plus anciennes que le modèle iLOVECLIM, comme par exemple au Pliocène (entre 5,33 et 2,58 Ma - millions d'années) et au Miocène (entre 23,03 et 5,33 Ma). Les modèles de climat sont également les seuls outils capables d'étudier la question du changement climatique via des simulations futures, que ce soit avec le modèle iLOVECLIM ou encore avec les modèles de l'IPSL et HadCM3 utilisés pour établir les projections climatiques en 2100 retrouvées dans les rapports du GIEC.

Les reconstructions climatiques fondées sur les différentes archives permettent d'évaluer ces différents modèles climatiques et de tester leur capacité à simuler le climat de manière plausible. L'utilisation conjointe des modèles et des données permet donc d'étudier et de quantifier l'importance des mécanismes responsables des modifications climatiques et environnementales et de relier les changements locaux aux changements globaux, au cours de périodes passées spécifiques, sur plusieurs cycles climatiques ou pour le futur.

# Le climat du Quaternaire (présent - 2,58 Ma)

## Le forçage orbital

L'enregistrement composite LR04 du $\delta^{18}O_{benthique}$ de Lisiecki and Raymo [2005] est utilisé comme courbe de référence des variations du volume de glace et de la température océanique

au cours des derniers 5,3 Ma. Cet enregistrement permet d'identifier les périodes glaciaires (valeur élevée du $\delta^{18}O_{benthique}$) caractérisées par une température moyenne globale plus faible de quelques degrés [Hargreaves et al., 2012] et par des calottes de glace plus développées aux pôles (par rapport à la période pré-industrielle), ainsi que des périodes interglaciaires comme celle dans laquelle nous vivons depuis 10 ka (avec une valeur plus faible du $\delta^{18}O_{benthique}$) où la température est plus élevée et les calottes de glace plus restreintes (Figure 4). Jusqu'à environ 0,9 Ma les périodes glaciaires-interglaciaires ont une cyclicité de 41 ka, dominée par les changements d'obliquité. Depuis la Transition du Pléistocène Moyen (Mid-Pleistocene Transition) entre environ 1,2 et 0,8 Ma [Clark et al., 2006], la cyclicité des périodes glaciaires-interglaciaires est passée à 100 ka avec des cycles de plus grande amplitude et une augmentation du volume de glace continentale en période glaciaire (Figure 4). Cette période est également caractérisée par une diminution graduelle, long terme, des températures océaniques de surface, à la fois aux hautes et basses latitudes [McClymont et al., 2013].

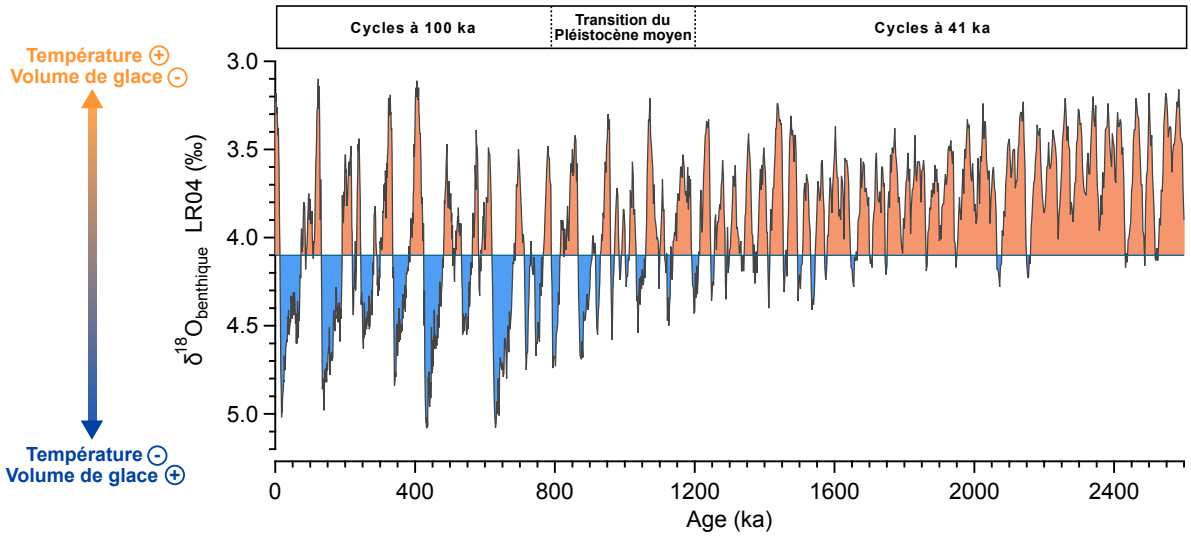



FIGURE 4 – Variations climatiques du Quaternaire basées sur la courbe composite LR04 du $\delta^{18}O_{benthique}$ de Lisiecki and Raymo [2005].

Toutefois, ce changement de périodicité des périodes glaciaires-interglaciaires ne peut être expliqué par les forçages astronomiques puisqu'aucune modification notable n'est observée pendant la Transition du Pléistocène Moyen. Plusieurs hypothèses encore débattues ont été proposées pour expliquer ces changements du climat au cours de cette période : la diminution de la concentration en $CO_2$ atmosphérique autour de 0,9 Ma [Berger and Jansen, 1994] ; [Raymo

et al., 1997], un changement dans la dynamique des calottes de l'hémisphère Nord ou Antarctique [Clark and Pollard, 1998] ; [Raymo et al., 2006] ; [Crowley and Hyde, 2008] ou encore une modification de la circulation océanique [Pena and Goldstein, 2014].

Une théorie relie les cycles glaciaires-interglaciaires aux paramètres orbitaux en proposant que l'insolation des hautes latitudes de l'hémisphère Nord contrôle les périodes glaciaires (un minimum d'insolation permet aux calottes de glace de se former alors qu'un maximum d'insolation tend à les réduire) [Milankovitch, 1941]. Les changements à long terme de l'insolation sont contrôlés par trois paramètres astronomiques que sont l'obliquité, l'excentricité et la précession (Figure 5). L'obliquité représente l'inclinaison de l'axe de rotation de la Terre par rapport au plan de l'écliptique. La période caractéristique des changements est de 41 ka. Ce paramètre ne modifie pas l'ensoleillement moyen global de la Terre mais engendre des disparités selon les latitudes. L'obliquité influence aussi l'intensité du cycle atmosphérique (selon la distribution hémisphérique du rayonnement solaire reçu). Les hautes latitudes sont par exemple très sensibles aux variations d'obliquité et présentent une réduction du volume de glace continentale lors d'un maximum d'obliquité. L'excentricité est liée au fait que l'orbite de la Terre autour du Soleil n'est pas circulaire mais ellipsoïdale. Elle se définit par des périodicités de 100 et 400 ka (Figure 5). Les très faibles variations de l'excentricité n'influencent que très peu la quantité d'énergie solaire reçue à la surface de la Terre. Enfin la précession des équinoxes est le changement de direction de l'axe de rotation de la Terre et a une influence importante sur la saisonnalité. Les périodicités associées sont de 19 et 23 ka.
La partie la plus récente du Quaternaire peut être étudiée en détail à partir de mesures réalisées dans les carottes de glace antarctiques couvrant les derniers 800 ka. Il s'agit de la seule archive permettant d'enregistrer la concentration passée des gaz à effet de serre sur cette échelle de temps, i.e. $CO_2$ atmosphérique et $CH_4$. Les oscillations du $CO_2$ sont comprises entre 180 ppm lors d'une période glaciaire et 280 ppm lors d'une période interglaciaire [Petit et al., 1999] et présentent une corrélation directe avec le volume de glace continentale. Les variations de la concentration en méthane sont comprises entre environ 380 et 800 ppbv [Loulergue et al., 2008], en lien avec les variations de la précession. Les valeurs extrêmes de méthane correspondent à des périodes de faible ou forte activité de la mousson aux basses latitudes comme noté dans les enregistrements de spéléothèmes.

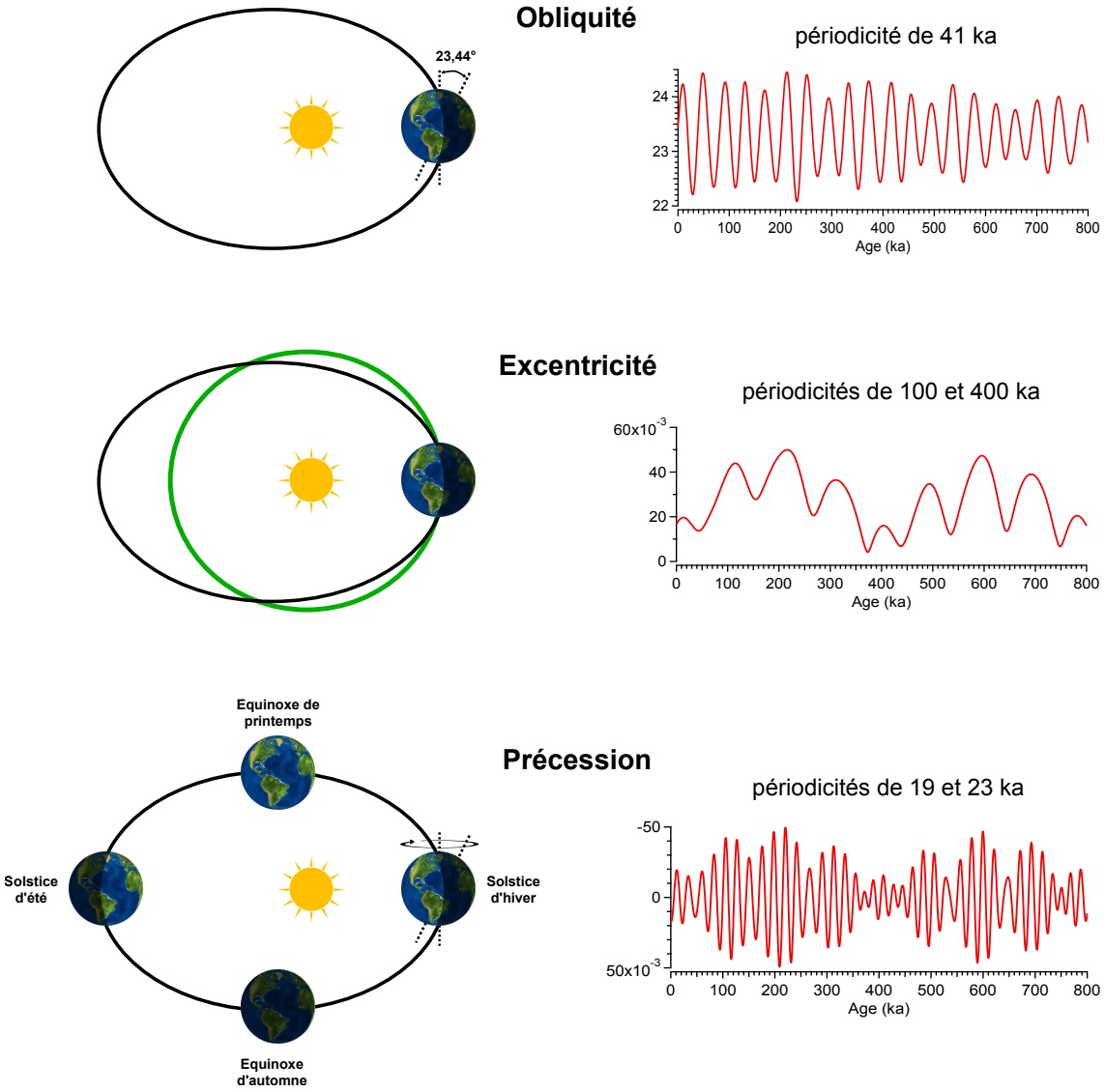



FIGURE 5 – Description des paramètres de Milankovitch avec les variations de l'obliquité, de l'excentricité et de la précession au cours des derniers 800 ka calculées par Laskar et al. [2004].

## Variations millénaires

Les oscillations climatiques sont aussi observées à des échelles de temps plus rapides de l'ordre de la centaine à quelques milliers d'années. Elles sont par exemple retrouvées dans les enregistrements sédimentaires de l'Atlantique Nord, dans les carottes de glace groenlandaises et antarctiques ou dans les spéléothèmes.

Ces variations millénaires ont d'abord été observées dans les années 80 dans les sédiments marins de l'Atlantique Nord et plus particulièrement dans une zone entre 40 et 55°N de latitude appelée "ceinture de Ruddiman" [Ruddiman, 1977]. Elles sont définies comme les évènements de Heinrich (HE) et caractérisées par la présence en quantité importante de débris détritiques contenant du quartz, i.e. IRD (Ice Rafted Debris) [Heinrich, 1988] ; [McManus et al., 1999] ; [Hodell et al., 2008]. Ces grains détritiques proviennent de la décharge d'icebergs de la calotte Laurentide (recouvrant une grande partie de l'Amérique du Nord) ou Fennoscandienne (sur une partie de l'Europe du Nord) et sont notamment observés en grande quantité lors des terminaisons glaciaires-interglaciaires [Elliot et al., 2002] ; [Eynaud et al., 2012]. Ces évènements de Heinrich vont avoir comme effet de déplacer le front polaire de l'hémisphère Nord et la Zone de Convergence Intertropicale (ZCIT) vers le Sud. La ceinture tropicale des précipitations est également déplacée vers le Sud [Chiang and Bitz, 2005] et cela a pour effet de modifier la dynamique du cycle hydrologique des basses latitudes avec par exemple une modification de la composition isotopique des concrétions calcaires aux moyennes et basses latitudes (Figure 6).

Les évènements de Dansgaard-Oeschger (DO) sont un deuxième type d'évènements rapides définis par Dansgaard et al. [1982] ; Dansgaard et al. [1984]. Ils sont observés dans plusieurs archives paléoclimatiques allant des carottes groenlandaises [Landais et al., 2004] ; [NorthGRIP Community Members, 2004] aux séries marines [Lisiecki and Raymo, 2005] ; [Waelbroeck et al., 2008], ou encore aux spéléothèmes [Wang et al., 2008] ; [Cheng et al., 2009] ; [Boch et al., 2011] (Figure 6). Ils se caractérisent dans les carottes groenlandaises par un réchauffement abrupt et très rapide de la température, de 5 à 16°C en quelques dizaines d'années, avec le passage d'une période froide et sèche (stadiaire ou Greenland Stadial) à une période chaude et humide (interstadiaire ou Greenland Interstadial) [Severinghaus et al., 1998] ; [Lang et al., 1999] ; [NorthGRIP Community Members, 2004] ; [Capron et al., 2010] ; [Kindler et al., 2014]. Ce réchauffement est ensuite suivi par un refroidissement progressif. Les évènements de Heinrich sont corrélés aux évènements de Dansgaard-Oeschger puisque les périodes froides précédant le réchauffement abrupt sont associées à d'importants dépôts d'IRD. Parallèlement aux changements dans l'hémisphère Nord, un maximum isotopique est observé en Antarctique en phase avec le réchauffement abrupt au Groenland [Pedro et al., 2016]. Cette augmentation rapide de température au Groenland est observée en association à une augmentation abrupte du

méthane, avec un décalage très faible entre les deux [Severinghaus et al., 1998]. Une augmentation de 20 ppm du $CO_2$ est également observée pendant cette période [Stauffer et al., 1984]; [Stauffer et al., 1998].

L'origine de ces évènements de Dansgaard-Oeschger est encore incertaine mais plusieurs mécanismes ont été proposés pour expliquer ces variations, tels qu'un apport en eau douce dans l'Atlantique Nord [Clark et al., 2001]; [Arz et al., 2007] à l'origine d'une réorganisation de la circulation thermohaline méridionale Atlantique, i.e. AMOC (Atlantic Meridional Overturning Circulation), des oscillations de la salinité de surface des océans [Broecker et al., 1990]; [Vettoretti and Peltier, 2016], des changements dans la dynamique de la calotte polaire et de la banquise [Schulz et al., 2002]; [Li et al., 2005]; [Petersen et al., 2013], ou encore des variations solaires [Van Geel et al., 1999]; [Braun et al., 2005]. Une des explications proposées pour expliquer ce changement climatique rapide entre le Groenland et l'Antarctique serait un couplage inter-hémisphérique dominé par des échanges de chaleur via l'atmosphère et l'océan [Pedro et al., 2016].

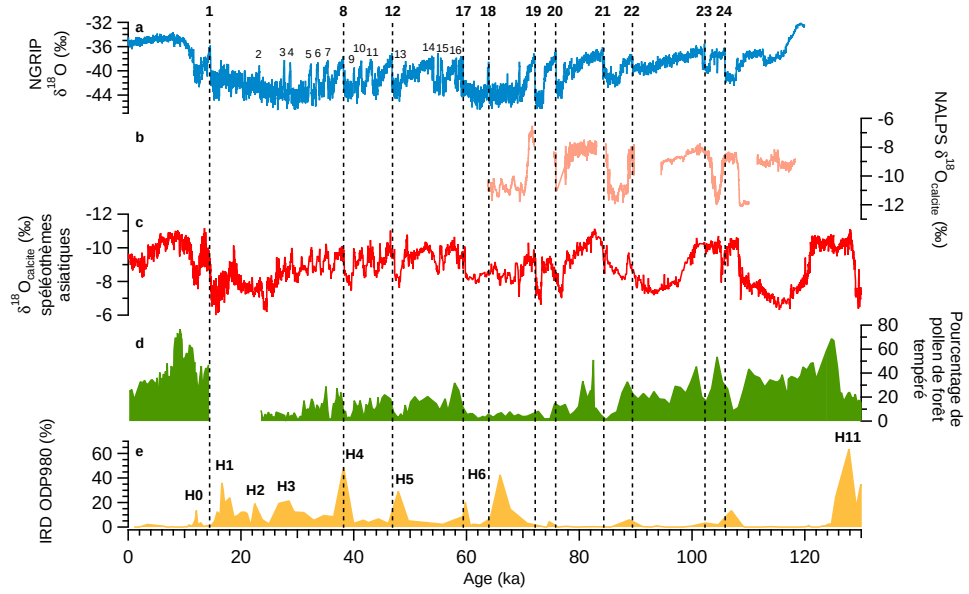



FIGURE 6 – Variations climatiques rapides des derniers 130 ka. (a) NGRIP $\delta^{18}O_{glace}$ [NorthGRIP Community Members, 2004], (b) $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes de NALPS (Northern rim of the Alps) [Boch et al., 2011], (c) courbe composite du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques [Cheng et al., 2016], (d) pourcentage de pollen de forêt tempérée provenant de la carotte MD95-2042 le long de la marge ibérique [Sanchez-Goñi et al., 2017], (e) concentration en IRD au site ODP980 [McManus et al., 1999] utilisée comme témoin des évènements de Heinrich dans l'Atlantique Nord. Les évènements de Dansgaard-Oeschger sont numérotés sur la courbe (a), de même que certains évènements de Heinrich sur la courbe (e).

## Limites actuelles

Malgré les différents enregistrements climatiques des hautes et basses latitudes, les interactions entre le climat, le cycle hydrologique et la productivité globale de la biosphère terrestre au cours de plusieurs cycles climatiques sont encore mal comprises. Cela s'explique notamment par les incertitudes élevées de la chronologie des carottes de glace et par l'absence d'une chronologie commune permettant de faire le lien entre différentes archives paléoenvironnementales et les forçages externes. En effet, au delà du comptage des couches annuelles jusqu'à environ 60 ka, la datation des carottes de glace se fondent sur une méthode de datation orbitale via l'alignement avec l'insolation de l'hémisphère Nord. Toutefois, cette méthode conduit à une incertitude élevée de 6 ka pour la chronologie des carottes de glace.
En l'absence d'une chronologie précise pour les carottes de glace et en considérant l'incertitude associée aux modèles de climat, il est également difficile d'évaluer la capacité des modèles à reproduire les changements climatiques passés ou à simuler les changements futurs. Réduire ces incertitudes est donc primordial pour relier le forçage externe et les variations climatiques et environnementales entre les hautes et basses latitudes.

## Objectifs de cette thèse

Cette thèse présente une approche combinant des mesures isotopiques dans les carottes de glace et l'utilisation d'un modèle climatique afin de comprendre les interactions entre le climat, le cycle hydrologique des basses latitudes et la productivité globale de la biosphère terrestre au cours des derniers cycles glaciaires-interglaciaires. Afin de mieux appréhender ce lien climat-hydrologie-végétation, plusieurs approches seront développées.

Une des premières étapes est l'amélioration de la chronologie des carottes de glace via la réduction des incertitudes. En effet, la chronologie actuelle AICC2012 est associée à une incertitude de 6 ka pouvant entraîner des erreurs d'interprétation lors de la comparaison avec différents enregistrements paléoclimatiques mieux datés sur de longues échelles de temps. Cette incertitude est due au décalage de 6 ka entre le $\delta^{18}O_{atm}$ (composition isotopique de l'oxygène de l'air) et l'insolation au 21 juin à 65°N, considéré comme constant sur l'ensemble de l'enregistrement

lors de la construction de la chronologie. Afin d'améliorer la chronologie, nous allons utiliser de nouvelles mesures haute résolution du $\delta^{18}O_{atm}$ dans la carotte de Dome C afin d'avoir un enregistrement complet sur les derniers 800 ka. Cela permettra de développer une nouvelle chronologie basée sur l'alignement du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques (utilisé comme indicateur du cycle hydrologique des basses latitudes via les changements d'activité de la mousson) au lieu de l'insolation d'été de l'hémisphère Nord précédemment utilisée, avec un décalage constant de 6 ka alors que celui-ci varie au cours des derniers 800 ka. La chronologie revisitée, appliquée aux enregistrements de NGRIP et Dome C, permettra de mieux comprendre la séquence des évènements et les mécanismes en jeu, notamment lors de la comparaison avec différentes archives paléoclimatiques, à la fois sur de longues et courtes échelles de temps (entre 100-640 ka pour étudier les variations orbitales et entre 100-130 ka pour étudier les variations millénaires).

Un deuxième aspect repose sur la modélisation de la composition isotopique de l'oxygène atmosphérique via l'utilisation d'un modèle climatique de complexité intermédiaire afin d'étudier les facteurs qui influencent ses variations. Cette partie nécessite la mise en place d'un couplage entre le modèle de climat iLOVECLIM et le modèle de végétation CARAIB afin d'améliorer la simulation de la distribution de la végétation et de tous les processus liés à la biosphère terrestre. Cette représentation détaillée de la biosphère et des flux de carbone associés à la photosynthèse et à la respiration permettra ensuite d'implémenter dans ce modèle la simulation de la composition isotopique de l'oxygène dans les feuilles et l'atmosphère, les processus de fractionnement isotopique associés ainsi qu'une estimation de la production d'oxygène par la biosphère terrestre.

L'hypothèse que je ferai lors de la construction de la nouvelle chronologie est que les variations à la fois orbitales et millénaires du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ aux basses latitudes sont synchrones car contrôlées par le même mécanisme. Ce lien entre les deux proxies observé dans les données doit être testé via l'utilisation d'un modèle climatique afin d'étudier si les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ répondent aux mêmes influences du climat et du cycle hydrologique au cours des derniers 640 ka. De plus, le modèle couplé développé permettra également de vérifier l'hypothèse selon laquelle le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation d'été de l'hémisphère

Nord ne présentent pas de décalage en dehors de certaines périodes climatiques. Pour cela, des simulations sur différentes échelles de temps, avec des conditions orbitales différentes et dans le cas d'évènements abrupts seront réalisées. Cela permettra aussi de comparer les résultats aux mesures effectuées dans les carottes de glace et de déterminer l'influence de certains paramètres (climat, changement de végétation...) sur les variations du $\delta^{18}O_{atm}$.

## Organisation du manuscrit

Le manuscrit se compose de six chapitres orientés autour d'une présentation générale des carottes de glace et des proxies mesurés, suivi par la présentation et l'interprétation des résultats de cette thèse.

Le Chapitre 1 introduit la notion de composition isotopique de l'oxygène atmosphérique mesurée dans les carottes de glace. Les processus de photosynthèse, respiration et de fractionnement de l'oxygène par la biosphère terrestre impactant la valeur de sa composition isotopique sont ici détaillés. Les autres échanges d'oxygène via la biosphère marine et la stratosphère sont aussi expliqués. Ce proxy sera ensuite utilisé dans les chapitres suivants pour construire une nouvelle chronologie des carottes de glace et étudier la séquence des évènements.

La Chapitre 2 présente les carottes de glace et plus particulièrement la carotte d'EPICA Dome C comme outil de reconstitution du climat passé. Les différents proxies pouvant être mesurés dans la phase glace et gaz sont détaillés, de même que les fractionnements isotopiques observés dans le névé. Ce chapitre introduit également les chronologies successives développées pour cette carotte de glace. Enfin, une partie de présentation du protocole expérimental pour les mesures du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta O_2/N_2$ réalisées pendant cette thèse est détaillée.

Le Chapitre 3 est consacré à l'amélioration de l'échelle d'âge des carottes de glace via l'utilisation des nouvelles mesures du $\delta^{18}O_{atm}$ entre 153 et 375 ka. La méthode d'alignement fondée sur le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques permet notamment de réduire les incertitudes associées à la chronologie et de réviser l'âge de certains stades isotopiques. Deux applications directes au cours d'évènements de Dansgaard-Oeschger pendant la dernière entrée

en glaciation et au cours des derniers 640 ka y sont présentées. Les nouvelles mesures haute résolution permettent aussi d'étudier en détail la séquence des évènements lors de la Terminaison 3 (entre 256 et 249 ka).

Le Chapitre 4 présente l'intégration des processus de photosynthèse, respiration et fractionnement de l'oxygène par la biosphère terrestre au sein d'un modèle climatique de complexité intermédiaire couplé à un modèle de végétation détaillé dont l'intérêt est d'utiliser ses 26 types de plantes afin de quantifier précisément les flux de production en carbone associés à la biosphère terrestre. Le détail des processus du cycle de l'oxygène permet ensuite de quantifier sa production par photosynthèse, les facteurs d'enrichissement au cours de la respiration et la composition isotopique de l'eau dans les feuilles et de l'oxygène atmosphérique.

Le Chapitre 5 se concentre sur l'analyse de la composition isotopique de l'oxygène simulée par le modèle couplé. Une partie développe la comparaison entre le pré-industriel et le Dernier Maximum Glaciaire, à la fois dans le modèle et par rapport aux mesures faites dans les carottes de glace. Cela permet de mettre en évidence les principales contributions aux variations du $\delta^{18}O_{atm}$ au cours de deux périodes différentes en terme de paramètres orbitaux, climat, végétation...
Une partie détaille également les variations de l'oxygène simulées par le modèle au cours d'un évènement de Heinrich idéalisé suivant le Dernier Maximum Glaciaire afin de montrer que des variations rapides influencent le cycle hydrologique des basses latitudes et impactent la composition isotopique de l'oxygène. Ces données simulées sont ensuite comparées avec la séquence des évènements observée dans les données pendant l'évènement de Heinrich 1.

Le Chapitre 6 porte sur la simulation du $\delta^{18}O_{atm}$ au début du stade isotopique 5 afin de comparer le $\delta^{18}O_{atm}$ simulé aux données hautes et basses latitudes mesurées dans les carottes de glace et présentées sur la nouvelle chronologie développée dans le Chapitre 3. En parallèle, les variations de l'activité de la mousson sont analysées via la simulation du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques, permettant d'étudier l'influence du cycle hydrologique des basses latitudes sur ses variations et de faire le lien avec les changements du $\delta^{18}O_{atm}$. Ce chapitre permet également de tester le lien entre les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ et de l'insolation d'été de

l'hémisphère Nord, et entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques. Les changements de distribution de la végétation et de productivité de la biosphère terrestre sont également présentées en lien avec les variations climatiques pendant cette période 130-100 ka.

# Chapitre 1

# La composition isotopique de l'oxygène atmosphérique

## 1.1 Définitions

L'oxygène est l'un des éléments les plus abondants dans l'atmosphère, produit par la photosynthèse et consommé lors de la respiration de la biosphère. Le $\delta^{18}O$ de la molécule d'$O_2$ de l'air, noté ci-après $\delta^{18}O_{atm}$, est un proxy mesuré dans la phase gaz des carottes de glace (voir Chapitre 2). L'interprétation du $\delta^{18}O_{atm}$ sur de longues échelles de temps est complexe car ce proxy est sensible aux variations du niveau marin global (via le volume des calottes de glace), du cycle de l'eau et de la productivité de la biosphère (marine et continentale) au travers des processus de photosynthèse et de respiration [Bender et al., 1994].

Les données existantes de $\delta^{18}O_{atm}$ à EPICA Dome C (EDC) en Antarctique de l'Est couvrent les périodes 0-40 ka, 98-152 ka et 300-800 ka [Dreyfus et al., 2007] ; [Dreyfus et al., 2008] ; [Landais et al., 2013] ; [Bazin et al., 2016] (Figure 1.1). Pour compléter une partie de cet enregistrement, les données à basse résolution du $\delta^{18}O_{atm}$ de Vostok entre 40 et 98 ka sont utilisées (car ce site se situe à proximité de celui de Dome C et possède un taux d'accumulation similaire) [Petit et al., 1999]. Il manque toutefois des données entre 152 et 300 ka, couvrant notamment la Terminaison 3 et permettant d'avoir une vision d'ensemble des variations du $\delta^{18}O_{atm}$ à l'échelle des derniers 800 ka, en lien avec les changements des paramètres orbitaux. Ces nouvelles données seront présentées dans le Chapitre 3. La résolution des enregistrements de $\delta^{18}O_{atm}$ est

variable au cours des derniers 400 ka pour trois sites antarctiques avec ∼0,55 ka pour EDC, ∼1,15 ka pour Dome F et ∼1,27 ka pour Vostok (Figure 1.1).

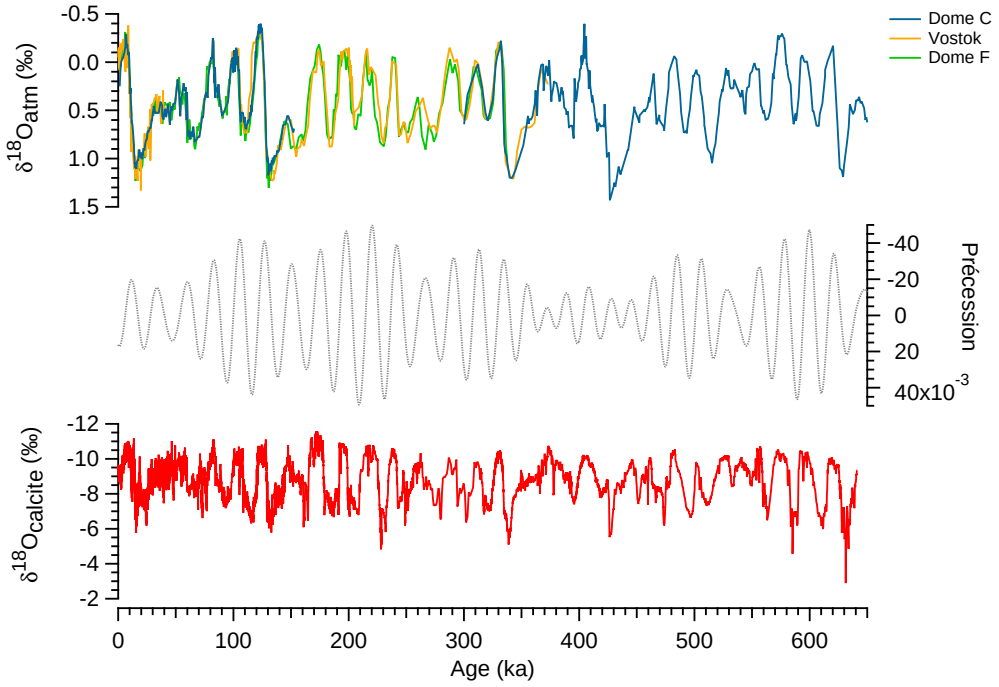



FIGURE 1.1 – Variations au cours des derniers 650 ka du $\delta^{18}O_{atm}$ aux sites de Dome C en bleu [Dreyfus et al., 2007] ; [Landais et al., 2013] ; [Bazin et al., 2016], Vostok en orange [Petit et al., 1999] ; [Bazin et al., 2013] et de Dome F en vert [Kawamura et al., 2007]. Les courbes de Dome C et Vostok sont représentées sur la chronologie AICC2012. La courbe de Dome F est présentée sur AICC2012 entre 0 et 216 ka à partir de la synchronisation avec les éruptions volcaniques [Fujita et al., 2015]. La précession est également représentée [Laskar et al., 2004], de même que la courbe composite de $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques [Cheng et al., 2016].

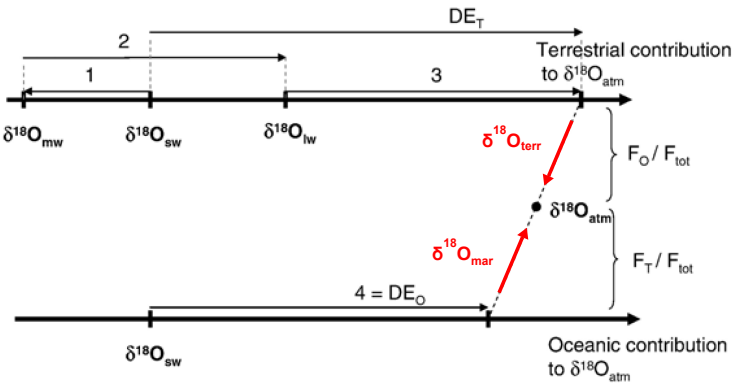
Le temps de résidence de l'$O_2$ dans l'atmosphère est d'environ 1200 ans, supérieur au temps de mélange inter-hémisphérique (6 mois à 1 an), ce qui ne permet pas de regarder les variations à l'échelle de la centaine d'années. Le $\delta^{18}O_{atm}$ est principalement utilisé comme marqueur pour la datation des carottes de glace. Les processus qui contrôlent les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ au cours des derniers 800 ka sont encore mal connus même si plusieurs études ont montré des similitudes entre ses variations et la précession ou l'insolation au 21 juin à 65°N, notamment avec des valeurs maximales lors des périodes glaciaires et minimales lors des périodes interglaciaires [Jouzel et al., 1996] ; [Petit et al., 1999] ; Jouzel et al. [2002] ; [Dreyfus et al., 2007] ; [Landais et al., 2010]. Ses variations sont notamment contrôlées par des modifications climatiques et environnementales au niveau des surfaces continentales de l'hémisphère Nord. En effet, la pré-

cession influence la distribution des précipitations aux basses latitudes, qui sont les surfaces terrestres les plus productives, ce qui modifie la composition isotopique de l'eau de pluie et donc du $\delta^{18}O_{atm}$. Des variations plus rapides à l'échelle millénaire se superposent également aux variations orbitales et sont particulièrement marquées lors des périodes glaciaires, en lien avec les évènements de Heinrich [Landais et al., 2007b] ; [Severinghaus et al., 2009].
Des méthodes de datation des carottes de glace basées sur l'alignement du $\delta^{18}O_{atm}$ avec l'insolation au 21 juin à 65°N ont ainsi été développées [Shackleton, 2000] ; [Parrenin et al., 2001] ; [Dreyfus et al., 2007] ; [Parrenin et al., 2007] ; [Bazin et al., 2013], dans le cas où le comptage des couches annuelles n'est pas possible comme pour le site d'EPICA Dome C où le faible taux d'accumulation (2,5 cm en équivalent eau par an) rend l'identification de ces couches impossible. Cela a ainsi permis de construire une chronologie des carottes de glace comme par exemple les chronologies EDC3 ou AICC2012 (Section 2.4), avec toutefois des incertitudes élevées. Le Chapitre 3 proposera une redéfinition des contraintes du $\delta^{18}O_{atm}$ afin de réduire les incertitudes associées à la chronologie des carottes de glace.

En parallèle, le $\delta^{18}O_{atm}$ présente une corrélation importante de 0,7 au cours des derniers 640 ka avec l'enregistrement composite du $\delta^{18}O_{calcite}$ mesuré dans les spéléothèmes est-asiatiques [Cheng et al., 2016] (Figure 1.1). Comme le $\delta^{18}O_{calcite}$ est fortement influencé par le cycle hydrologique local, cette corrélation suggère que le $\delta^{18}O_{atm}$ subit aussi cette influence. Les deux proxies partagent les mêmes variations orbitales (contrôlées par l'insolation et par les modifications de l'intensité des précipitations) et millénaires (notamment lors de périodes de faible activité de la mousson associées à un déplacement vers le Sud de la Zone de Convergence Intertropicale suite à un évènement de Heinrich) [Severinghaus et al., 2009] ; [Landais et al., 2010] ; [Seltzer et al., 2017] ; [Extier et al., 2018]. Mais les mécanismes qui contrôlent les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ sont encore mal quantifiés.

Les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ sont principalement la conséquence des flux d'oxygène (photosynthèse et respiration) entre la biosphère terrestre et marine et l'atmosphère. D'autres processus liés au cycle hydrologique et aux réactions photochimiques dans la stratosphère détaillés dans les sections suivantes provoquent aussi le fractionnement de l'oxygène et ont comme conséquences des variations du $\delta^{18}O_{atm}$. Avant de rentrer dans le détail des processus, le schéma 1.2

représente les contributions majeures au $\delta^{18}O_{atm}$. Les études précédentes de Guy et al. [1993] ; Eisenstadt et al. [2010] ont montré que l'oxygène produit a la même composition que le $\delta^{18}O$ de l'eau à l'endroit de la photosynthèse, soit le $\delta^{18}O_{feuille}$ pour la biosphère terrestre et le $\delta^{18}O_{mar}$ pour la biosphère marine. Pour la biosphère terrestre, la composition du $\delta^{18}O_{eaudemer}$ est transmise au $\delta^{18}O$ de l'eau météorique par fractionnement pendant l'évaporation et la précipitation (flèche 1 sur la Figure 1.2). Puis, le $\delta^{18}O_{météorique}$ est transmis au $\delta^{18}O_{feuille}$ lors du fractionnement par évapotranspiration (flèche 2) et enfin au $\delta^{18}O_{atm}$ via le $\delta^{18}O_{terr}$ lors du fractionnement pendant la respiration et le mélange avec l'oxygène produit par photosynthèse (flèche 3). Concernant la biosphère marine, la composition du $\delta^{18}O_{eaudemer}$ est transmise au $\delta^{18}O_{atm}$ via le $\delta^{18}O_{mar}$ lors du fractionnement de l'oxygène pendant la respiration et du mélange avec l'oxygène produit par photosynthèse (flèche 4).




| Notation | Definition |
|---|---|
| $\delta^{18}O_{sw}$ | Mean isotopic composition of sea water |
| $\delta^{18}O_{mw}$ | Mean isotopic composition of meteoric water consumed by plants |
| $\delta^{18}O_{lw}$ | Mean isotopic composition of leaf water |
| $F_T$ | Flux of oxygen issued from the terrestrial biosphere |
| $F_O$ | Flux of oxygen issued from the oceanic biosphere |
| $F_{tot}$ | Total flux of oxygen = $F_T + F_O$ |
| 1 | Fractionation of water during evaporation and precipitation |
| 2 | Fractionation of water during evapotranspiration |
| 3 | Fractionation of atmospheric oxygen during terrestrial respiration and mixing with oxygen issued from leaf photosynthesis |
| 4 | Fractionation of atmospheric oxygen during oceanic respiration and mixing with oxygen issued from oceanic photosynthesis |
| DE$_T$ | Terrestrial Dole effect = 23,5 ±2,3 ‰ (Luz and Barkan, 2011) |
| DE$_O$ | Oceanic Dole effect = 23,5 ±1,7 ‰ (Luz and Barkan, 2011) |

FIGURE 1.2 – Schéma des principales contributions au $\delta^{18}O_{atm}$ (les petits effets comme les fractionnements pendant l'échange océan-atmosphère et la discrimination associée à l'échange de l'oxygène avec la stratosphère ne sont pas présentés) (modifié d'après Landais et al. [2007b]).

Le rôle de la précession sur le volume des calottes de glace et donc sur le niveau marin a été mis en évidence par Imbrie and Imbrie [1980] et impacte directement la composition isotopique de l'eau de mer, transmise ensuite au $\delta^{18}O_{atm}$ par photosynthèse (Figure 1.2). L'effet Dole (noté DE) a été défini par Dole [1935] et Morita [1935] comme étant l'enrichissement du $\delta^{18}O_{atm}$ par rapport au $\delta^{18}O_{eaudemer}$ et est représenté par les flèches 3 et 4 sur la Figure 1.2 pour l'effet Dole terrestre ($DE_T$) et océanique ($DE_O$). Il permet de s'affranchir de l'effet du niveau marin puisque le $\delta^{18}O_{atm}$ est fortement influencé par le $\delta^{18}O_{eaudemer}$ via la photosynthèse marine et terrestre. L'effet Dole permet ainsi d'étudier l'influence du cycle hydrologique et de la productivité de la biosphère sur la composition du $\delta^{18}O_{atm}$. La valeur moyenne de l'effet Dole a été mesurée à 23,88 ‰ par Barkan and Luz [2005]. Cette valeur globale actuelle de l'effet Dole a également été calculée à 23,2 ± 2,1 ‰ par Luz and Barkan [2011] d'après la formulation de Bender et al. [1994] :

$$DE = \delta^{18}O_{atm} - \delta^{18}O_{eaudemer} = (DE_T * f_{terrestre}) + (DE_O * f_{océan}) - \varepsilon_{stratosphère} \quad (1.1)$$

Cette équation intègre les contributions de l'effet Dole terrestre $DE_T$ et océanique $DE_O$ calculés respectivement à des valeurs de 23,5 ± 2,3 ‰ et 23,5 ± 1,7 ‰ [Luz and Barkan, 2011], les fractions terrestre $f_{terrestre}$ et marine $f_{océan}$ de la production d'oxygène étant estimées à 0,63 et 0,37 [Luz and Barkan, 2011] et le fractionnement isotopique dans la stratosphère avec une valeur de 0,4 ‰, considéré comme n'ayant qu'un effet négligeable sur la valeur de l'effet Dole [Bender et al., 1994].

Historiquement, les premières interprétations des variations de l'effet Dole se sont fondées sur des changements du ratio entre la productivité terrestre et océanique, le $\delta^{18}O$ de l'oxygène produit par la biosphère terrestre étant plus positif que celui échangé avec la biosphère marine ($DE_T$ plus grand que le $DE_O$) [Malaizé et al., 1999] ; [Hoffmann et al., 2004]. Toutefois, de récentes estimations du fractionnement de l'oxygène lors de la respiration par la biosphère marine remettent en question ces hypothèses [Luz and Barkan, 2011].

Le $\delta^{18}O_{atm}$ résulte donc des différents flux associés à la biosphère terrestre et marine, au cycle hydrologique ainsi qu'aux flux liés aux échanges d'oxygène avec la stratosphère résumés sur la Figure 1.3.

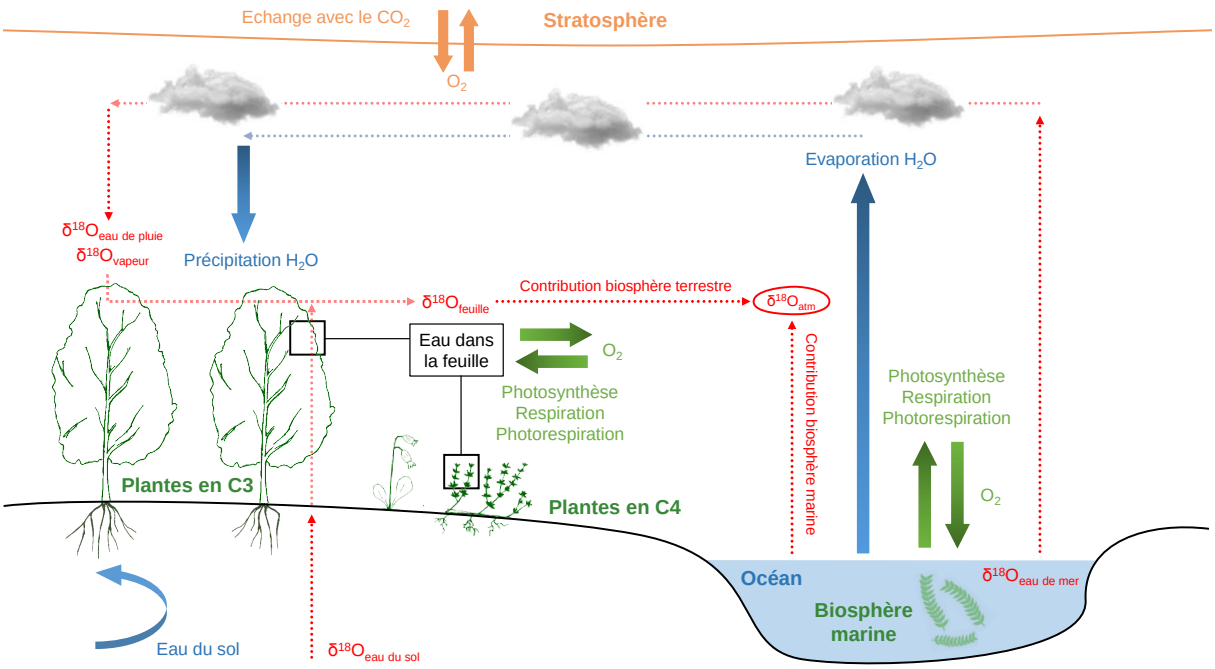



FIGURE 1.3 – Schéma du cycle de l'oxygène. Les flux associés au cycle de l'eau sont représentés en bleu, les flux d'oxygène avec la biosphère continentale et marine en rouge et les flux d'oxygène avec la stratosphère en orange.

Les sections suivantes présentent les différents processus associés à la photosynthèse et à la respiration de la biosphère terrestre, contribuant à la valeur globale du $\delta^{18}O_{atm}$. Les équations utilisées pour estimer la production d'oxygène, la composition isotopique de l'eau dans les feuilles, les facteurs de fractionnement isotopique associés aux différents types de respiration et autres, seront par la suite intégrées dans un modèle climatique de complexité intermédiaire couplé à un modèle de végétation afin d'estimer la contribution des influences sur le $\delta^{18}O_{atm}$. Les valeurs simulées du $\delta^{18}O_{atm}$ pour des périodes de temps spécifiques ou à l'échelle d'un cycle glaciaire-interglaciaire seront ensuite présentées dans les chapitres suivants et pourront être comparées à celles mesurées dans la carotte de glace d'EPICA Dome C.

## 1.2 Cycle de l'oxygène et processus de fractionnement

### 1.2.1 Processus associés à la biosphère terrestre

#### 1.2.1.1 Cycle hydrologique et photosynthèse

L'eau de pluie consommée par la biosphère terrestre, qui devient ensuite l'eau des feuilles, est utilisée lors du processus de photosynthèse par la biosphère terrestre qui produit de l'$O_2$ à partir de carbone inorganique :

$$6CO_2 + 12H_2O + \text{lumière} \rightarrow C_6H_{12}O_6 + 6O_2 + 6H_2O \tag{1.2}$$

La composition isotopique de l'eau de pluie dépend des variations du cycle hydrologique, elles-mêmes contrôlées par les variations d'insolation et de la circulation atmosphérique à l'échelle millénaire [Yuan, 2004]. Le transport de l'eau météorique (i.e. eau de pluie) des zones tropicales où se déroule l'évaporation jusqu'aux zones polaires est soumis au phénomène de distillation de Rayleigh. Au cours de ce transfert vers les hautes latitudes, les masses d'air se refroidissent et se condensent. Dans ce cas, il y a un fractionnement isotopique et un appauvrissement progressif en $\delta^{18}O$ avec perte de l'isotope lourd (soit une diminution du $^{18}O$) (Figure 1.4). Ainsi les calottes de glace ont un $\delta^{18}O$ plus appauvri que l'océan puisque les isotopes lourds ont tendance à aller dans la phase condensée. Même sans considérer les zones englacées, le $\delta^{18}O$ de l'eau de pluie présente une diminution au niveau des zones de végétation entre les basses et hautes latitudes, associée au processus de distillation [Araguas-Araguas et al., 1996]. Dans le cas d'un refroidissement global du climat conduisant à une période glaciaire, la composition isotopique moyenne de l'eau météorique consommée par les plantes est enrichie. La baisse du niveau marin au cours de cette période, suite au stockage de l'eau sous forme de glace aux pôles, conduit également à une augmentation de la valeur du $\delta^{18}O_{eaudemer}$. Cette augmentation va se refléter dans les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ puisque l'eau consommée par les plantes lors de la photosynthèse est issue de l'évaporation de l'eau de mer.

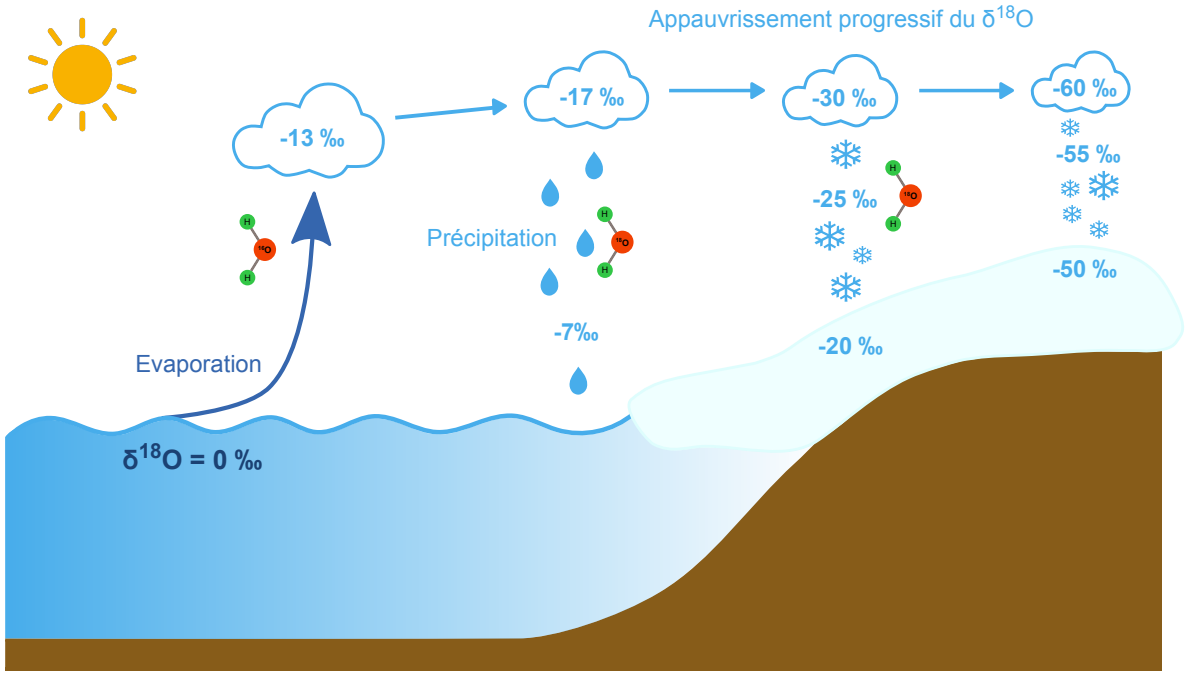



FIGURE 1.4 – Schéma représentant le fractionnement isotopique lors du cycle de l'eau (adapté de Casado [2016]).

Alors que sur de longues échelles de temps, le $\delta^{18}O_{mar}$ ne présente pas de variations spatiales et temporelles supérieures à quelques ‰, le $\delta^{18}O_{feuille}$ présente des variations plus importantes [Hoffmann et al., 2004] ; [Landais et al., 2007a]. A l'échelle du globe, le $\delta^{18}O_{feuille}$ n'est pas uniforme puisqu'il dépend directement du climat aux différentes latitudes et du $\delta^{18}O$ de l'eau météorique. Ses variations sont notamment contrôlées par l'humidité relative au niveau des feuilles et par le $\delta^{18}O$ de l'eau météorique consommé par les plantes via la vapeur d'eau et l'eau du sol. Ainsi, une baisse relative de l'humidité a pour effet d'augmenter le $\delta^{18}O_{feuille}$ et par conséquent le $\delta^{18}O_{atm}$ produit par photosynthèse. Le coefficient de fractionnement entre le $\delta^{18}O$ de l'eau dans les feuilles et le $\delta^{18}O$ de l'oxygène produit par photosynthèse a été estimé initialement à 1 (aucun fractionnement) [Guy et al., 1993] ; [Eisenstadt et al., 2010]. En suivant l'équation développée par Craig and Gordon [1965] pour estimer le $\delta^{18}O$ d'une étendue d'eau qui est évaporée (comme un lac) et en l'appliquant lors de la transpiration des plantes en considérant les conditions à l'équilibre [Dongmann, 1974], le $\delta^{18}O_{feuille}$ peut être écrit de la manière suivante :

$$\delta^{18}O_{feuille} = h(\delta^{18}O_{vapeur} + \varepsilon_{équilibre}) + (1-h)(\delta^{18}O_{eaudusol} + \varepsilon_{équilibre} - \varepsilon_{cinétique}) \quad (1.3)$$

avec h l'humidité relative au niveau de la surface de la feuille. Le $\delta^{18}O_{vapeur}$ et le $\delta^{18}O_{eaudusol}$ sont respectivement le contenu en $\delta^{18}O$ dans la vapeur d'eau au niveau de la surface de la feuille et dans l'eau du sol. $\varepsilon_{équilibre}$ est l'enrichissement isotopique du $H_2^{18}O/H_2^{16}O$ entre l'eau et la vapeur à l'état d'équilibre dépendant de la température T au niveau de la feuille [Majoube, 1971] et pouvant être écrit de la façon suivante pour le fractionnement en oxygène 18 :

$$ln(\alpha_{équilibre}) = \frac{1,137}{T^2} * 10^3 - \frac{0,4156}{T} - 2,0667 * 10^{-3} \tag{1.4}$$

$\varepsilon_{cinétique}$ est quant à lui l'enrichissement isotopique du $H_2^{18}O/H_2^{16}O$ lors des échanges diffusifs des molécules d'eau en dehors des stomates (lorsque l'humidité est en dessous du seuil de saturation). Son expression peut être donnée d'après la formulation de Farquhar et al. [1989] ; Cernusak et al. [2016] pour le $^{18}O$ :

$$\varepsilon^{O}_{cinétique} = \frac{28r_s + 19r_b}{r_s + r_b} \tag{1.5}$$

avec $r_s$ la résistance stomatique et $r_b$ la résistance de la couche limite. La valeur de 28 ‰ (calculée comme 1,0285-1 * 1000) correspond à la diffusivité des molécules d'eau issue du ratio de diffusion D/D* - 1 associé aux molécules $H_2^{16}O$ (D) et $H_2^{18}O$ (D*) [Merlivat and Nief, 1967]. Une valeur plus extrême de 32 ‰ (soit 1,032-1 * 1000) a également été déduite à partir d'expériences pour le fractionnement associé à la diffusion par Cappa et al. [2003]. La valeur de 19 ‰ correspond quant à elle au facteur de diffusion dans la couche limite, estimé comme 2/3 des valeurs de diffusion via les stomates [Mook and Rozanski, 2000]. La valeur globale du $\varepsilon_{cinétique}$ est ainsi estimée entre 20 et 28 ‰ selon l'importance de la résistance des stomates et de la couche limite [Farquhar et al., 1989] ; [Hoffmann et al., 2004] ; [Reutenauer et al., 2015].

Rappels :

$$\alpha_{équilibre} = \frac{R_{liquide}}{R_{vapeur}} \tag{1.6}$$

$$\varepsilon_{équilibre} = (\alpha_{équilibre} - 1) * 1000 \tag{1.7}$$

$$\delta^{18}O_{vapeur} = (\frac{R_{vapeuréchantillon}}{R_{vapeurstandard}} - 1) * 1000 \tag{1.8}$$

$$\delta^{18}O_{vapeur} = \delta^{18}O_{liquide} + \varepsilon_{équilibre} \tag{1.9}$$

$$R = \frac{H_2^{18}O}{H_2^{16}O} \tag{1.10}$$

Différentes études ont réalisé des mesures du $\delta^{18}O_{feuille}$ dans des environnements variés, sachant que la composition isotopique de l'eau dans la feuille dépend de la source d'eau utilisée et de l'effet de la transpiration des feuilles (Equation 1.3) [Bariac et al., 1989] ; [Farquhar and Lloyd, 1993] ; [Wang et al., 1998] ; [Helliker and Ehleringer, 2000] ; [Cernusak et al., 2002] ; [Barbour et al., 2004] ; [Landais et al., 2006]. En comparant ces mesures avec la formulation de Craig and Gordon [1965] pour calculer le $\delta^{18}O_{feuille}$, certaines de ces études ont obtenu une valeur de la composition isotopique de l'eau dans les feuilles plus élevée par rapport aux observations. Cette différence peut s'expliquer par une valeur trop élevée du $\varepsilon_{cinétique}$, lorsque la valeur de fractionnement des molécules d'eau via les stomates est prise comme 32 ‰ [Cappa et al., 2003]. Une deuxième explication de la surestimation de la valeur moyenne isotopique dans la feuille serait liée au fait que la composition isotopique n'est pas homogène dans la feuille puisque la valeur mesurée est un mélange entre de l'eau enrichie au niveau des sites d'évaporation et de l'eau appauvrie dans les tissus de la feuille provenant de l'eau prélevée dans le sol par les racines. La variation de la composition isotopique de l'eau entre les tissus de la feuille et les sites d'évaporation est donc considérée comme étant dépendante de la rétrodiffusion de l'eau enrichie en $^{18}O$ vers la feuille et de l'advection de l'eau appauvrie, définie comme l'effet Péclet [Farquhar and Lloyd, 1993].

Les précédentes estimations du $\delta^{18}O_{feuille}$ via des mesures locales sur des feuilles puis par l'application de la formulation de Craig and Gordon [1965] permettent donc d'estimer la valeur globale de la composition isotopique de l'eau dans les feuilles. Afin d'étudier les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ pour des périodes de temps passées, il est nécessaire d'avoir une estimation passée globale de la composition isotopique de l'eau dans les feuilles via l'intégration des équations présentées précédemment dans un modèle climatique.

#### 1.2.1.2 Quantification des flux d'oxygène

La production terrestre d'oxygène permet de quantifier les régions de végétation les plus productives et qui contribuent le plus à la valeur du $\delta^{18}O_{feuille}$.
A partir de modèles de végétation plus ou moins complexes, il est possible d'estimer la productivité globale en carbone associée à la photosynthèse de la biosphère terrestre. La GPP (Gross Primary Productivity ou Productivité Primaire Brute) est définie comme la production de car-

bone lors de la photosynthèse est largement étudiée et mieux connue que la production d'oxygène notée $GPPO_2$. Il est possible de relier la GPP et la $GPPO_2$ de la manière suivante selon les études de [Von Caemmerer, 2000] ; [Hoffmann et al., 2004] :

$$\text{GPP} = \text{carboxylation} - \frac{1}{2}\text{oxygénation} = (1 - 0,5\xi) * V_{carboxylation} \tag{1.11}$$

avec la carboxylation et l'oxygénation les étapes respectives de fixation du $CO_2$ et de l'$O_2$ lors de la photosynthèse, $\xi$ la relation molaire entre l'oxygénation et la carboxylation et $V_{carboxylation}$ le taux de carboxylation.

Pour ce qui est du flux d'oxygène $GPPO_2$ produit par la biosphère terrestre, l'équation est la suivante [Von Caemmerer, 2000] ; [Hoffmann et al., 2004] :

$$GPPO_2 = \text{carboxylation} + \text{oxygénation} = (1 + \xi) * V_{carboxylation} \tag{1.12}$$

Farquhar et al. [1980] ont défini le terme $\xi$ comme la relation molaire entre l'oxygénation et la carboxylation du RuBP (ribulose-1,5-bisphosphate), molécule accepteur de carbone :

$$\xi = \frac{V_{oxygénation}}{V_{carboxylation}} \tag{1.13}$$

On a donc pour chaque mole de $CO_2$ photosynthétisée (0,5 $\xi$), trois moles d'$O_2$ (1,5 $\xi$) impliquées : deux moles vont servir à l'oxydation du RuBP et une mole pour l'oxydation du Phosphoglycolate. Le point de compensation du $CO_2$, noté $\Gamma^*$, est défini comme étant la concentration en $CO_2$ pour laquelle il y a autant de carboxylation que d'oxygénation et se retrouve dans le terme $\xi$ qui peut alors s'écrire de la manière suivante [Hoffmann et al., 2004] :

$$\xi = \frac{2\Gamma^*}{C_i} \tag{1.14}$$

Cela permet d'obtenir une relation entre GPP et $GPPO_2$ à partir des équations précédentes :

$$\frac{GPPO_2}{GPPO} = \frac{1+\xi}{1-0,5\xi} = \frac{C_i + 2\Gamma^*}{C_i - \Gamma^*} \tag{1.15}$$

avec $C_i$ la pression en $CO_2$ dans le milieu intercellulaire et $\Gamma^*$ la concentration en $CO_2$ avec autant de carboxylation que d'oxygénation qui peut être estimée comme une concentration fonction de la température d'après Laing et al. [1974] et Lloyd and Farquhar [1994] avec l'équation suivante :

$$\Gamma^* = 2 * T_{new} = 2 * (T_{old} + \gamma * (T_{max} - T_{min})) \tag{1.16}$$

avec $T_{new}$ la température moyenne de l'air après correction exprimée en fonction de $T_{old}$ la température moyenne de l'air avant correction, l'amplitude journalière des températures maximales $T_{max}$ et minimales $T_{min}$, et $\gamma$ un paramètre fixé à 0,1 pour prendre en compte la réduction de l'humidité au niveau des feuilles de 15 % en comparaison à la moyenne mensuelle simulée par un modèle de circulation général atmosphérique [Hoffmann et al., 2004].

Lloyd and Farquhar [1994] ont quant à eux défini $C_i$ selon plusieurs paramètres climatiques et biologiques. Il y d'abord la concentration en $CO_2$ de l'air ambiant (notée $C_a$), le facteur 1,6 qui représente le rapport des diffusivités de la vapeur d'eau et du $CO_2$ dans l'air, le déficit de la fraction de vapeur entre la feuille et l'air lors de la photosynthèse (noté D et qui varie selon le type de végétation, Table1.1), le point de compensation du $CO_2$ noté $\Gamma^*$ et corrigé d'un facteur 1,05 pour prendre en compte le flux de chaleur sensible de la feuille vers l'atmosphère pendant la photosynthèse et enfin le coût moyen de l'eau pour chaque PFT (Plant Functional Type soit le type de plante de l'environnement) lors du gain de carbone (noté $\lambda$, Table 1.1) :

$$C_i = C_a - \sqrt{\frac{1,6 * D * (C_a - 1,05\Gamma^*)}{\lambda}} \tag{1.17}$$

A partir des équations ci-dessus, il est possible d'exprimer la valeur de production d'oxygène $GPPO_2$ par photosynthèse en fonction de la GPP, des paramètres climatiques, du type de végétation et de la proportion de respiration liée à la réaction de Mehler détaillée ci-après :

$$GPPO_2 = [GPP * \frac{(C_i + 2\Gamma^*)}{(C_i - \Gamma^*)}]/(1 - f_{mehler}) \quad (1.18)$$

#### 1.2.1.3 Les mécanismes de respiration

Plusieurs processus de respiration consomment l'oxygène produit par photosynthèse en enrichissant le $^{18}O$ de l'atmosphère de 18 ‰ en moyenne (chaque processus ayant un enrichissement différent) [Bender et al., 1994] ; [Beerling, 1999] ; [Malaizé et al., 1999]. Ces mécanismes de consommation d'$O_2$ sont la réaction de Mehler, la photorespiration et la respiration dans le noir pour le sol et les feuilles. Il est essentiel de comprendre ces processus de respiration pour estimer le $\delta^{18}O_{atm}$ car la discrimination isotopique n'est pas la même pour tous les processus qui consomment de l'oxygène. Les valeurs de fraction associées à ces processus de respiration sont données par la suite comme exemple pour le pré-industriel et le Dernier Maximum Glaciaire sachant que la somme de toutes les fractions associées à ces processus de respiration est égale à 1.

La **réaction de Mehler** définie par Mehler [1951] est une réaction au cours de laquelle l'oxygène joue le rôle d'accepteur d'électron à la place de la NADP+ (glycérol déshydrogénase) au niveau du système photosynthétique I (noté PS I) des chloroplastes. La molécule d'oxygène $O_2$ va ainsi être réduite en molécule d'eau $H_2O$ sous l'effet de la lumière au cours de plusieurs étapes successives. Il y a tout d'abord réduction de la molécule d'$O_2$ dans le système photosynthétique I en superoxyde $O_2^-$. Puis cet ion est transformé en molécule $H_2O_2$, qui est ensuite réduite en molécule $H_2O$ via la réaction ascorbate peroxydase dans le chloroplaste [Asada, 1999]. Cette réaction de Mehler est donc associée à une photoréduction directe de l'$O_2$ qui contribue pour 10 % de l'ensemble des flux de respiration. En considérant que la fraction de respiration associée à la réaction de Mehler, i.e. $f_{mehler}$, ne dépend pas de la distribution spatiale et temporelle de la végétation, Badger et al. [2000] ont défini $f_{mehler}$ comme étant égal à 0,1 (identique au pré-industriel et au Dernier Maximum Glaciaire).

La fraction du flux d'oxygène correspondant à la **photorespiration**, notée $f_{photorespiration}$, dépend du PFT et de plusieurs paramètres associés comme la concentration en $CO_2$ et la température au niveau de la feuille. La respiration et la photorespiration relâchent toutes deux du $CO_2$

mais la différence entre les deux processus est que la photorespiration se déroule en journée comme la photosynthèse, au contraire de la respiration qui se fait pendant la nuit. Lors de la photosynthèse, la rubisco fixe le $CO_2$ mais peut aussi fixer l'$O_2$. Dans ce cas, le $CO_2$ est alors redirigé vers le cycle d'oxydation du carbone lors de la photorespiration. Chez les plantes en C4, l'intensité de la photorespiration est moins importante que chez les plantes en C3 puisque les plantes en C4 minimisent la photorespiration via la réduction de l'activité oxygénase de la rubisco au profit de l'activité carboxylase [Von Caemmerer, 2000]. Elles ont donc un mécanisme qui concentre le $CO_2$ près des feuilles.

A partir des équations détaillées dans la section précédente, il est possible d'exprimer la fraction correspondant au flux d'oxygène lors de la photorespiration en fonction des paramètres climatiques et du type de végétation [Lloyd and Farquhar, 1994] :

$$f_{photorespiration} = \frac{\xi}{1+\xi} = \frac{(\frac{2\Gamma^*}{C_i})}{1+(\frac{2\Gamma^*}{C_i})} \tag{1.19}$$

Les paramètres climatiques et notamment la concentration en $CO_2$ ont un impact direct et complexe sur la fraction de photorespiration. Dans le cas de l'augmentation en $CO_2$, la fraction associée à la photorespiration diminue. Mais une modification de la végétation avec un remplacement des plantes en C4 par des plantes en C3 privilégiées dans le cas d'une plus forte concentration en $CO_2$, aurait pour effet d'augmenter la fraction associée à la photorespiration. En addition de mesures in situ sur plusieurs types de plantes, une intégration globale du $f_{photorespiration}$ peut être réalisée. Le calcul se base sur les équations de Lloyd and Farquhar [1994] avec le pourcentage de type de végétation simulé à partir d'un modèle de végétation. La valeur globale de $f_{photorespiration}$ a été estimée comme 0,3 pour le pré-industriel et 0,15 pour le Dernier Maximum Glaciaire [Landais et al., 2007a].

La **respiration dans le noir** se divise en deux termes que sont la respiration dans le sol et dans les feuilles. Ces processus de respiration consomment de l'oxygène sans lumière, au contraire de la réaction de Mehler ou de la photorespiration. Pour la respiration dans le sol (respectivement dans les feuilles), Schlesinger and Andrews [2000] ont estimé cette fraction comme environ 63 % de la GPP globale (respectivement 37 % de la GPP globale). A partir d'un modèle

de végétation, ce flux de carbone peut être converti en flux d'oxygène ce qui donne une estimation du facteur associé à la respiration dans le sol $f_{darksoil}$ comme étant 44 % de la $GPPO_2$ [Landais et al., 2007a].

Concernant la respiration dans les feuilles, la mitochondrie peut consommer de l'oxygène sans lumière et ainsi produire de l'ATP (adénosine triphosphate) au travers de plusieurs processus : la glycolyse avec dégradation du glucose en pyruvate, la conversion du pyruvate en $CO_2$ via le cycle de Krebs ou encore la phosphorylation oxydative. Il est ensuite possible d'estimer la valeur de $f_{darkleaves}$ à partir des autres facteurs associés aux processus de respiration sachant que $f_{darkleaves}$ = 1 - $f_{mehler}$ - $f_{photorespiration}$ - $f_{darksoil}$. En suivant les valeurs obtenues par Landais et al. [2007a] pour les autres processus de respiration, cela donne une valeur $f_{darkleaves}$ de 0,16 au pré-industriel. Pour calculer la valeur de ces paramètres au Dernier Maximum Glaciaire et sans estimation de la proportion de la respiration dans le sol, le rapport $f_{darkleaves}$ / $f_{darksoil}$ est considéré comme constant par rapport au pré-industriel. L'estimation de la fraction de photorespiration est ensuite utilisée pour calculer la fraction de respiration dans le noir pour le sol et les feuilles. Ainsi Landais et al. [2007a] ont obtenu des valeurs globales de 0,55 et 0,20 respectivement pour $f_{darksoil}$ et $f_{darkleaves}$.

#### 1.2.1.4 Fractionnement isotopique lié aux processus de respiration

Le fractionnement isotopique terrestre global, associé à l'utilisation d'oxygène lors de la respiration, peut se décomposer en plusieurs termes :

$$\begin{aligned} {}^{18}\alpha_{respiration} = &({}^{18}\alpha_{photorespiration} * f_{photorespiration}) + ({}^{18}\alpha_{mehler} * f_{mehler}) \\ &+ ({}^{18}\alpha_{darksoil} * f_{darksoil}) + ({}^{18}\alpha_{darkleaves} * f_{darkleaves}) \end{aligned} \tag{1.20}$$

avec ${}^{18}\alpha$ les différents facteurs de fractionnement isotopique associés à la photorespiration, à la réaction de Mehler, à la respiration du sol et à la respiration des feuilles dans le noir, ainsi que f les fractions correspondant aux flux d'oxygène respirés (présentés dans la section précédente et résumés dans la Table 1.2).

Les valeurs d'enrichissement isotopique $^{18}\varepsilon$ (soit $^{18}\alpha$-1 * 1000) ont été définies par Helman [2005] pour la respiration de Mehler et la photorespiration comme 10,8 et 21,4 ‰ (Tableau 1.2). Ces valeurs sont identiques au pré-industriel et au Dernier Maximum Glaciaire.

Pour la respiration dans le sol, l'amplitude du fractionnement isotopique n'est pas identique à celle dans les feuilles mais varie selon la nature de l'environnement et l'effet de diffusion dans le sol. Dans le cas d'une forêt tropicale la valeur de l'enrichissement isotopique est de 10,1 ± 1,5 ‰, pour les zones arbustives tropicales 15,4 ± 1,6 ‰, pour une forêt tempérée 17,8 ± 1 ‰, dans les régions boisées méditerranéennes 17,9 ± 2,5 ‰ et enfin dans les forêts boréales 22,4 ± 3,6 ‰ [Angert et al., 2003]. Les valeurs de fractionnement plus faibles dans les zones tropicales s'expliquent par une diffusion plus lente dans le sol et dans les tissus racinaires, limitant la concentration en $O_2$ aux sites de respiration. Les valeurs plus élevées notées dans les zones boréales peuvent être dues au fait que la respiration se fait de manière plus importante par oxydase alternative, qui possède une valeur d'enrichissement d'$O_2$ plus élevée d'environ 27 ‰. En plus de la nature des sols, la diffusion dans les agrégats du sol et les tissus racinaires est limitée dans le cas d'une faible concentration en $O_2$ au site de respiration, impactant le fractionnement isotopique dans le sol. De plus, dans le cas d'un sol saturé en eau, très peu d'oxygène sera transmis du site de respiration vers l'atmosphère, au contraire d'un sol sec [Angert et al., 2001]. L'enrichissement isotopique global suite à la respiration dans le sol $^{18}\varepsilon_{darksoil}$ est estimé à partir de la respiration en fonction des types de sol à 15,6 ‰ au pré-industriel et 16,1 ‰ pendant le Dernier Maximum Glaciaire [Landais et al., 2007a]. Sa valeur est calculée à partir du facteur de fractionnement $^{18}\alpha_{darksoil}$, dépendant de l'enrichissement isotopique $D_{soil}$ (Table 1.1) :

$$^{18}\alpha_{darksoil} = 1 - (\frac{D_{soil}}{1000}) \tag{1.21}$$

Concernant la respiration dans le noir des feuilles, l'étude de Angert et al. [2003] a estimé que celle-ci se faisait par deux voies différentes : par oxydase alternative (notée AOX) à un taux de 10 % et par cytochrome oxydase (notée COX) à 90 %. La valeur moyenne globale de l'enrichissement $^{18}\varepsilon_{darkleaves}$ est ainsi estimée constante à 19 ‰ pour le pré-industriel et le Dernier Maximum Glaciaire [Landais et al., 2007a].

| PFT | $\lambda$ | D | $D_{soil}$ |
|---|---|---|---|
| C3 herbs (humid) | 700 | 17 | 17,8 |
| C3 herbs (dry) | 700 | 17 | 17,8 |
| C4 herbs | 700 | 17 | 17,8 |
| Broadleaved summergreen arctic shrubs | 250 | 8 | 22,4 |
| Broadleaved summergreen boreal/temperate cold shrubs | 700 | 19,6 | 22,4 |
| Broadleaved summergreen temperate warm shrubs | 700 | 19,6 | 15,4 |
| Broadleaved evergreen boreal/temperate cold shrubs | 250 | 8 | 22,4 |
| Broadleaved evergreen temperate cold trees | 500 | 11,4 | 17,8 |
| Broadleaved evergreen xeric shrubs | 500 | 23,3 | 17,9 |
| Subdesertic shrubs | 1000 | 37,1 | 15,4 |
| Tropical shrubs | 300 | 10,5 | 15,4 |
| Needleleaved evergreen boreal/temperate cold trees | 250 | 9,4 | 22,4 |
| Needleleaved evergreen temperate cold trees | 250 | 9,4 | 17,8 |
| Needleleaved evergreen drought tolerant trees | 500 | 23,3 | 17,9 |
| Needleleaved evergreen drought tolerant thermophilous trees | 500 | 23,3 | 17,9 |
| Needleleaved evergreen subtropical trees | 1000 | 13,4 | 10,1 |
| Needleleaved summergreen boreal/temperate cold trees | 300 | 10,7 | 22,4 |
| Needleleaved summergreen subtropical swamp trees | 300 | 10,5 | 10,1 |
| Broadleaved evergreen drought tolerant trees | 500 | 23,3 | 17,9 |
| Broadleaved evergreen drought tolerant thermophilous trees | 500 | 23,3 | 17,9 |
| Broadleaved evergreen subtropical trees | 1000 | 13,4 | 10,1 |
| Broadleaved summergreen boreal/temperate cold trees | 1250 | 10,9 | 22,4 |
| Broadleaved summergreen temperate cold trees | 1250 | 10,9 | 17,8 |
| Broadleaved summergreen temperate warm trees | 1500 | 18,7 | 17,8 |
| Broadleaved raingreen tropical trees | 750 | 13 | 10,1 |
| Broadleaved evergreen tropical trees | 750 | 13 | 10,1 |

TABLE 1.1 – Valeurs du déficit de la fraction de vapeur entre la feuille et l'air lors de la photosynthèse (D, [Lloyd and Farquhar, 1994]), du coût moyen de l'eau de chaque PFT lors du gain de carbone ($\lambda$, [Lloyd and Farquhar, 1994]) et de l'enrichissement isotopique de la végétation lors de la respiration dans les sols ($D_{soil}$, [Angert et al., 2003]) pour les 26 PFTs du modèle CARAIB.

| | Pré-industriel | | Dernier Maximum Glaciaire | |
|---|---|---|---|---|
| | [Landais et al., 2007a] | [Blunier et al., 2012] | [Landais et al., 2007a] | [Reutenauer et al., 2015] |
| $\delta^{18}O_{feuille}$ | 7,0 ± 1,0 ‰ | 5 - 6,8 ‰ | 8,0 ± 1,0 ‰ | 5,164 ± 1,0 ‰ |
| Fraction des flux d'oxygène | | | | |
| $f_{photorespiration}$ | 0,30 | 0,38 | 0,15 | 0,28 |
| $f_{mehler}$ | 0,1 (a) | 0,1 (a) | 0,1 (a) | 0,1 (a) |
| $f_{darksoil}$ | 0,44 | 0,33 | 0,55 | 0,38 |
| $f_{darkleaves}$ | 0,16 | 0,17 | 0,20 | 0,23 |
| Enrichissement isotopique | | | | |
| $^{18}\varepsilon_{photorespiration}$ | 21,4 ± 1,0 ‰ (b) | 21,4 ± 1,0 ‰ (b) | 21,4 ± 1,0 ‰ (b) | 21,4 ± 1,0 ‰ (b) |
| $^{18}\varepsilon_{mehler}$ | 10,8 ± 0,2 ‰ (b) | 10,8 ± 0,2 ‰ (b) | 10,8 ± 0,2 ‰ (b) | 10,8 ± 0,2 ‰ (b) |
| $^{18}\varepsilon_{darksoil}$ | 15,6 ± 0,5 ‰ | 15,6 ± 0,5 ‰ (c) | 16,1 ± 0,5 ‰ | 16,242 ± 0,5 ‰ |
| $^{18}\varepsilon_{darkleaves}$ | 19 ± 1,0 ‰ | 18 ‰ (d) | 19 ± 1,0 ‰ | 19 ± 1,0 ‰ (c) |
| $^{18}\varepsilon_{respiration}$ | 17,4 ± 1,0 ‰ | 17,998 ‰ | 16,94 ± 1,0 ‰ | 17,83 ‰ |

TABLE 1.2 – Récapitulatif des différentes estimations des valeurs des isotopes de l'oxygène dans la feuille $\delta^{18}O_{feuille}$, des fractions correspondant aux différents flux d'oxygène et de l'enrichissement isotopique $^{18}\varepsilon$ défini comme ($^{18}\alpha$-1)*1000 selon les processus de respiration. (a) [Badger et al., 2000]. (b) [Helman, 2005]. (c) [Landais et al., 2007a]. (d) [Guy et al., 1992] ; [Guy et al., 1993].

Cela conduit à une estimation globale de l'enrichissement isotopique $^{18}\varepsilon_{respiration}$ en prenant en compte tous les processus de respiration de 17,4 ‰ pour le pré-industriel et de 16,94 ‰ pour le Dernier Maximum Glaciaire [Landais et al., 2007a]. Cette différence de 0,46 ‰ peut être expliquée par la plus faible fraction de photorespiration pendant le DMG, suite à l'augmentation de la fraction des plantes en C4 par rapport aux plantes en C3.

### 1.2.2 Processus de respiration dans les océans

Au contraire des processus de respiration associés à la biosphère terrestre présentés précédemment, la partie océanique n'est ici pas étudiée puisque les valeurs de fractionnement isotopique ne sont pas calculées dans le modèle couplé développé lors de cette thèse. Les processus de respiration dans les océans sont donc présentés très brièvement.

La consommation d'oxygène se fait principalement dans la couche de surface de l'océan et seule une petite fraction de l'oxygène produit par photosynthèse est ensuite consommée dans les eaux profondes. La respiration et la photosynthèse intervenant en même temps dans la zone euphotique, l'estimation de l'effet isotopique dû à la consommation de l'oxygène ne peut se faire que par des mesures dans des conditions sans lumière ou en corrigeant le fractionnement des effets de la photosynthèse [Luz and Barkan, 2011].
Plusieurs mesures in situ ont ainsi été réalisées sur des micro-organismes marins et donnent des valeurs de fractionnement de la respiration dans la zone euphotique variables. Kiddon et al. [1993] obtiennent des valeurs comprises entre 15 et 25 ‰ sur plusieurs organismes marins, avec une moyenne autour de 20 ‰. Kroopnick and Craig [1976] ont des valeurs de fractionnement isotopique mesurées sur le plancton de 20,8 ‰, proches de celles obtenues par Luz et al. [2002] avec 21,6 ‰ et par Hendricks et al. [2004] avec 22 ‰. Les valeurs mesurées peuvent être différentes selon les organismes et selon les voies de respiration (AOX ou COX) utilisées. Une estimation globale du fractionnement de la respiration dans les océans peut ensuite être réalisée et donne une valeur de 19,7 ‰ [Luz and Barkan, 2011].

### 1.2.3 Echanges avec la stratosphère

La stratosphère possède le plus grand réservoir d'oxygène sur Terre. Cet oxygène stratosphérique est notamment utilisé pour former le $CO_2$ stratosphérique qui est enrichi en isotopes lourds à la suite du transfert du $^{18}O$ et $^{17}O$ de la molécule d'$O_2$ à l'ozone $O_3$, puis au $CO_2$ [Thiemens, 1999] ; [Boering et al., 2004]. Le phénomène de fractionnement dans la stratosphère est indépendant de la masse (ce qui signifie que le changement en $^{17}O/^{16}O$ est égal à celui en $^{18}O/^{16}O$) et intervient lors de la photolyse de la molécule d'$O_3$ en $O_2$ et O sous l'action du rayonnement ultraviolet [Thiemens and Jackson, 1987]. Les différentes étapes de transformation de l'oxygène en $CO_2$ se basent sur les équations de Chapman [1930] et sur le modèle photochimique de Yung et al. [1991] et Yung et al. [1997]. Cela passe par la photodissociation de l'$O_2$ sous l'effet du rayonnement ultraviolet, puis par la formation d'ozone et par sa photolyse sous l'effet des UV qui forme un atome d'oxygène excité O ($^1D$). Cet atome va réagir avec le $CO_2$ pour former du $CO_3$, qui se divise ensuite naturellement en $CO_2$ et O :

$$O_2 + h\nu \rightarrow 2O \tag{1.22}$$

$$O + O_2 \rightarrow O_3 \tag{1.23}$$

$$O_3 + h\nu \rightarrow O_2 + O(^1D) \tag{1.24}$$

$$CO_2 + O(^1D) \rightarrow CO_3^* \tag{1.25}$$

$$CO_3^* \rightarrow CO_2 + O(^3P) \tag{1.26}$$

$$O + O \rightarrow O_2 \tag{1.27}$$

Bender et al. [1994] ont proposé que cet enrichissement en isotopes lourds du $CO_2$ stratosphérique devait s'accompagner d'une perte en $^{18}O$ et $^{17}O$ de l'$O_2$ au travers d'un échange isotopique entre le $CO_2$ et l'O ($^1D$). Le temps de résidence du $CO_2$ dans l'atmosphère étant faible (1000 ans), il n'y a pas d'enrichissement et celui-ci s'équilibre tout de suite avec l'eau dans la troposphère. Le $\delta^{18}O$ du $CO_2$ est donc directement relié au $\delta^{18}O$ de l'eau. Le temps de résidence de l'oxygène étant plus grand (1200 ans), la baisse du $^{17}O$ est uniquement compensée par les processus de photosynthèse et de respiration. Bender et al. [1994] ont estimé que les réactions

photochimiques de transfert du $^{18}O$ de l'$O_2$ au $CO_2$ dans la stratosphère sont à l'origine d'un appauvrissement du $\delta^{18}O_{atm}$ de l'ordre de 0,4 ‰. Luz et al. [1999] ont par la suite mesuré expérimentalement cette valeur comme 0,3 ‰. Cette baisse du $\delta^{18}O_{atm}$ causée par les réactions photochimiques dans la stratosphère est toutefois négligeable par rapport aux effets de la photosynthèse et de la respiration.

Les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ sont donc influencées par plusieurs processus à courtes et longues échelles de temps. Dans le but d'étudier le rôle de ces contributions à la valeur globale du $\delta^{18}O_{atm}$, une approche quantitative est nécessaire. Pour cela, les prochains chapitres aborderont la simulation du $\delta^{18}O_{atm}$ via son intégration dans un modèle climatique de complexité intermédiaire couplé à un modèle de végétation, afin d'étudier ses variations à l'échelle orbitale et millénaire. Toutefois, afin de comparer les simulations aux données des carottes de glace et de manière générale aux différents enregistrements paléoclimatiques, une nouvelle chronologie des carottes de glace sera d'abord développée afin de réduire les incertitudes actuelles.

# Chapitre 2

# Les carottes de glace comme archives climatiques

Les carottes de glace sont des archives permettant de reconstituer les variations climatiques jusqu'à 800 ka dans le passé. Leur résolution est variable et dépend du taux d'accumulation de la neige. La carotte groenlandaise de NGRIP (North Greenland Ice Core Project) possède un taux d'accumulation élevé avec 17,1 cm en équivalent eau par an (cm w.e./an), ce qui permet d'avoir une résolution saisonnière et de compter les couches annuelles jusqu'à 60 ka [North-GRIP Community Members, 2004]. Les différents sites sur le plateau est-antarctique (Figure 2.1) possèdent en revanche un taux d'accumulation plus faible avec 2,5 cm w.e./an à EDC (EPICA Dome C), 2,15 cm w.e./an à Vostok, 6,4 cm w.e./an à EDML (EPICA Dronning Maud Land) et 8 cm w.e./an à TALDICE (TALos Dome Ice CorE) [EPICA Community Members, 2004] ; [EPICA Community Members, 2006] ; [Stenni et al., 2011]. D'autre sites en Antarctique de l'Ouest ou sur les zones côtières ont un taux d'accumulation plus élevé avec par exemple 22 cm par an en équivalent glace à WAIS Divide [Fudge et al., 2013]. Les sites antarctiques ont une résolution annuelle à plusieurs dizaines d'années. Cette accumulation de la neige puis de la glace permet en fonction des paramètres mesurés de reconstituer les changements climatiques locaux (comme la température) ou de rendre compte de changements plus globaux (avec la concentration en $CO_2$ ou en méthane). Ces enregistrements permettent également de faire le lien entre les changements environnementaux des hautes et des basses latitudes et de comparer les carottes de glace à d'autres enregistrements paléoclimatiques.

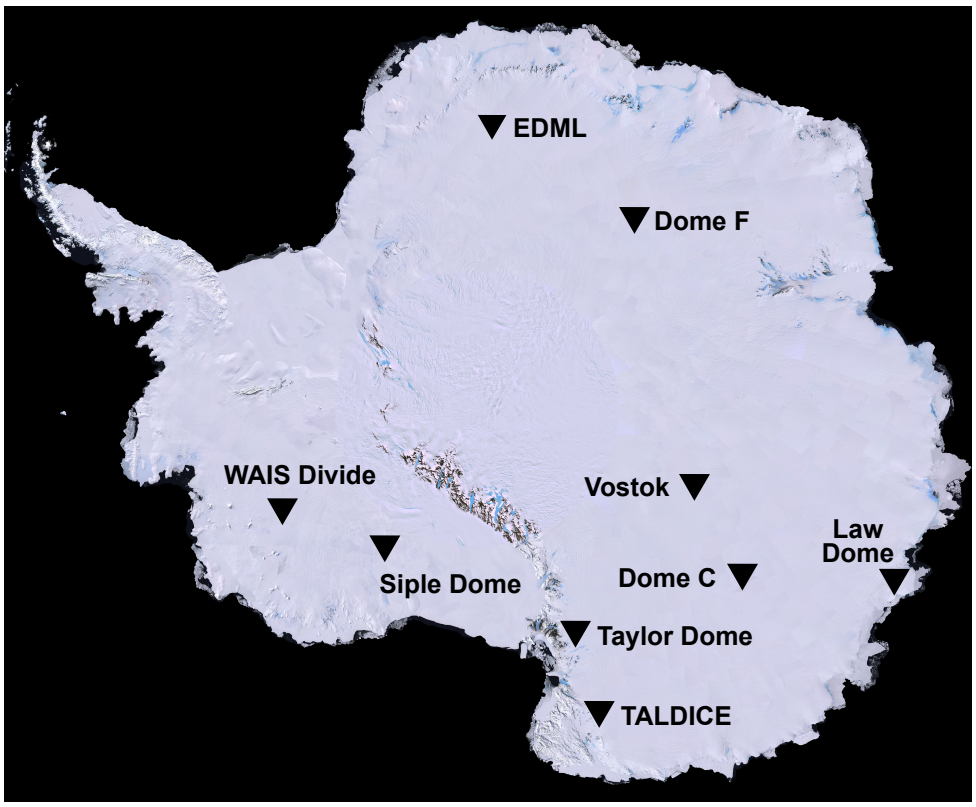



FIGURE 2.1 – Carte des différents sites de forage antarctique (image satellite LANDSAT - NASA).

Les sections suivantes abordent les différents indicateurs mesurés dans les carottes de glace. La première partie présentera les paramètres mesurés dans la phase glace comme les isotopes de l'eau ($\delta$D et $\delta^{18}$O) permettant de reconstituer les variations de température et d'étudier les sources d'humidité (comme pour la Terminaison 3 dans l'article de Bréant et al. [2019] présenté en Annexe 2) ou encore le contenu en poussière. Je présenterai ensuite les proxies mesurés dans la phase gaz tels que la concentration en gaz à effet de serre ($CO_2$ et $CH_4$), le $\delta^{15}$N et $\delta^{40}$Ar utilisés pour quantifier les variations abruptes de température, le $\delta^{18}O_{atm}$ utilisé comme marqueur du cycle hydrologique des basses latitudes ou encore le rapport $\delta O_2/N_2$ utilisé pour la datation orbitale. Je décrirai ensuite le protocole expérimental des mesures de $\delta^{18}O_{atm}$ et $\delta O_2/N_2$ réalisées au cours de cette thèse, ainsi que les facteurs de correction associés. Les mesures ayant été réalisées uniquement sur la carotte de glace d'EPICA Dome C (qui permet d'étudier les variations sur les 8 derniers cycles climatiques grâce au faible taux d'accumulation), je consacrerai une section à détailler les différentes chronologies de cette carotte de glace.

## 2.1 Paramètres mesurés dans la phase glace

### 2.1.1 Les isotopes de l'eau

Le HDO et $H_2^{18}O$ sont deux formes d'isotopes stables de la molécule d'eau, exprimées comme $\delta$D et $\delta^{18}$O. Les études de Craig [1961] et Dansgaard [1964] ont montré que la distribution de ces isotopes dépend de la température de condensation des précipitations et de l'origine de l'humidité. Il y a, des basses vers les hautes latitudes, une diminution relativement importante du HDO et du $H_2^{18}O/H_2^{16}O$ suite aux condensations et précipitations successives entraînant la perte en isotopes lourds $^{18}$O (distillation de Rayleigh). Les $\delta$D et $\delta^{18}$O mesurés dans la neige, rendent principalement compte de la température locale des hautes latitudes à laquelle se font les précipitations et de la température au site d'évaporation [Masson-Delmotte et al., 2004] ; [Bréant et al., 2019]. Ces changements de précipitations traduisent des variations saisonnières qui peuvent être observées dans la composition isotopique mesurée dans la neige.
Le d-excess, défini comme $\delta$D - 8*$\delta^{18}$O [Dansgaard, 1964] est utilisé pour étudier les changements de température et d'humidité dans les régions d'évaporation. Les $\delta$D et d-excess peuvent aussi être combinés pour reconstruire la température locale $T_{site}$ et la température des régions d'évaporation $T_{source}$ (Figure 2.3) avec les équations suivantes [Stenni et al., 2010] :

$$\Delta T_{site} = 0,16 * \Delta\delta D_{corr} + 0,44 * \Delta d - excess_{corr} \tag{2.1}$$

$$\Delta T_{source} = 0,06 * \Delta\delta D_{corr} + 0,93 * \Delta d - excess_{corr} \tag{2.2}$$

avec $\Delta\delta D_{corr}$ et $\Delta$d-excess$_{corr}$ les valeurs corrigées en utilisant le $\delta^{18}O_{eaudemer}$ [Jouzel et al., 2003]. La notation $\Delta$ représente la différence entre le paramètre mesuré et sa moyenne sur la période récente (par exemple sur les derniers 2000 ans).

### 2.1.2 La concentration en aérosols

Les différents aérosols mesurés dans la glace peuvent être de nature et d'origine variées : poussières minérales provenant des déserts, ions $Na^+$, $Ca^{2+}$ ou $SO_4^{2-}$. Ils apportent des informations sur les variations passées de la circulation atmosphérique, de la glace de mer, sur l'origine

des poussières ou encore sur les éruptions volcaniques. Du fait de leur présence dans la glace et de leurs variations saisonnières, il est possible de les utiliser pour compter les couches de glace dans certaines carottes et ainsi construire une chronologie. A l'échelle des périodes glaciaires-interglaciaires, les processus de production, transport et dépôt des poussières sont influencés par les changements climatiques [Steffensen, 1997] ; [Mahowald et al., 1999] ; [Sun et al., 2006]. Le flux de poussières a été mesuré sur les derniers 800 ka à Dome C par Lambert et al. [2008] et présente un lien direct avec les variations de température antarctique (Figure 2.2). Des concentrations en poussières plus élevées sont observées lors des périodes glaciaires associées à des sources de poussière plus importantes et à un transport atmosphérique plus important des basses vers les hautes latitudes.

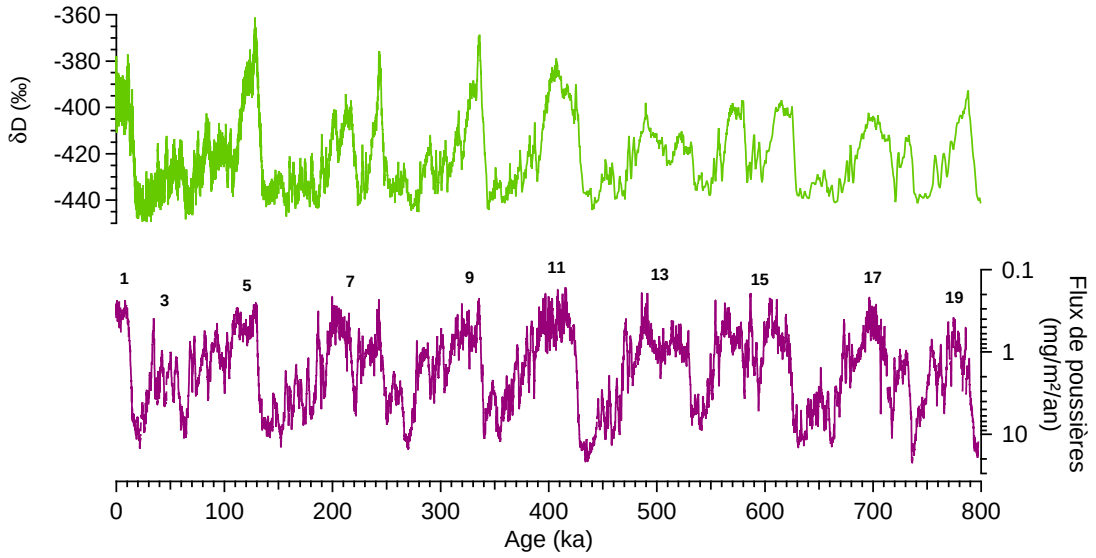



FIGURE 2.2 – Evolution du flux de poussières à Dome C au cours des derniers 800 ka [Lambert et al., 2008] en lien avec les changements de $\delta$D reflétant les variations de la température antarctique [Jouzel et al., 2007]. Les numéros impairs correspondent aux différents stades isotopiques marins associés à des périodes interglaciaires et à un faible flux de poussières.

## 2.2 Proxies mesurés dans la phase gaz

### 2.2.1 La concentration en gaz à effet de serre

La phase gaz des carottes de glace renferme un enregistrement unique de la composition isotopique de plusieurs espèces chimiques. Parmi les molécules piégées dans les bulles d'air de

la glace, on retrouve la composition atmosphérique passée avec la concentration en gaz à effet de serre tels que le dioxyde de carbone ($CO_2$) et le méthane ($CH_4$). La carotte de glace d'EPICA Dome C est à ce jour le seul enregistrement permettant d'avoir les concentrations en gaz à effet de serre sur la période 400-800 ka. L'étude de Bereiter et al. [2015] fournit un enregistrement composite (Law Dome, Dome C, WAIS, Siple Dome, TALDICE, EDML, Vostok) à haute résolution de la concentration en $CO_2$. Les données publiées par Loulergue et al. [2008] permettent également d'avoir un enregistrement complet à Dome C de la concentration en $CH_4$. La concentration de ces gaz à effet de serre varie au cours des périodes glaciaires-interglaciaires (Figure 2.3) avec des minimums lors des périodes froides ($\sim$185 ppm de $CO_2$ et $\sim$380 ppbv de $CH_4$) et des maximums lors des périodes chaudes ($\sim$280 ppm de $CO_2$ et $\sim$800 ppbv de $CH_4$). Le $CO_2$ augmente de pair avec la température antarctique lors des terminaisons glaciaires-interglaciaires ce qui en fait un bon proxy des changements climatiques à l'échelle orbitale.

Le méthane augmente lui en deux étapes : pendant la première étape le méthane commence à augmenter en phase avec la concentration en $CO_2$, puis pendant la deuxième étape il y a une forte augmentation du $CH_4$ lors de l'optimum des températures pendant la terminaison. Il y a également lors des déglaciations un changement dans la source du méthane avec un déplacement vers le Nord [Baumgartner et al., 2014]. Dans le cas de variations millénaires comme lors des évènements de Dansgaard-Oeschger et de Heinrich, les variations du méthane sont en phase avec les variations de la température au Groenland [Baumgartner et al., 2014]. Ces variations du méthane, en lien avec celles de la composition isotopique de la glace peuvent servir de marqueurs stratigraphiques d'âge gaz et permettent de faire le lien entre plusieurs carottes de glace.

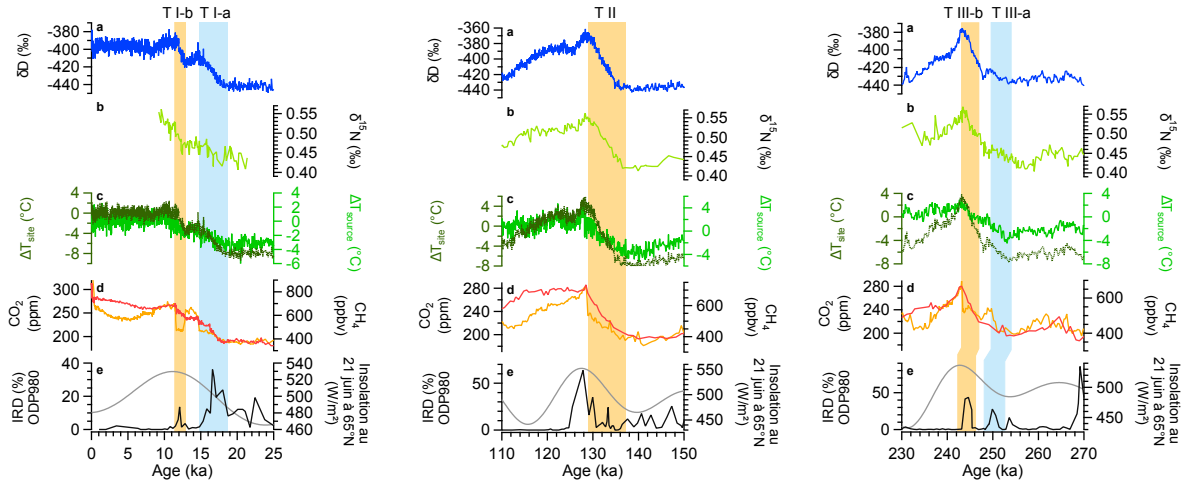



FIGURE 2.3 – Variabilité millénaire au cours des 3 dernières terminaisons (adapté de Bréant et al. [2019]). (a) Enregistrement du $\delta$D de Dome C [Jouzel et al., 2007], (b) $\delta^{15}$N mesuré à Dome C [Dreyfus et al., 2010] ; [Landais et al., 2013] ; [Bréant et al., 2019], (c) reconstruction du $\Delta T_{site}$ (vert foncé) et $\Delta T_{source}$ (vert clair) [Bréant et al., 2019], (d) concentration en $CO_2$ (courbe rouge) [Bereiter et al., 2015] et en $CH_4$ (courbe orange) [Loulergue et al., 2008] et (e) pourcentage d'IRD au site ODP980 (courbe noire) [McManus et al., 1999] et insolation au 21 juin à 65°N (courbe grise) [Laskar et al., 2004].

### 2.2.2 Les isotopes de l'argon et de l'azote

Les mesures de $\delta^{40}$Ar et de $\delta^{15}$N peuvent aussi être utilisées pour quantifier les variations de la température antarctique et groenlandaise. Par exemple, le $\delta^{15}$N de la molécule de $N_2$ piégée dans les bulles d'air des carottes de glace rend compte des processus de densification du névé, contrôlés par les variations locales de l'accumulation et de la température [Severinghaus et al., 1998]. Cela en fait donc un bon indicateur des changements du climat Antarctique [Caillon et al., 2003] ; [Landais et al., 2013] et permet d'estimer la profondeur de piégeage de l'air (Lock-in Depth).

Ayant des compositions isotopiques constantes dans l'atmosphère au cours des derniers millénaires, le fractionnement de ces isotopes dépend des processus physiques intervenant au sein du névé et pendant le piégeage de l'air dans la glace à une centaine de mètres de profondeur [Landais et al., 2006]. Ces bulles d'air piégées en profondeur sont plus jeunes que la glace qui les entoure et cette différence d'âge notée $\Delta$âge peut être estimée à partir d'un modèle de densification de la neige en glace dans le névé (e.g. [Goujon et al., 2003] ; [Bréant et al., 2017]).

Le névé constitue la partie supérieure de la calotte, zone poreuse entre les premiers mètres de la surface et 60-100 m de profondeur selon le site étudié. Il correspond à la zone de métamorphisme de la neige en glace, qui se fait par augmentation progressive de la densité d'environ 0,35 pour la neige en surface à environ 0,9 au niveau de la zone de fermeture des pores. Les bulles d'air sont ainsi piégées à la base du névé, lorsque les pores deviennent plus petits. Plusieurs zones peuvent être définies d'après Sowers et al. [1992] selon le transport de l'air dans la glace (Figure 2.4) :

- La zone convective est la zone en dessous de la surface soumise au vent résultant de la convection naturelle associée à la pression et à un gradient de température. Cette convection permet une homogénéisation de l'air atmosphérique [Colbeck, 1989]. L'épaisseur de la zone de convection dépend des conditions de surface et notamment du taux d'accumulation. Au Groenland, l'épaisseur de cette zone est faible, comprise entre 2 et 3 m pour NGRIP et NEEM [Landais et al., 2006] ; [Guillevic et al., 2013] du fait du fort taux d'accumulation. En Antarctique, l'épaisseur varie de 2 m à Dome C, 13 m à Vostok et jusqu'à plus de 23 m pour le site de Megadunes [Bender et al., 1994] ; [Landais et al., 2006] ; [Severinghaus et al., 2010].

- Dans la zone diffusive, qui représente jusqu'à 90 % du névé, l'air n'est plus soumis aux phénomènes de surface. Le transport se fait alors par lente diffusion moléculaire et l'air est soumis à deux types de fractionnement (Section 2.3). La densification progressive de la neige s'effectue jusqu'à une certaine profondeur où l'espace libre entre les cristaux de glace devient plus petit que les molécules d'air qui sont piégées. Cette profondeur de piégeage est appelée Lock-in Depth (LID). La profondeur de piégeage de l'air en équivalent glace (LIDIE) peut également être définie de la même manière. L'air piégé à la base du névé est alors plus jeune que la glace qui l'entoure et sa composition isotopique reste inchangée puisque celui-ci est totalement isolé de l'air de la surface. La différence d'âge entre les bulles d'air et la glace dépend de la dynamique du névé et une échelle d'âge différente est calculée pour la glace et pour les gaz.

- La zone non-diffusive se situe entre la profondeur de piégeage de l'air et la profondeur de fermeture des pores, i.e. COD (Close-Off Depth). Les pores entre les cristaux de glace se ferment progressivement jusqu'à se fermer totalement et empêcher la diffusion moléculaire.

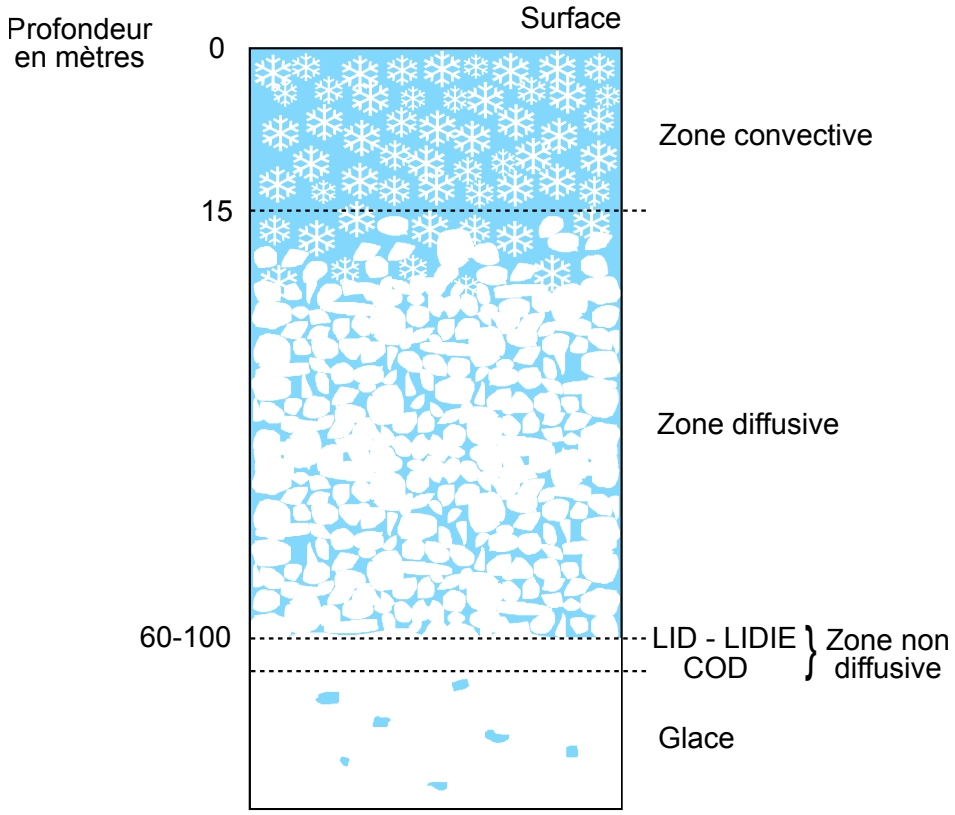



FIGURE 2.4 – Schéma descriptif des différentes zones du névé (modifié d'après Ruddiman [2008]).

### 2.2.3 $\delta^{18}O_{atm}$

On retrouve également dans les bulles d'air piégées dans la glace, des molécules d'oxygène permettant d'étudier les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ et donc du cycle hydrologique des basses latitudes (comme présenté dans le Chapitre 1). Dans le cas où les carottes de glace sont stockées longtemps au-dessus de -50°C, une perte de gaz est observée et modifie la composition isotopique du $\delta^{18}O$ de l'$O_2$. Il faut donc la corriger de ce processus de fractionnement (voir Section 2.3.3).

Le $\delta^{18}O_{atm}$ peut également être utilisé pour la construction de la chronologie des carottes de glace via son lien avec l'insolation au 21 juin à 65°N en définissant des marqueurs d'âge gaz comme détaillé dans la Section 2.4, ou par l'étude du cycle hydrologique des basses latitudes comme montré dans cette thèse.

### 2.2.4 $\delta O_2/N_2$

La taille des molécules d'$O_2$ étant plus petite que celle des molécules de $N_2$, 2 Å contre 2,05 Å (1 Å = $10^{-10}$ m), les molécules d'$O_2$ se déplacent plus facilement au niveau de la zone de profondeur de piégeage de l'air et sont expulsées des bulles en formation, là où les molécules de $N_2$ se retrouvent piégées. Cela se traduit par une baisse d'$O_2$ à la base du névé où l'air est piégé. Le rapport $O_2/N_2$ est donc dépendant du processus physique de diffusion au moment de la fermeture des pores dans le névé [Battle et al., 1996] ; [Severinghaus and Battle, 2006]. Il a également été montré que les variations du $\delta O_2/N_2$ étaient liées à celles de l'insolation d'été locale (au niveau du site de forage de la carotte de glace, e.g. 75°S pour Dome C), même si l'amplitude de leurs variations respectives n'est pas similaire [Bazin et al., 2016]. Contrairement au décalage observé entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation au 21 juin à 65°N, il n'y ici pas d'écart entre les périodes de maximum et minimum du $\delta O_2/N_2$ et de l'insolation. Cela s'explique par l'influence de l'insolation sur le métamorphisme de la neige via les gradients de température [Hutterli et al., 2010] et donc sur la structure des cristaux de glace au niveau du piégeage de l'air [Fujita et al., 2009].

Puisque le $\delta O_2/N_2$ est relié à des processus modifiant la neige, il peut donc être utilisé pour le tuning orbital lors de la construction de l'âge glace d'une carotte de glace. Les incertitudes associées à cette méthode sont cependant difficiles à estimer car d'autres paramètres comme l'accumulation de la neige influencent sans doute aussi le rapport $O_2/N_2$. De plus, des études expérimentales et de modélisation [Kawamura et al., 2007] ; [Landais et al., 2012] ont montré que le stockage sur une longue période de temps à une température supérieure à -50°C entraîne un appauvrissement du signal de $\delta O_2/N_2$, causé par une perte de molécules d'$O_2$. Des corrections doivent alors être appliquées sur les mesures.

La tendance du $\delta O_2/N_2$ sur les derniers 800 ka à Dome C a été estimée comme une diminution de 7,9 ‰ par million d'années par Landais et al. [2012] et Bazin et al. [2016] (Figure 2.5). Stolper et al. [2016] ont également trouvé une diminution de 8,4 ‰ par million d'années pour les trois sites Dome C, Vostok et Dome F, interprétée comme le résultat de modifications des flux organiques de carbone. Cependant, une partie des données de $\delta O_2/N_2$ présentée dans

ces travaux est affectée par la perte de gaz pouvant remettre en question la tendance sur le long terme.

A partir des nouvelles mesures de $\delta O_2/N_2$ réalisées pendant cette thèse sur la carotte de Dome C entre 163 et 332 ka (venant ainsi compléter l'enregistrement existant) et provenant d'échantillons stockés à -50°C (exempts de correction dû au fractionnement par perte de gaz), j'ai pu estimer la tendance à une diminution de 7,0 $\pm$ 0,6 ‰ par million d'années au cours des derniers 800 ka.

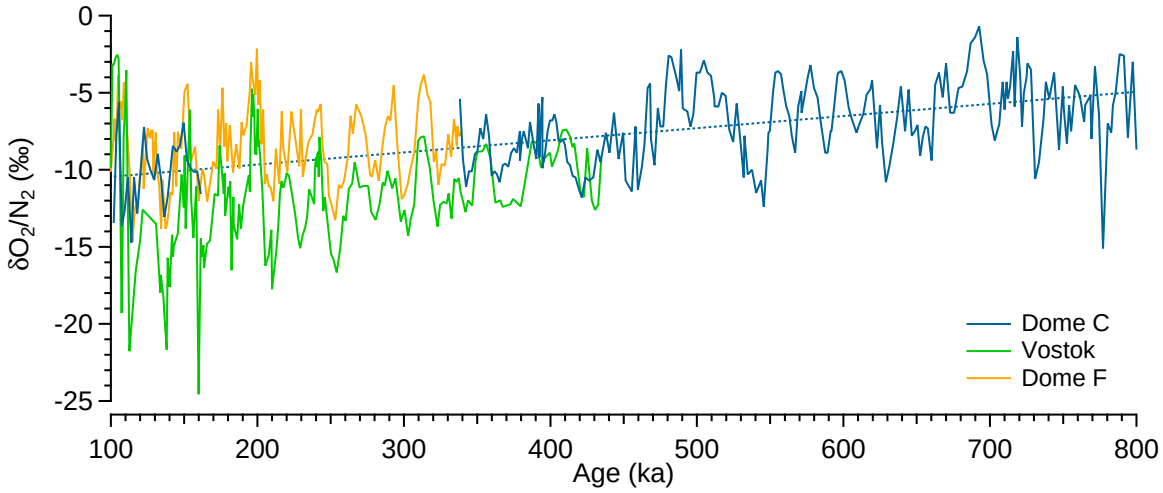



FIGURE 2.5 – Variations du $\delta O_2/N_2$ entre 100 et 800 ka pour les sites antarctiques de Dome C en bleu [Landais et al., 2012] ; [Bazin et al., 2016], Vostok en vert [Suwa and Bender, 2008] et Dome F en orange [Kawamura et al., 2007]. Les courbes de Dome C et Vostok sont représentées sur la chronologie AICC2012. La courbe de Dome F est présentée sur AICC2012 entre 0 et 216 ka à partir de la synchronisation avec les éruptions volcaniques [Fujita et al., 2015].

## 2.3 Les fractionnements isotopiques

Les processus de diffusion observés dans la colonne de glace contrôlent la composition isotopique des différents gaz. Le fractionnement isotopique des molécules d'argon, d'$O_2$ et $N_2$ a une origine gravitationnel et thermique [Severinghaus et al., 1998]. D'autres processus de fractionnement associés à la photosynthèse et à la respiration de la biosphère (détaillés dans le Chapitre 1) ont une influence sur le fractionnement de la molécule d'$O_2$.

### 2.3.1 Le fractionnement gravitationnel

Le fractionnement gravitationnel est induit par la gravité terrestre et entraîne un enrichissement en isotopes lourds par diffusion moléculaire à la base de la colonne diffusive (par rapport aux isotopes légers pour un même gaz). Le fractionnement gravitationnel $\delta_g$ peut ainsi s'exprimer de la façon suivante [Sowers et al., 1992] :

$$\delta_{g(z)} = [exp(\frac{\Delta mgz}{RT}) - 1] * 1000 \backsimeq (\frac{gz}{RT}) * \Delta m * 1000 \tag{2.3}$$

avec Δm la différence de masse entre deux isotopes en g/mol, g l'accélération de la pesanteur (9,81 m/s²), z l'épaisseur de la couche diffusive en m, R la constante des gaz parfaits (8,314 J/mol/K) et T la température moyenne en K.

Le fractionnement gravitationnel est proportionnel à la différence de masse entre les isotopes considérés : 2 g/mol pour le rapport $^{18}O/^{16}O$, 1 g/mol pour le rapport $^{15}N/^{14}N$ et 4 g/mol pour le rapport $O_2/N_2$ et $\delta^{40}Ar$ [Craig et al., 1988] ; [Schwander, 1989] ; [Severinghaus et al., 1998]. Par conséquent, le $\delta^{18}O$ sera deux fois plus affecté par le signal gravitationnel que le $\delta^{15}N$. Pour corriger les mesures de $\delta^{18}O_{atm}$ de ce fractionnement, on utilise les mesures de $\delta^{15}N$ réalisées dans les mêmes échantillons en supposant que l'enrichissement en $\delta^{15}N$ dans les bulles d'air est seulement d'origine gravitationnelle :

$$\delta^{18}O_{atm corrigé} = \delta^{18}O_{atm} - (2 * \delta^{15}N) \tag{2.4}$$

De la même manière, le $\delta O_2/N_2$ est corrigé en utilisant le $\delta^{15}N$ avec cette fois-ci un facteur 4 :

$$\delta O_2/N_{2 corrigé} = \delta O_2/N_2 - (4 * \delta^{15}N) \tag{2.5}$$

### 2.3.2 Le fractionnement thermique

Le fractionnement dans la colonne de glace peut aussi être lié à des processus provoqués par un gradient de température dans la colonne [Severinghaus et al., 1998]. Pour la carotte groenlandaise de NGRIP où des changements significatifs de la température de surface sont observés

lors de la dernière période glaciaire, le $\delta^{18}O_{atm}$ est affecté par ce phénomène de fractionnement thermique. Dans le cas de la carotte de Dome C sur laquelle ont été réalisées les mesures au cours de cette thèse, la correction liée au fractionnement thermique est négligeable car les changements de température en Antarctique de l'Est sont trop faibles pour créer un gradient de température assez large conduisant à la migration des espèces les plus lourdes vers les régions les plus froides de la colonne de glace [Goujon et al., 2003] ; [Bréant et al., 2017].

### 2.3.3 Fractionnement par perte de gaz

Le fractionnement par perte de gaz est un processus affectant le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta O_2/N_2$ lorsque la glace est stockée à une température supérieure à -50°C. Dans ce cas, le $^{16}O/^{16}O$ s'échappe préférentiellement au $^{18}O/^{16}O$ et le ratio $O_2/N_2$ dans les clathrates s'appauvrit graduellement puisque les molécules d'$O_2$ sont plus petites que les molécules de $N_2$ [Landais et al., 2003] ; [Dreyfus et al., 2007] ; [Kawamura et al., 2007] ; [Suwa and Bender, 2008] ; [Severinghaus et al., 2009]. Cette perte d'oxygène affecte les changements en $\delta^{18}O_{atm}$ et $\delta O_2/N_2$ à Vostok en suivant une relation linéaire de 0,01 [Landais et al., 2003]. Cette pente est en accord avec les variations de $\delta^{18}O_{atm}$ et de $\delta O_2/N_2$ trouvées à Siple Dome par Severinghaus et al. [2009]. J'ai également trouvé cette même relation de 0,01 entre les changements de $\delta^{18}O_{atm}$ et de $\delta O_2/N_2$ à partir des nouvelles mesures à Dome C réalisées au cours de cette thèse. Le $\delta^{18}O_{atm}$ est ainsi corrigé à partir de cette relation entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta O_2/N_2$ :

$$\delta^{18}O_{atmcorrigé} = \delta^{18}O_{atm} + (\delta O_2/N_2 + 10) * 0,01 \tag{2.6}$$

## 2.4 Datation de la carotte de glace d'EPICA Dome C

J'ai travaillé au cours de cette thèse sur la carotte de Dome C puisqu'il s'agit à ce jour de la seule carotte de glace permettant d'étudier les variations climatiques des derniers 800 ka.
La première carotte de glace à EPICA Dome C a été forée entre les années 1996 et 1999, avec une longueur totale de 788 m (longueur maximale à laquelle le carottier a été bloqué) permettant de remonter jusqu'à 45 ka dans le passé [Schwander et al., 2001]. Par la suite, le forage de carottes de glace jusqu'à 3260 m de profondeur a permis d'étendre l'enregistrement de Dome C jusqu'à 800 ka et donc d'avoir un enregistrement des 8 derniers cycles climatiques [EPICA

Community Members, 2004]. Cela en fait à ce jour l'enregistrement continu remontant le plus loin dans le passé permettant de reconstituer à haute résolution les variations de proxies tels que le $\delta$D, le $CO_2$, le $CH_4$ et le $\delta^{18}O_{atm}$ sur les derniers 800 ka (bien que d'autres carottes aient une meilleure résolution sur la dernière période glaciaire). Dans l'optique d'interpréter les enregistrements paléoclimatiques et de faire le lien avec d'autres archives continentales et marines, une chronologie précise est nécessaire.

Pour construire une chronologie, le comptage des couches annuelles se fonde sur les variations saisonnières de la composition des isotopes de l'eau ou des aérosols, variant toutefois d'un site et d'une période à une autre. Les rapports $\delta$D et $\delta^{18}$O présentent en effet des variations saisonnières avec des valeurs plus faibles en hiver qu'en été [Epstein and Sharp, 1959]. Les couches annuelles peuvent aussi être comptées visuellement du fait de la présence d'impuretés dont la concentration varie aussi de manière saisonnière [Hammer et al., 1978]. Dans le cas où les précipitations neigeuses sont importantes et où les couches sont bien préservées comme par exemple au Groenland, il est possible de remonter jusqu'à 60 ka. En Antarctique, le taux d'accumulation est trop faible et ne permet pas de compter les couches annuelles, excepté sur les côtes ou pour le site de WAIS Divide (Figure 2.1) où le comptage des couches annuelles permet de remonter jusqu'à 31 ka [Sigl et al., 2016]. Le signal des différents traceurs saisonniers est en effet généralement lissé à cause de la diffusion lors de la densification de la neige en glace, mais aussi car les couches de neige peuvent être perturbées par le vent.

La modélisation de l'écoulement de la glace est alors une méthode alternative pour la construction de longues échelles d'âges pour des sites ayant un faible taux d'accumulation et permet d'obtenir une bonne précision sur la durée des évènements (même si la précision diminue avec la profondeur). Les chronologies EDC1 [Schwander et al., 2001] et EDC2 [EPICA Community Members, 2004] présentées ci-après sont en partie fondées sur cette méthode de modélisation de l'écoulement de la glace. Une troisième méthode de datation des carottes de glace profondes se base sur le fait que les proxies mesurés dans les carottes de glace répondent aux variations des paramètres astronomiques de la Terre. La datation de ces carottes peut donc être améliorée en alignant le $\delta^{18}O_{atm}$, le $\delta O_2/N_2$ ou encore le contenu total en air sur leurs paramètres orbitaux respectifs. Le $\delta^{18}O_{atm}$ présente par exemple une corrélation significative avec les variations de la précession (insolation au 21 juin à 65°N) sur les derniers 800 ka [Jouzel et al., 1996] ; [Pe-

tit et al., 1999] ; [Dreyfus et al., 2007] ; [Landais et al., 2010]. Une incertitude d'environ 6 ka, estimée à partir du décalage entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation au 21 juin à 65°N, est toutefois appliquée lors de la construction des échelles d'âge avec cette méthode. La précision sur les âges absolus est donc réduite. Pour pallier cet inconvénient, le contenu en air dans la glace [Raynaud et al., 2007] peut être utilisé en lien avec l'insolation locale pour supprimer la dépendance à l'alignement $\delta^{18}O_{atm}$ - insolation et améliorer la précision et l'incertitude de l'échelle d'âge. Le $\delta O_2/N_2$ ne présente pas de décalage par rapport à l'insolation au 21 décembre à 75°S ce qui permet également de l'utiliser pour minimiser l'influence du climat global et réduire les incertitudes dans le cadre du tuning orbital avec le $\delta^{18}O_{atm}$ [Bender, 2002] ; [Kawamura et al., 2007] ; [Suwa and Bender, 2008] ; [Landais et al., 2012] ; [Bazin et al., 2016]. Le $\delta O_2/N_2$ et le contenu total en air sont également utilisés pour dater la phase glace des carottes, puisqu'ils sont affectés par les processus physiques de métamorphisme de la neige en surface.
Enfin, des marqueurs indépendants tels que les éruptions volcaniques peuvent aussi être utilisés. A la suite de grandes éruptions, des quantités importantes de matériaux sont émis dans l'atmosphère. Cela se retrouve ensuite dans la glace sous la forme de couches de cendre, de téphras ou de pics de sulfate [Gao et al., 2006] ; [Narcisi et al., 2006] ; [Dunbar et al., 2008]. Si ces signaux sont retrouvés dans plusieurs carottes de glace à la suite d'évènements importants, il est possible de les utiliser pour synchroniser les carottes entre elles. Le $^{10}Be$, isotope cosmogénique créé dans la haute atmosphère par nucléosynthèse, peut également être utilisé comme marqueur absolu [Yiou et al., 1997] ; [Raisbeck et al., 2007]. Les variations du $^{10}Be$ résultent de changements du champ magnétique terrestre. Ces changements affectent également les valeurs du $^{14}C$ dans l'atmosphère (en lien avec le cycle carbone). Ainsi les pics de $^{10}Be$ observés dans les carottes de glace rendent compte d'anomalies magnétiques, permettant de synchroniser les carottes de glace entre elles.

Les parties suivantes détaillent les différentes chronologies développées pour la carotte de glace d'EPICA Dome C, permettant de faire le lien avec les autres carottes de glace.

### 2.4.1 Les chronologies EDC1 et EDC2

A la suite du forage de la carotte de glace à Dome C à la fin des années 90 et dans le but d'interpréter les informations mesurées dans cette carotte de glace, Schwander et al. [2001] ont

développé une première chronologie appelée EDC1 sur les derniers 45 ka en utilisant un modèle simple d'écoulement de glace combiné à un modèle d'accumulation. Afin de calibrer les paramètres du modèle, des pointeurs d'âge fixe ont été utilisés :

- 14 éruptions volcaniques documentées sur les derniers 820 ans.
- 27 éruptions volcaniques entre 1,2 et 7,1 ka.
- La fin du Younger-Dryas il y a 11,53 ka.
- Un pic en $^{10}$Be mesuré vers 41 ka à la suite d'une inversion rapide du champ magnétique terrestre nommée comme l'excursion de Laschamps, provoquant une diminution du champ magnétique et donc une plus grande interaction avec les radiations cosmiques dans la haute atmosphère.

Dans l'optique d'avoir une chronologie commune des carottes de glace, il a été proposé de synchroniser la chronologie EDC1 avec la chronologie déjà existante de Vostok [Petit et al., 1999]. Cependant, celle-ci étant trop jeune pendant les périodes glaciaires, une chronologie différente a été développée pour la carotte de Dome C.

La chronologie EDC2 a ensuite été développée par EPICA Community Members [2004] en se fondant sur une méthode de datation inverse qui consiste à trouver les paramètres d'entrée (accumulation, écoulement de glace...) du modèle glaciologique en alignant la datation sur des observations. Des points de contrôle chronologique ont été utilisés afin de contraindre le modèle : sur le haut de la carotte, les pointeurs utilisés sont les mêmes que ceux de EDC1 et pour la partie antérieure à 50 ka plusieurs pointeurs dérivés de la courbe marine du $\delta^{18}O_{benthique}$ de Bassinot et al. [1994] ont été utilisés pour les Terminaisons II, III, IV, VII et VIII (en considérant un décalage de 4 ka). Bien que la suite du forage des carottes de glace à Dome C ait permis de remonter jusqu'à 800 ka, cette échelle d'âge n'est valide que jusqu'à 740 ka du fait de l'absence de mesures en $\delta$D jusqu'à la base de la carotte, nécessaires pour la construction de l'échelle d'âge. De plus, le modèle d'écoulement de glace utilisé ne prenait pas en compte le glissement à la base de la calotte ainsi que la variation d'épaisseur de glace.

La chronologie EDC1 présente une incertitude de ± 10 ans sur les derniers 700 ans, de ± 200 ans sur les derniers 10 ka et d'environ 2 ka jusqu'à 41 ka [Schwander et al., 2001]. La chronologie EDC2 présente quant à elle une incertitude de ± 10 ka jusqu'à la base de l'enregistrement datée à 807 ka [EPICA Community Members, 2004].

### 2.4.2 La chronologie EDC3

Le développement de cette chronologie a été effectué par Parrenin et al. [2007] et utilise également un modèle glaciologique contrôlé avec plusieurs marqueurs :

- L'utilisation de marqueurs absolus tels que les éruptions volcaniques du dernier millénaire pour contrôler les paramètres (e.g. les conditions à la base du glacier) du modèle d'écoulement de glace.

- La synchronisation de l'échelle d'âge sur la chronologie GICC05 du Groenland [Rasmussen et al., 2006] au cours des derniers 6 ka en utilisant les pics de $^{10}$Be dans la glace et de $^{14}$C atmosphérique de la courbe INTCAL [Reimer et al., 2004], sur la dernière déglaciation avec les fortes concentrations en $CH_4$ observées à la fois en Antarctique et au Groenland, et autour de 41 ka (excursion de Laschamps) avec le $^{10}$Be [Yiou et al., 1997] ; [Raisbeck et al., 2007].

- L'identification de l'éruption volcanique du Mont Berlin [Dunbar et al., 2008] au travers d'une couche de cendre volcanique datée à 92,5 ± 2 ka.

- L'utilisation de 19 marqueurs basés sur le contenu total en air (en lien avec l'insolation à 75°S) jusqu'à 440 ka.

- La correction de l'échelle d'âge entre 400 et 800 ka, où le modèle glaciologique n'est pas capable de simuler les mouvements complexes de la glace, via l'utilisation de 38 marqueurs orbitaux issus du lien entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation (Figure 2.6).

Comparativement à la chronologie EDC2, la chronologie EDC3 prend en compte la correction des processus complexes d'écoulement de la glace aux grandes profondeurs ainsi que les varia-

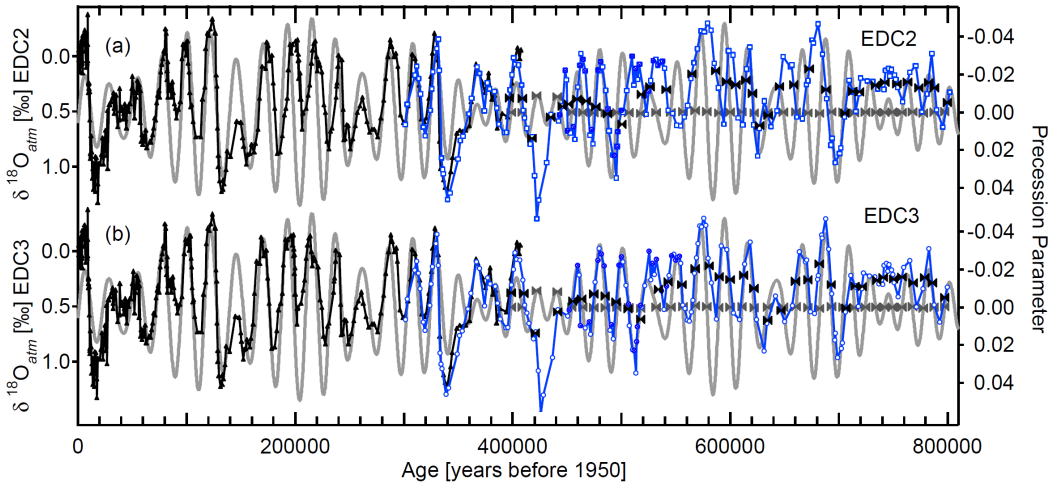



FIGURE 2.6 – Profils du $\delta^{18}O_{atm}$ sur les chronologies EDC2 et EDC3 en relation avec les variations de précession. Les symbôles noirs et gris entre 400 et 800 ka sur la courbe de $\delta^{18}O_{atm}$ et de la précession correspondent aux points de calage orbitaux (d'après Dreyfus et al. [2007]).

tions de l'épaisseur de la calotte de glace. La différence entre l'échelle d'âge EDC2 et EDC3 est relativement faible sur les derniers 400 ka avec des valeurs entre -2,8 et +1,2 ka (Figure 2.7). Les valeurs augmentent fortement entre 400 et 800 ka avec une différence entre les chronologies comprise entre -19 ka et +6,7 ka. L'utilisation de nouveaux marqueurs orbitaux entre 400 et 800 ka permet de corriger la fonction d'amincissement du modèle d'écoulement de glace ainsi que la chronologie d'EDC. L'incertitude associée à cette chronologie est ainsi réduite par rapport à la chronologie précédente, avec une incertitude de quelques années à 100 ans sur les derniers 6 ka, de 400 ans jusqu'à 14 ka, de 1 ka jusqu'au Dernier Maximum Glaciaire, de 1,5 ka jusqu'à 40 ka, de 3 ka sur les derniers 100 ka et de 6 ka entre 130 ka et la base de l'enregistrement.

### 2.4.3 L'échelle d'âge commune AICC2012

Dans l'optique d'avoir des datations cohérentes entre les différentes carottes de glace antarctiques et groenlandaises et de pouvoir interpréter de manière précise les changements climatiques et environnementaux, Bazin et al. [2013] et Veres et al. [2013] sur la base des travaux de Lemieux-Dudon et al. [2010] ont construit une échelle d'âge commune entre NGRIP, TALDICE, EDML, EDC et Vostok. Cette nouvelle chronologie AICC2012 (Antarctic Ice Core Chronology) se fonde sur une méthode de datation inverse en utilisant l'outil DATICE pour

dater à la fois la phase gaz et la phase glace. DATICE permet de calculer le meilleur compromis entre une chronologie basée sur la modélisation du taux d'accumulation, sur la densification de la neige en glace et les flux de glace, et sur des observations basées sur des âges absolus et horizons stratigraphiques. Il est ainsi possible de reconstruire les variations passées du taux d'accumulation (quantité de neige précipitée à la surface de la calotte), de l'amincissement des couches de glace (rapport entre l'épaisseur réelle d'une couche annuelle à une certaine profondeur et son épaisseur d'origine lors du dépôt en surface) et la profondeur de piégeage de l'air en équivalent glace (LIDIE).

Certains marqueurs du contenu en air dans la glace présents dans EDC3 ont été remplacés par plusieurs nouveaux marqueurs. Pour EDC, 39 nouveaux marqueurs basés sur le $\delta^{18}O_{atm}$ sont utilisés entre 300 et 800 ka, remplaçant pour certains les marqueurs de Dreyfus et al. [2007] notamment pendant les stades isotopiques 11 et 12. 35 marqueurs sont aussi définis à Vostok ainsi que 8 marqueurs faisant le lien entre Vostok et TALDICE au cours des derniers 150 ka. Ces nouveaux marqueurs sont dérivés du lien entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation au 21 juin à 65°N, en considérant une incertitude de 6 ka. 20 nouveaux marqueurs utilisant la relation entre le $\delta O_2/N_2$ et l'insolation antarctique à 75°S ont également été utilisés pour la carotte de Dome C. Ces marqueurs ont une incertitude d'environ 4 ka. Enfin, 14 marqueurs orbitaux basés sur le contenu total en air dans la glace ont été obtenus pour EDC, avec une incertitude de $\pm$ 1 ka [Bazin et al., 2013]. Quelques marqueurs absolus obtenus par comptage des couches, avec des téphras ou encore avec l'inversion du Brunhes-Matuyama autour de 780 ka sont également utilisés. La synchronisation entre les différentes carottes de glace se fait ensuite au travers du $CH_4$ ou du $\delta^{18}O_{atm}$ pour la phase gaz et des éruptions volcaniques pour la phase glace.

Beaucoup de marqueurs stratigraphiques ont été imposés sur les derniers 350 ka ce qui permet d'avoir une bonne comparaison des séquences temporelles, notamment si l'on regarde le $CH_4$ et les isotopes de l'eau, avec une incertitude plutôt faible de $\pm$ 1,5 ka. Entre 350 et 800 ka il n'y a pas de points stratigraphiques communs entre EDC et Vostok (comme l'enregistrement de Vostok s'arrête à 372 ka) ce qui fait que la carotte de Dome C utilise ses propres marqueurs ($\delta^{18}O_{atm}$, $\delta O_2/N_2$ ou contenu total en air dans la glace). Une comparaison des chronologies AICC2012 et EDC3 montre une grande similarité pour les derniers 350 ka. La différence entre

les deux chronologies varie de -0,8 à +3 ka (Figure 2.7). Au-delà de 350 ka la différence est plus importante et atteint notamment un maximum durant le stade isotopique 12 avec un décalage de 5,3 ka, pendant une période de faible excentricité et précession.

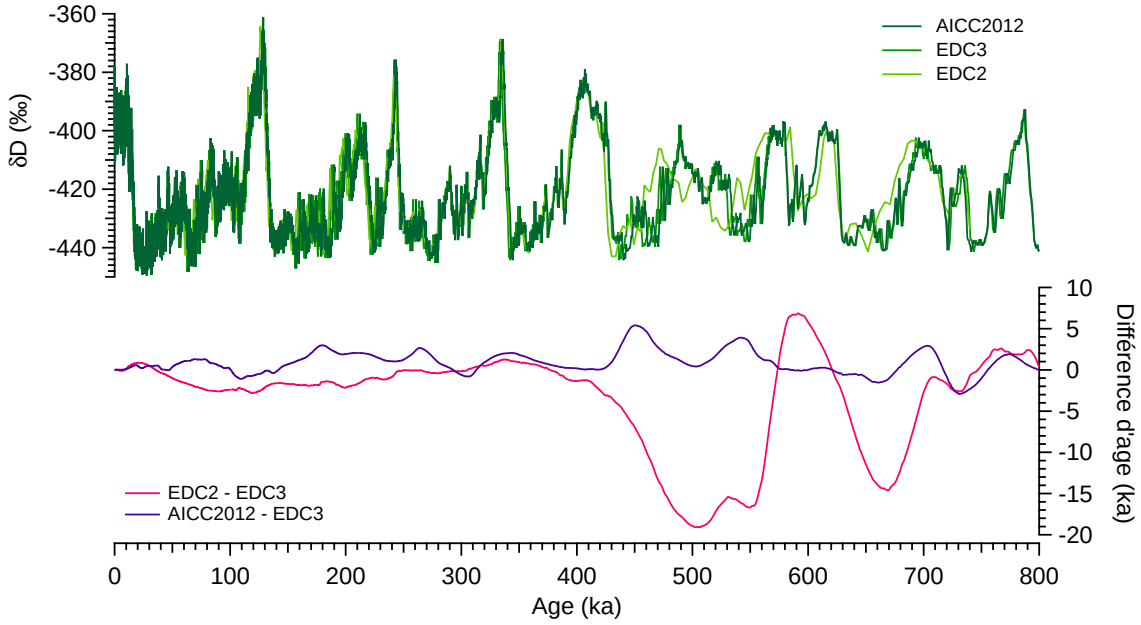



FIGURE 2.7 – Comparaison de l'enregistrement du $\delta$D [Jouzel et al., 2007] sur différentes chronologies : sur AICC2012 [Bazin et al., 2013], sur EDC3 [Parrenin et al., 2007] et sur EDC2 [EPICA Community Members, 2004]. La différence d'âge entre les chronologies EDC2 – EDC3 et AICC2012 – EDC3 est aussi représentée.

Une comparaison du $CH_4$ sur AICC2012 avec des enregistrements de $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes des basses latitudes peut aussi être faite sur les derniers 50 ka (Figure 2.8), en supposant que les deux proxies varient en phase, suite à une modification du cycle hydrologique et donc de l'activité des zones humides. Lors des évènements de Heinrich, la hausse du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques témoigne d'une diminution de l'activité de la mousson, en lien avec une concentration en méthane plus faible. A la suite de ces évènements, une augmentation rapide de la température est observée au Groenland avec une période d'activité de la mousson plus intense (décalage vers le Nord de la Zone de Convergence Intertropicale), caractéristique de la première partie des évènements de Dansgaard-Oeschger (Figure 2.8). Aligner le méthane avec le $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes peut donc être une solution pour construire une échelle d'âge des carottes de glace, comme proposé par Shackleton et al. [2004] ; Buizert et al. [2015]. Bien que cette méthode puisse être appropriée pour des échelles de temps millénaires au cours de la

dernière période glaciaire, cela pose toutefois problème pour les déglaciations car le méthane est fortement influencé par des émissions hautes latitudes pendant des périodes chaudes.

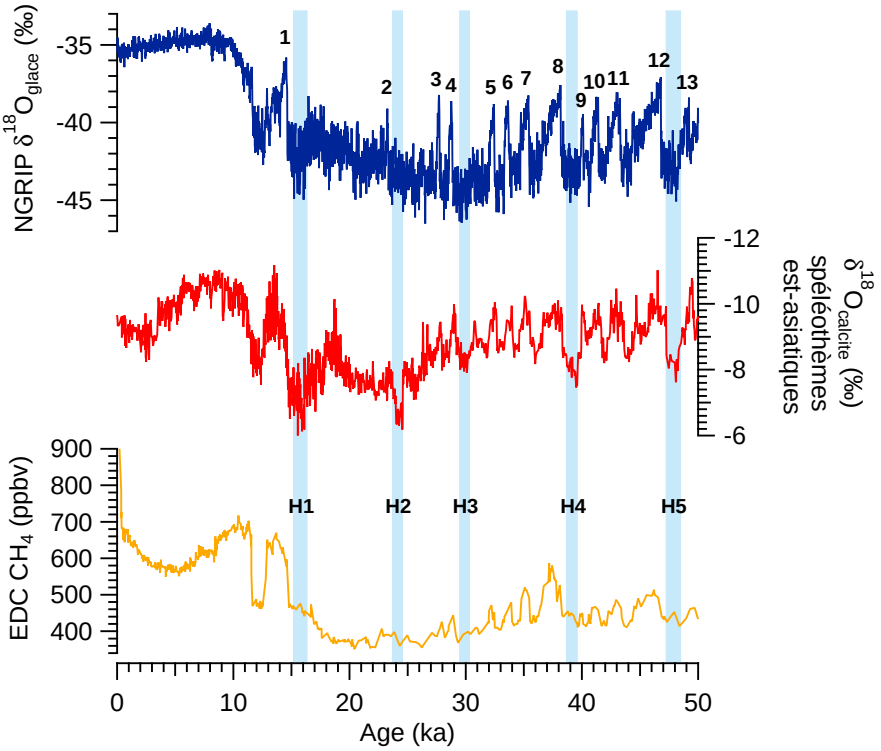



FIGURE 2.8 – Variations du $\delta^{18}O_{glace}$ de NGRIP [NorthGRIP Community Members, 2004] sur la chronologie AICC2012 en comparaison avec le $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques [Cheng et al., 2016] et avec le $CH_4$ sur la chronologie AICC2012 mesuré à Dome C [Loulergue et al., 2008]. Les numéros associés à la courbe de NGRIP correspondent aux évènements de Dansgaard-Oeschger. Les barres bleues représentent les évènements de Heinrich.

Malgré l'amélioration de la chronologie des carottes de glace grâce notamment à des nouvelles contraintes, l'incertitude associée reste élevée avec 6 ka jusqu'à la base de l'enregistrement à 800 ka. La partie la plus récente (derniers 150 ka) est toutefois améliorée avec de nouveaux liens stratigraphiques permettant de réduire les incertitudes, même si des incohérences persistent lors de la comparaison avec d'autres enregistrements climatiques (voir Chapitre 3). C'est pourquoi la réduction de ces incertitudes est nécessaire via le développement d'une nouvelle chronologie.

Parmi tous les traceurs étudiés dans les carottes de glace, je me concentre dans ce manuscrit sur des mesures de $\delta^{18}O_{atm}$ et de $\delta O_2/N_2$ afin de compléter les données manquantes dans l'enregistrement de Dome C.

## 2.5 Mesures du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta O_2/N_2$

### 2.5.1 Protocole expérimental

Les échantillons de glace sont découpés en chambre froide afin d'éliminer environ 5 mm sur toutes les faces de l'échantillon pour tenir compte d'une possible contamination par l'air ambiant lors de la conservation de la glace. L'échantillon est ensuite découpé en plus petits morceaux afin de rentrer dans les ballons de la ligne d'extraction. L'extraction doit ensuite être réalisée dans la journée afin d'éviter toute nouvelle contamination avec l'air ambiant. La méthode d'extraction semi-automatique (Figure 2.9) permet de mesurer 6 échantillons, sachant qu'un échantillon doit être analysé deux fois pour estimer les incertitudes. Deux échantillons d'air extérieur sont ajoutés afin de calibrer et de vérifier le bon fonctionnement de la ligne. Les ballons contenant les échantillons de glace sont maintenus dans un bain d'alcool à -25°C pendant 40 minutes, le temps de la mise sous vide de la ligne. On vérifie ensuite l'absence de fuite sur la ligne et le pompage commence. Les fioles sont enlevées du bain d'éthanol et mises dans un bain d'eau à température ambiante pendant environ 20 minutes. Elles sont ensuite retirées du bain et laissées au contact de l'air ambiant pendant environ 1h30 le temps que les morceaux de glace fondent. La séquence de transfert peut ensuite commencer avec le passage des échantillons d'air au travers de différents pièges. Ils passent tout d'abord dans un piège à eau puis dans un piège à $CO_2$ avant d'être piégés dans un tube en inox plongé dans de l'hélium liquide à -269°C. La rosette est ensuite retirée de l'hélium liquide et laissée à température ambiante pendant 40 minutes pour que les éléments aient le temps de repasser en phase gaz et d'être homogène en température, avant de pouvoir commencer les analyses au spectromètre de masse.

Les mesures de la composition isotopique de l'air piégé dans la glace ont été réalisées au LSCE sur un spectromètre de masse Thermo Delta V Plus. Celui-ci contient 10 collecteurs permettant de mesurer simultanément les compositions isotopiques de l'azote ($N_2$, masses 28, 29 et 30), de l'oxygène ($O_2$, masses 32, 33 et 34), de l'argon (Ar, masses 36, 38 et 40) et du $CO_2$ (masse 44). Au préalable, le vide doit être fait dans le spectromètre durant la nuit pour extraire les gaz restants. Le logiciel de commande ISODAT gère l'ouverture et la fermeture des vannes ainsi que les différents pompages. Sont ensuite introduits en même temps par détente dans un

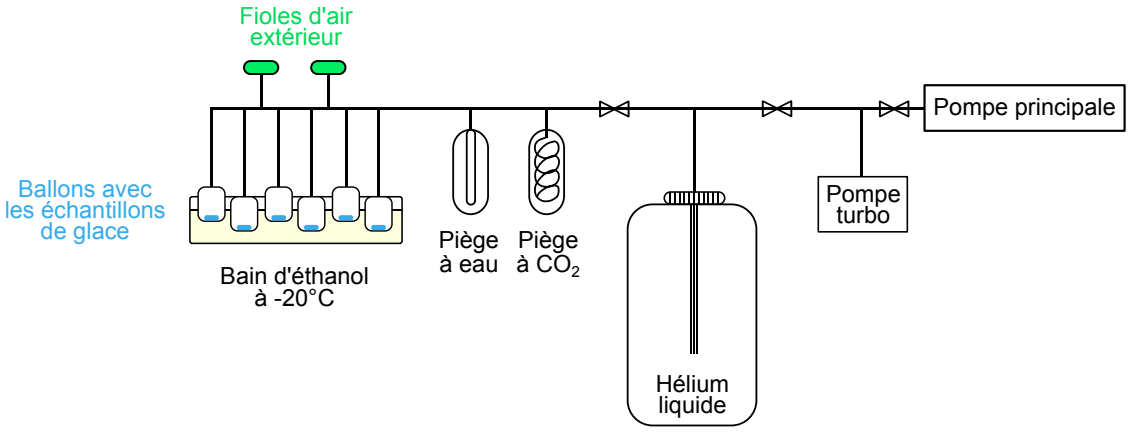



FIGURE 2.9 – Schéma de la ligne d'extraction semi-automatique de l'air piégé dans la glace (adapté de Bazin [2015]).

des volumes variables du spectromètre un aliquote de standard de laboratoire (1 $cm^3$ d'air sec atmosphérique sans $CO_2$) et l'échantillon à mesurer. Cette méthode permet de s'affranchir d'un possible fractionnement isotopique de l'air pouvant apparaître lors de la phase de transfert de la canne en inox vers le volume variable. Les gaz sont ensuite introduits dans la source du spectromètre de masse en ajustant les volumes du standard et de l'échantillon. Deux séquences de 16 mesures sont réalisées pendant 45 minutes, en alternant à chaque fois mesure de standard, mesure de l'échantillon et mesure de standard pour terminer.

### 2.5.2 Corrections

Afin de limiter les biais induits par la procédure expérimentale et par les mesures au spectromètre de masse, il est nécessaire d'appliquer certaines corrections aux données brutes. Ces corrections ont été définies par Sowers et al. [1989] puis modifiées par la suite par Landais et al. [2003] et Severinghaus et al. [2003] :

- Correction liée à la différence de pression : le volume de l'échantillon et du standard étant différents lors de l'introduction dans le spectromètre de masse, cela provoque une différence de pression entre eux. Bien que les volumes variables du spectromètre soient équilibrés de façon à avoir une pression identique côté standard et côté échantillon, l'évolution va être différente au cours des mesures selon la vitesse de consommation du volume variable.

- Correction liée à l'interférence de masse : les gaz analysés n'étant pas purs, cela entraîne une interférence de masse au niveau de la source du spectromètre. Certains éléments ont une influence notable sur la mesure de certains isotopes comme par exemple le $\delta^{15}$N qui dépend de la quantité d'oxygène présent dans le mélange $O_2$-$N_2$ ou encore la teneur en oxygène $\delta^{18}$O qui dépend de la proportion d'azote dans le mélange.

- Correction par rapport à l'air extérieur : les mesures s'expriment par rapport à un standard. Pour éviter une évolution de la valeur de ce standard, celui-ci est calibré par rapport à un échantillon d'air atmosphérique extérieur actuel. Les mesures des différents gaz sont donc exprimées en fonction de l'air atmosphérique extérieur.

Les mesures de $\delta^{18}O_{atm}$ sont ensuite corrigées des processus de fractionnement gravitationnel (Equation 2.4) et de fractionnement par perte de gaz (Equation 2.6).

# Chapitre 3

# Amélioration des contraintes chronologiques apportées par le $\delta^{18}O_{atm}$

Dans le Chapitre 2 nous avons présenté les différents proxies mesurés dans la phase gaz et glace de la carotte de Dome C ainsi que les différentes chronologies développées pour cette carotte de glace. Ce chapitre présente un article publié sur l'utilisation du $\delta^{18}O_{atm}$ pour améliorer la chronologie des carottes de glace.

A partir des enregistrements de concentration en gaz atmosphérique et du $\delta$D sur les derniers 800 ka, il est possible de reconstituer les variations environnementales sur plusieurs cycles climatiques. Les mesures de $\delta^{18}O_{atm}$ sont quant à elles influencées au cours des 8 derniers cycles climatiques par les variations du niveau marin, du cycle hydrologique et de la productivité de la biosphère terrestre et marine. Comme présenté dans le chapitre précédent, le $\delta^{18}O_{atm}$ peut aussi être utilisé via son lien avec l'insolation au 21 juin à 65°N afin de construire une chronologie pour les carottes de glace. Cette méthode de tuning orbital considère un décalage de 6 ka entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation, comme au cours de la dernière déglaciation [Bender et al., 1994] ; [Jouzel et al., 1996] ; [Petit et al., 1999] ; [Jouzel et al., 2002] ; [Dreyfus et al., 2007]. Ce décalage observé mais dont la cause n'est pas comprise, conduit à une incertitude élevée de 6 ka pour la chronologie des carottes de glace. Même si ce décalage est susceptible de varier au cours du temps du fait des interactions complexes entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation au 21 juin à 65°N [Jouzel et al., 2002], il est considéré constant dans le cadre de la construction de la

chronologie des carottes de glace [Dreyfus et al., 2007] ; [Parrenin et al., 2007] ; [Bazin et al., 2013]. L'interprétation des déphasages entre les différents enregistrements paléoclimatiques est de ce fait limitée sur de longues échelles de temps et peut induire des erreurs de datation. On observe par exemple un décalage de plusieurs milliers d'années entre les mesures de $\delta^{18}O_{glace}$ aux hautes latitudes dans la carotte NGRIP (utilisé comme proxy de la température locale) et un enregistrement moyennes latitudes des spéléothèmes alpins (NALPS - Northern rim of the Alps) indicateur des variations climatiques de l'Atlantique Nord (Section 3.3.1) [Veres et al., 2013].
Ainsi la diminution de l'incertitude liée à la chronologie des carottes de glace permettrait de réaliser une comparaison avec d'autres archives climatiques bien datées, tout en limitant les erreurs d'interprétation en terme de dynamique du climat. Une telle amélioration passe entre autres par une meilleur compréhension des phénomènes qui contrôlent les variations du $\delta^{18}O_{atm}$.

Les sections suivantes résument les principaux résultats d'un article publié, présenté dans la Section 3.5, et qui aborde les origines du décalage entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation.

## 3.1 Mesures du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta O_2/N_2$ entre 153 et 375 ka

En l'absence du comptage des couches annuelles, le tuning orbital est utilisé pour construire une chronologie des carottes de glace. Pour cela, le $\delta^{18}O_{atm}$, le contenu total en air et le $\delta O_2/N_2$ sont utilisés afin de contraindre la construction de la chronologie. Ce tuning orbital permet d'attribuer un âge à partir de la comparaison entre le proxy mesuré dans la carotte de glace et les variations de l'insolation au 21 juin à 65°N (pour le $\delta^{18}O_{atm}$), de l'insolation locale intégrée d'été (pour le contenu en air) ou de l'insolation au 21 décembre à 75°S (pour le $\delta O_2/N_2$).
Afin d'obtenir un enregistrement complet au cours des derniers 400 ka à EDC et étudier les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta O_2/N_2$ pour améliorer la chronologie comme réalisé par Bazin et al. [2016] entre 400 et 800 ka, j'ai réalisé de nouvelles mesures à haute résolution du $\delta^{18}O_{atm}$ et $\delta O_2/N_2$ sur la période 153-336 ka. D'autres mesures de la composition isotopique de l'oxygène atmosphérique et du $\delta O_2/N_2$ effectuées entre 2008 et 2016 et encore non publiées viennent s'ajouter aux mesures réalisées pendant cette thèse. Sur l'ensemble des nouvelles données, 75 échantillons ont été stockés à -50°C et utilisés pour mesurer à la fois le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta O_2/N_2$.

337 autres échantillons ont été stockés à -20°C et complètent les mesures de $\delta^{18}O_{atm}$. A l'exception des données mesurées à l'Université de Princeton par Dreyfus [2008], les mesures des gaz ont été réalisées au LSCE en utilisant une ligne semi-automatique [Capron et al., 2010]. L'écart type moyen obtenu est de 0,03 ‰ pour les nouvelles mesures de $\delta^{18}O_{atm}$ et de 0,37 ‰ pour les mesures de $\delta O_2/N_2$. Ces nouvelles données présentées sur la Figure 3.1 complètent celles déjà existantes et permettent d'avoir des enregistrements continus sur les derniers 800 ka pour le $\delta^{18}O_{atm}$ et entre 100 et 800 ka pour le $\delta O_2/N_2$.

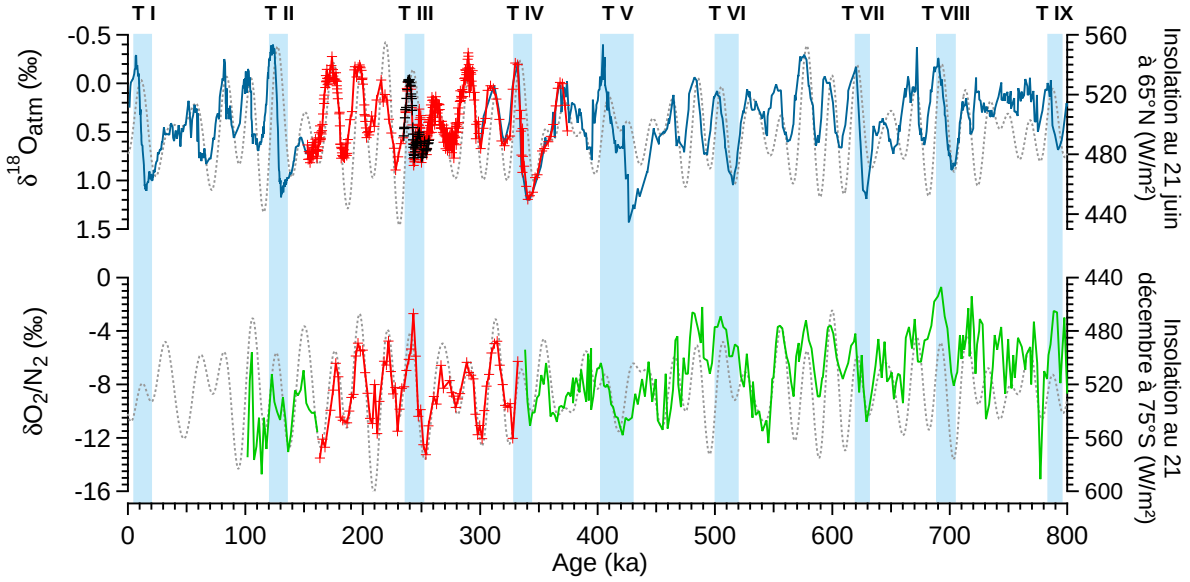



FIGURE 3.1 – Présentation des nouvelles mesures de $\delta^{18}O_{atm}$ et $\delta O_2/N_2$ à Dome C en rouge pour les mesures effectuées au LSCE et en noir pour celles réalisées à l'Université de Princeton. Les données déjà existantes de $\delta^{18}O_{atm}$ [Petit et al., 1999] ; [Dreyfus et al., 2007] ; [Dreyfus et al., 2008] ; [Landais et al., 2013] ; [Bazin et al., 2016] et de $\delta O_2/N_2$ [Landais et al., 2012] ; [Bazin et al., 2016] sont représentées respectivement en bleu et vert. Les insolations au 21 juin à 65°N et au 21 décembre à 75°S sont également représentées en gris [Laskar et al., 2004]. Les terminaisons glaciaires-interglaciaires sont marquées par les bandes bleues.

| Années | Mesures | Laboratoire | Nombre d'échantillons | Période couverte (ka) |
|---|---|---|---|---|
| 2016 - 2017 | $\delta^{18}O_{atm}$ | LSCE | 101 | 153,03 - 336,47 |
| 2014 - 2016 | $\delta^{18}O_{atm}$ | LSCE | 255 | 162,11 - 374,22 |
| 2008 | $\delta^{18}O_{atm}$ | Université de Princeton | 56 | 235,01 - 256,32 |
| 2015 - 2016 | $\delta O_2/N_2$ | LSCE | 75 | 163,56 - 332,03 |

TABLE 3.1 – Tableau récapitulatif des mesures de $\delta^{18}O_{atm}$ et de $\delta O_2/N_2$.

## 3.2 Développement d'une nouvelle chronologie

### 3.2.1 Méthode d'alignement entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta^{18}O_{calcite}$

A partir de ces nouvelles données à haute résolution en $\delta^{18}O_{atm}$ et $\delta O_2/N_2$ obtenues sur la carotte de glace d'EPICA Dome C, il est possible de regarder le décalage entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation au 21 juillet à 65°N pour les derniers 800 ka. Cette courbe d'insolation est très similaire à celle au 21 juin à 65°N utilisée par Jouzel et al. [1996] ; Shackleton [2000] ; Dreyfus et al. [2007] ou encore à l'insolation d'été à 20°N utilisée par Bender et al. [1994] ; Malaizé et al. [1999]. Cependant, le $\delta^{18}O_{calcite}$ asiatiques utilise l'insolation au 21 juillet à 65°N comme cible. Afin de comparer les variations entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta^{18}O_{calcite}$, cette insolation est ici préférée. En effet, des similitudes ont déjà été observées à l'échelle orbitale et millénaire entre les enregistrements de $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes asiatiques et le $\delta^{18}O_{atm}$ à Dome C [Wang et al., 2008] ; [Severinghaus et al., 2009] ; [Landais et al., 2010] et nous allons explorer ce lien dans cette étude.

Contrairement au $\delta^{18}O_{atm}$, le $\delta O_2/N_2$ n'est pas influencé par le cycle hydrologique des basses latitudes ou par le volume des calottes de glace. Les deux proxies sont influencés par différents mécanismes. De plus, très peu de décalage est observé entre l'insolation au 21 juillet à 65°N et l'insolation au 21 décembre à 75°S (moins de 500 ans sur les derniers 800 ka). Par conséquent, si un décalage important est observé entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta O_2/N_2$ et leurs insolations respectives, alors ce décalage est dû à un problème d'alignement entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et sa cible d'insolation. Pour regarder en parallèle le décalage entre le $\delta O_2/N_2$ versus l'insolation au 21 décembre à 75°S et le $\delta^{18}O_{atm}$ versus l'insolation au 21 juillet à 65°N comme déjà proposé par

Bazin et al. [2016], je me suis servi de la méthode de programmation Match Protocol [Lisiecki and Lisiecki, 2002] utilisant des données normalisées. Contrairement aux méthodes de corrélation manuelles assez fastidieuses ou aux précédentes méthodes automatiques pouvant seulement trouver des solutions optimisées de manière locale (en forçant le pic d'un signal à correspondre au pic d'un second signal), cette technique ne présente aucun de ces désavantages. Le Match Protocol permet de trouver l'ajustement le plus réaliste entre deux enregistrements, même avec des périodes sans données, avec un taux de sédimentation variant beaucoup ou avec un faible ratio signal/bruit. Le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta O_2/N_2$ ont donc été alignés avec leur insolation respective, puis j'ai calculé la différence d'âge entre l'enregistrement original et l'enregistrement obtenu après alignement pour étudier la courbe de décalage entre chaque proxy et sa cible. J'ai ensuite regardé l'écart entre les deux courbes de décalage obtenues précédemment.

L'analyse du décalage entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta O_2/N_2$ montre que la valeur maximale de décalage d'environ 5 ka est uniquement obtenue pendant les terminaisons glaciaires-interglaciaires et que pour les autres périodes, le décalage est plus faible (Figure 3.2). En considérant que le $\delta O_2/N_2$ ne présente pas de décalage par rapport à sa cible d'insolation, alors ce décalage de 5 ka est dû à un problème entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation au 21 juillet à 65°N. Nous suggérons que les périodes de décalage maximal lors des terminaisons sont associées à l'occurrence d'évènements de Heinrich enregistrés dans l'océan Atlantique Nord. Ces évènements entraînent une modification du cycle hydrologique et des zones de précipitations au niveau des basses latitudes, qui se traduit ensuite par une augmentation du $\delta^{18}O_{atm}$ qui peut expliquer un décalage important de la courbe du $\delta^{18}O_{atm}$ par rapport au signal d'insolation. Cette augmentation du $\delta^{18}O_{atm}$ lors de l'évènement de Heinrich a été simulée par Reutenauer et al. [2015] lors d'une expérience de modélisation d'ajout d'eau douce dans l'océan Atlantique Nord et a également été testé pendant cette thèse (voir Section 5.2).

La méthode de datation des carottes de glace basée sur la relation entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation au 21 juillet à 65°N n'est donc pas optimale et ce décalage de 5 ka ne devrait pas être appliqué sur l'ensemble de la carotte mais uniquement lors des terminaisons. Une alternative à l'insolation est donc proposée pour aligner le $\delta^{18}O_{atm}$.

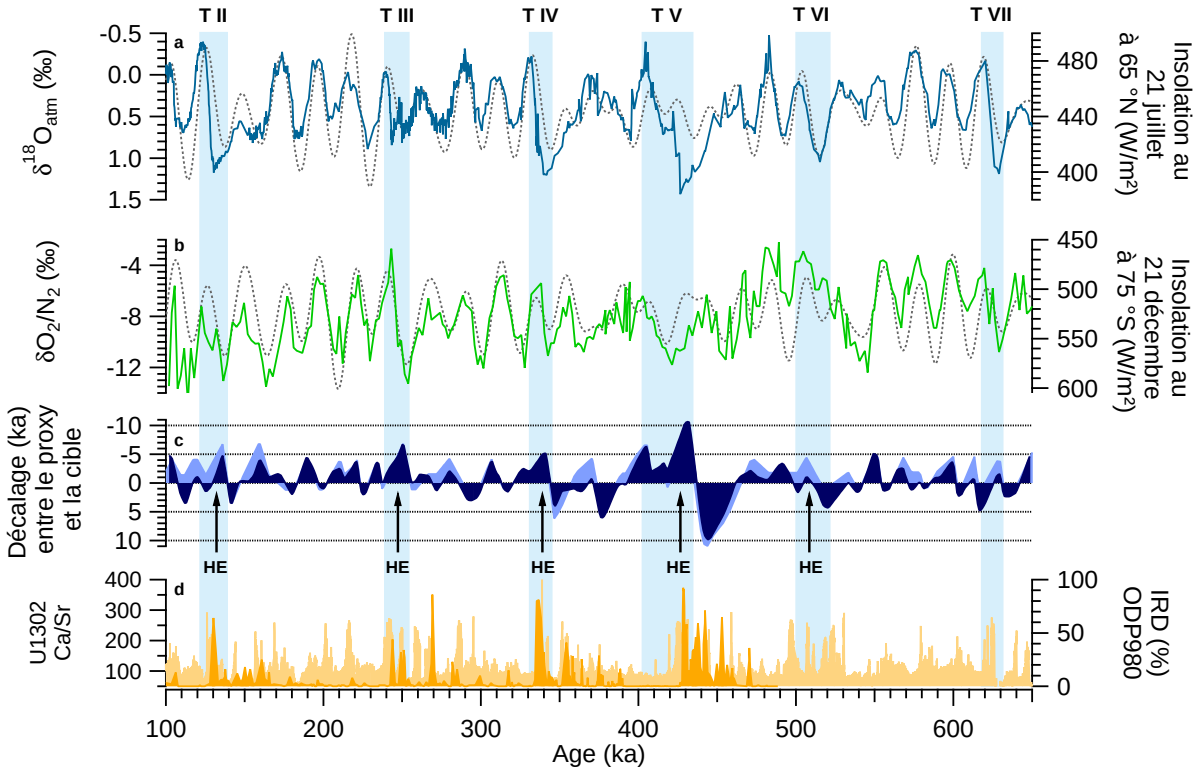



FIGURE 3.2 – Estimation du décalage entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation à partir des données de $\delta O_2/N_2$. (a) Le $\delta^{18}O_{atm}$ [Dreyfus et al., 2007] ; [Landais et al., 2013] ; [Bazin et al., 2016] ; [Extier et al., 2018] et l'insolation au 21 juillet à 65°N [Laskar et al., 2004], (b) le $\delta O_2/N_2$ [Landais et al., 2012] ; [Bazin et al., 2016] ; [Extier et al., 2018] et l'insolation au 21 décembre à 75°S [Laskar et al., 2004], (c) le décalage original entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation à 65°N en bleu clair et le décalage calculé entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation à 65°N en utilisant les données de $\delta O_2/N_2$ alignées sur l'insolation à 75°S en bleu foncé, (d) le pourcentage en IRD au site ODP980 [McManus et al., 1999] et la concentration en Ca/Sr au site U1302 [Channell et al., 2012] utilisés comme indicateurs des évènements de Heinrich. Les bandes bleues représentent les terminaisons glaciaires-interglaciaires.

L'étude de Caley et al. [2014] a montré que le $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes asiatiques doit être considéré comme un proxy de la dynamique annuelle du cycle hydrologique. A l'échelle millénaire, le $\delta^{18}O_{calcite}$ des basses latitudes répond comme le $\delta^{18}O_{atm}$ aux évènements de Heinrich avec un déplacement de la Zone de Convergence Intertropicale vers le Sud, une modification du cycle hydrologique avec un changement dans la composition isotopique de l'eau météorique et une augmentation de la valeur du $\delta^{18}O_{calcite}$ et du $\delta^{18}O_{atm}$. Le comportement similaire de ces deux proxies aux variations orbitales et millénaires, de même que le fait que les spéléothèmes est-asiatiques soient très bien datés par $^{230}$Th avec de faibles incertitudes, pousse à vouloir uti-

liser le $\delta^{18}O_{calcite}$ comme cible pour le $\delta^{18}O_{atm}$ au lieu de l'insolation au 21 juillet à 65°N avec un décalage constant de 5 ka. Aligner le $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques et le $\delta^{18}O_{atm}$ pourrait donc être une solution pour améliorer la chronologie des carottes de glace sur des longues périodes de temps.

Dans cette optique j'ai développé une méthode d'alignement entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta^{18}O_{calcite}$ des basses latitudes (enregistrement composite des spéléothèmes est-asiatiques provenant des grottes de Dongge, Sanbao, Hulu et Linzhu, établi par Cheng et al. [2016]) en définissant des pointeurs aux mi-pentes des deux signaux (soit les valeurs extrêmes des dérivées temporelles) pour aligner les changements abrupts. Toutefois, l'alignement du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ n'est pas forcement évident à cause du temps de résidence de l'oxygène dans l'atmosphère et du fait que le $\delta^{18}O_{calcite}$ présente parfois des variations abruptes beaucoup plus rapides que celles du $\delta^{18}O_{atm}$. Cette méthode est détaillée dans l'Article 1 et les techniques d'alignement entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta^{18}O_{calcite}$ sont reprises dans la Section 3.4.

### 3.2.2 DATICE

La méthode d'alignement proposée précédemment peut être intégrée aux autres méthodes de construction de chronologie pour proposer une nouvelle échelle d'âge des enregistrements de NGRIP et EDC en utilisant le logiciel DATICE développé par Lemieux-Dudon et al. [2010] et utilisé par Bazin et al. [2013] pour la construction de la chronologie AICC2012.
Ce logiciel se base sur une méthode de datation inverse. Les âges gaz et glace sont déterminés à partir de la modélisation du taux d'accumulation, de la fonction d'amincissement et de la profondeur de piégeage de l'air en équivalent glace. Des observations telles que des marqueurs absolus ou des horizons datés peuvent être utilisés pour contraindre la chronologie. Afin d'avoir une chronologie cohérente entre les 5 carottes de glace (NGRIP, TALDICE, EDC, Vostok, EDML), tous les pointeurs utilisés dans la construction d'AICC2012 sont identiques à l'exception des 4 marqueurs de Vostok pendant le MIS 5 qui ont été supprimés. Les pointeurs définis lors de l'alignement du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ au niveau des tropiques sont également ajoutés dans le logiciel pour contraindre la chronologie.

## 3.3 Application de la nouvelle chronologie à différents enregistrements

### 3.3.1 Lors d'évènements de Dansgaard-Oeschger observés à NGRIP

La séquence des évènements de Dangaard-Oeschger (DO) dans la carotte hautes latitudes de NGRIP au cours de la dernière entrée en glaciation entre 100 et 125 ka présente des différences de plusieurs milliers d'années par rapport à un enregistrement moyennes latitudes du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes du Nord des Alpes (NALPS - Northern rim of the Alps [Boch et al., 2011]) (Figure 3.3). Il est peu probable que ces changements climatiques globaux soient autant décalés entre les Alpes et le Groenland. Sachant que l'enregistrement du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes de NALPS est très bien daté par $^{230}$Th avec une incertitude de 500 ans entre 100 et 125 ka, le décalage observé entre les deux enregistrements viendrait des incertitudes élevées associées à la chronologie AICC2012 (basée sur le $\delta^{18}O_{atm}$ sur cette période). Afin de réduire les incertitudes liées à la chronologie des carottes de glace et dans le but de comparer la séquence des évènements de Dansgaard-Oeschger au cours de la dernière entrée en glaciation, la méthode d'alignement du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ des basses latitudes a été utilisée (en utilisant les valeurs extrêmes de leurs dérivées respectives, représentant les mi-pentes de leurs variations) pour définir de nouveaux marqueurs au cours de cette période. Cette approche permet de construire une nouvelle chronologie pour l'enregistrement de NGRIP.

En appliquant ces nouveaux marqueurs, la chronologie AICC2012 est plus vieille de 2,3 ka pour les DO23 et 24, et plus vieille de 2,2 ka pour le DO25 (Figure 3.3), ce qui donne une succession temporelle comparable pour les évènements de Dansgaard-Oeschger entre les enregistrements de $\delta^{18}O_{glace}$ de NGRIP et de $\delta^{18}O_{calcite}$ de NALPS. En comparaison du décalage de 1,75 à 2,7 ka observé entre les enregistrements de NGRIP sur AICC2012 et NALPS pour les évènements de Dansgaard-Oeschger 23, 24 et 25, la nouvelle chronologie basée sur l'alignement du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ des tropiques permet de réduire cet écart avec des valeurs allant de 0,14 à 0,53 ka. Cette chronologie présente aussi une réduction des incertitudes comparativement à AICC2012, avec une valeur de 1,2 ka entre 100 et 125 ka.

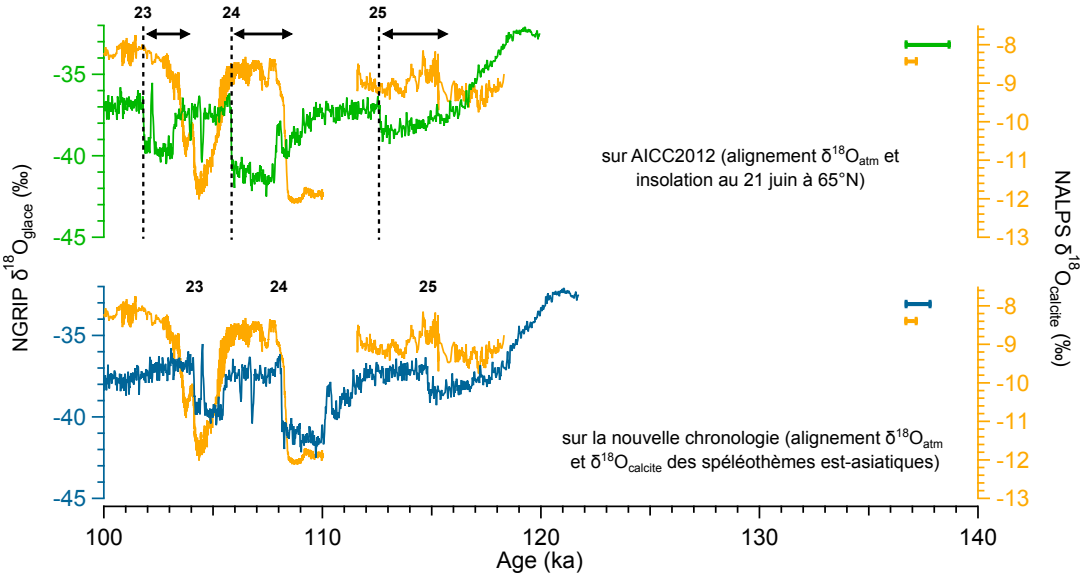



FIGURE 3.3 – Représentation de l'enregistrement du $\delta^{18}O_{glace}$ de NGRIP sur AICC2012 en vert [NorthGRIP Community Members, 2004] et sur la nouvelle chronologie en bleu basée sur l'alignement du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques en comparaison avec l'enregistrement des spéléothèmes alpins en orange [Boch et al., 2011] lors des évènements de Dansgaard-Oeschger 23, 24 et 25. Les barres d'erreur associées aux différents enregistrements sont également représentées.

### 3.3.2 Application au cours des derniers 640 ka à EDC

J'ai ensuite appliqué cette méthode d'alignement du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ mesuré aux tropiques sur la période 100-640 ka en considérant 51 marqueurs d'alignement basés sur les dérivées temporelles du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes des basses latitudes (Figure 3.4) dans le but d'obtenir une nouvelle chronologie de la carotte de Dome C et de réduire les incertitudes. Il en résulte une différence d'âge entre la chronologie actuelle AICC2012 et la nouvelle chronologie généralement inférieure à 2 ka, excepté pour le stade isotopique 11 où le décalage atteint 4 ka à cause de la faible excentricité ayant permis peu de points de calage lors de la construction de AICC2012. L'incertitude de la nouvelle chronologie est quant à elle réduite par rapport à celle d'AICC2012 sur les derniers 450 ka, notamment lors du stade isotopique 11 avec $\sim$2 ka au lieu de $\sim$4 ka (Article 1, Figure 10). Entre 450 et 650 ka, l'incertitude est proche de celle d'AICC2012 du fait des incertitudes plus élevées sur les points de datation U/Th sur les spéléothèmes. L'utilisation du $\delta^{18}O_{atm}$ en lien avec le $\delta^{18}O_{calcite}$ des tropiques, préféré à l'insolation au 21 juin à 65°N jusque là utilisée, permet donc d'obtenir une nouvelle chronologie des carottes de glace avec une réduction des incertitudes associées.

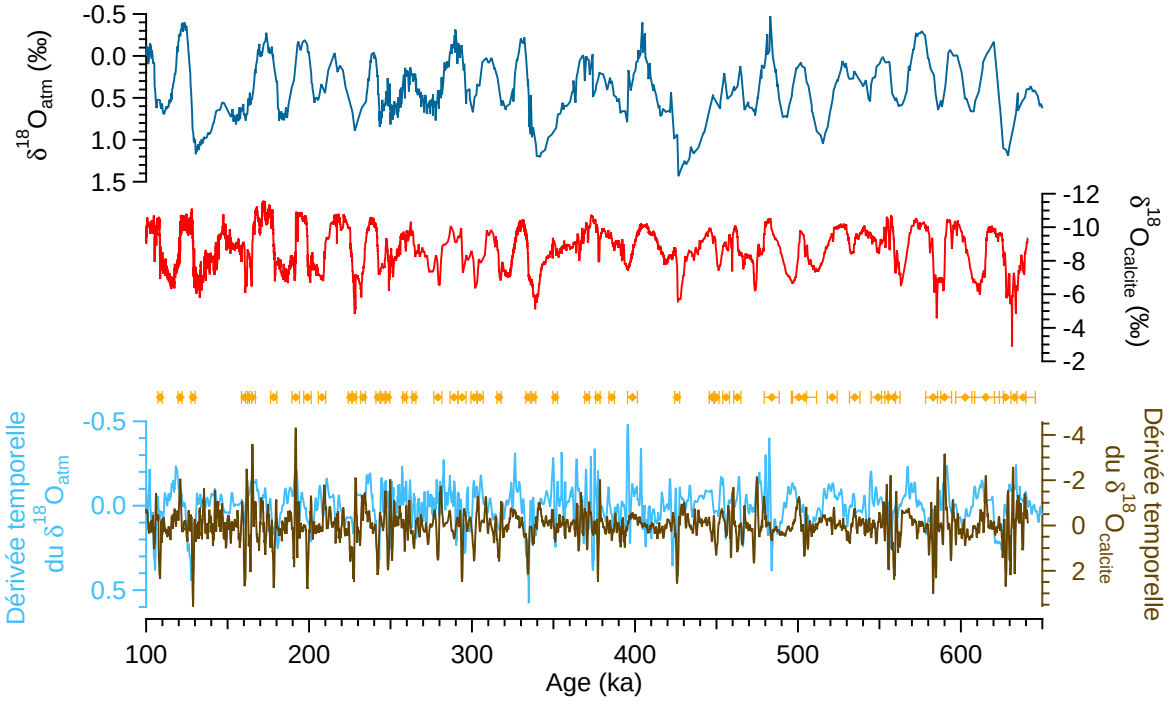



FIGURE 3.4 – Détail des différents marqueurs d'alignement en orange utilisés pour l'alignement du $\delta^{18}O_{atm}$ (courbe bleue [Dreyfus et al., 2007] ; [Landais et al., 2013] ; [Bazin et al., 2016] ; [Extier et al., 2018]) avec le $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques (courbe rouge [Cheng et al., 2016]) entre 100 et 640 ka. Ces marqueurs sont définis à partir des dérivées temporelles des deux enregistrements originaux (courbes en bleu clair et marron).

## 3.4 Etude de la capacité de la méthode à réduire les incertitudes

Bien que cette méthode d'alignement entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta^{18}O_{calcite}$ des basses latitudes permette d'améliorer la chronologie des carottes de glace et de réduire les incertitudes associées, plusieurs incertitudes et limites développées dans l'Article 1 sont ici reprises en détail.

La première est liée au fait que le $\delta^{18}O_{atm}$ est un signal plus intégré que le $\delta^{18}O_{calcite}$ qui fait intervenir un contrôle potentiel de la saisonnalité par les variations des températures océaniques de surface ou le déplacement de la Zone de Convergence Intertropicale. L'étude de Caley et al. [2014] a toutefois montré que le signal de $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes asiatiques doit être considéré comme un proxy du cycle hydrologique annuel moyen et non comme un proxy de la mousson d'été qui peut donc être utilisé comme cible pour l'alignement du $\delta^{18}O_{atm}$.

La seconde incertitude est associée à la datation des spéléothèmes par $^{230}$Th. La courbe composite du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spélothèmes est-asiatique de Cheng et al. [2016] présente des incertitudes relativement faibles (0,5 à 1 ka) sur la partie la plus récente mais qui augmentent jusqu'à la base de l'enregistrement à 640 ka avec un maximum de 8 ka.

La troisième incertitude concerne la méthode d'alignement en elle même avec le choix des points de calibration. Plusieurs méthodes ont été testées (Figure 3.5). Tout d'abord l'alignement des valeurs extrêmes de la dérivée temporelle du signal de $\delta^{18}O_{atm}$ avec celle du $\delta^{18}O_{calcite}$, correspondant aux mi-pentes des deux enregistrements. Puis l'alignement des périodes de changement de signe de la dérivée pour correspondre aux points d'inflexions des enregistrements originaux du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$. Enfin l'alignement des valeurs extrêmes de la dérivée du $\delta^{18}O_{atm}$ avec les variations abruptes du $\delta^{18}O_{calcite}$, méthode particulièrement adaptée pour la variabilité millénaire comme proposé par Severinghaus et al. [2009] via l'utilisation du $\Delta\varepsilon_{land}$ censé représenter les changements du cycle hydrologique qui contrôlent les variations du $\delta^{18}O_{atm}$.

En comparant les différentes chronologies pour l'enregistrement de NGRIP, on constate une différence de plusieurs milliers d'années lors des évènements de Dansgaard-Oeschger 23, 24 et 25 entre la chronologie actuelle AICC2012 et la nouvelle chronologie selon la méthode d'alignement choisie (Table 3.2). A partir de cette méthode, une meilleure synchronisation des évènements de Dansgaard-Oeschger observés dans la carotte de NGRIP avec l'enregistrement des spéléothèmes alpins est obtenue comparativement à la chronologie AICC2012 (Table 3.3). La méthode d'alignement de la dérivée du $\delta^{18}O_{atm}$ avec celle du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques est ici privilégiée aux deux autres afin de rendre compte des changements plus lents liés aux variations orbitales.

A partir de ces trois méthodes, la différence maximale entre la chronologie AICC2012 et la nouvelle chronologie pour l'enregistrement de NGRIP est de 0,37 ka pour le DO23, 0,44 ka pour le DO24 et 0,45 ka pour le DO25. Considérant la limite supérieure, une incertitude moyenne de 0,5 ka est prise en compte dans le cadre de l'alignement des enregistrements. En combinant toutes les incertitudes présentées précédemment (méthode, signal de $\delta^{18}O_{calcite}$ et datation par

$^{230}$Th), l'incertitude moyenne est de 1,22 ka sur la dernière entrée en glaciation.

Puis, sur la période 100-640 ka, considérant les variations des incertitudes associées à la datation des spéléothèmes par $^{230}$Th, l'incertitude globale de la méthode varie entre 1,3 ka à 105 ka et 6,9 ka à 630 ka.

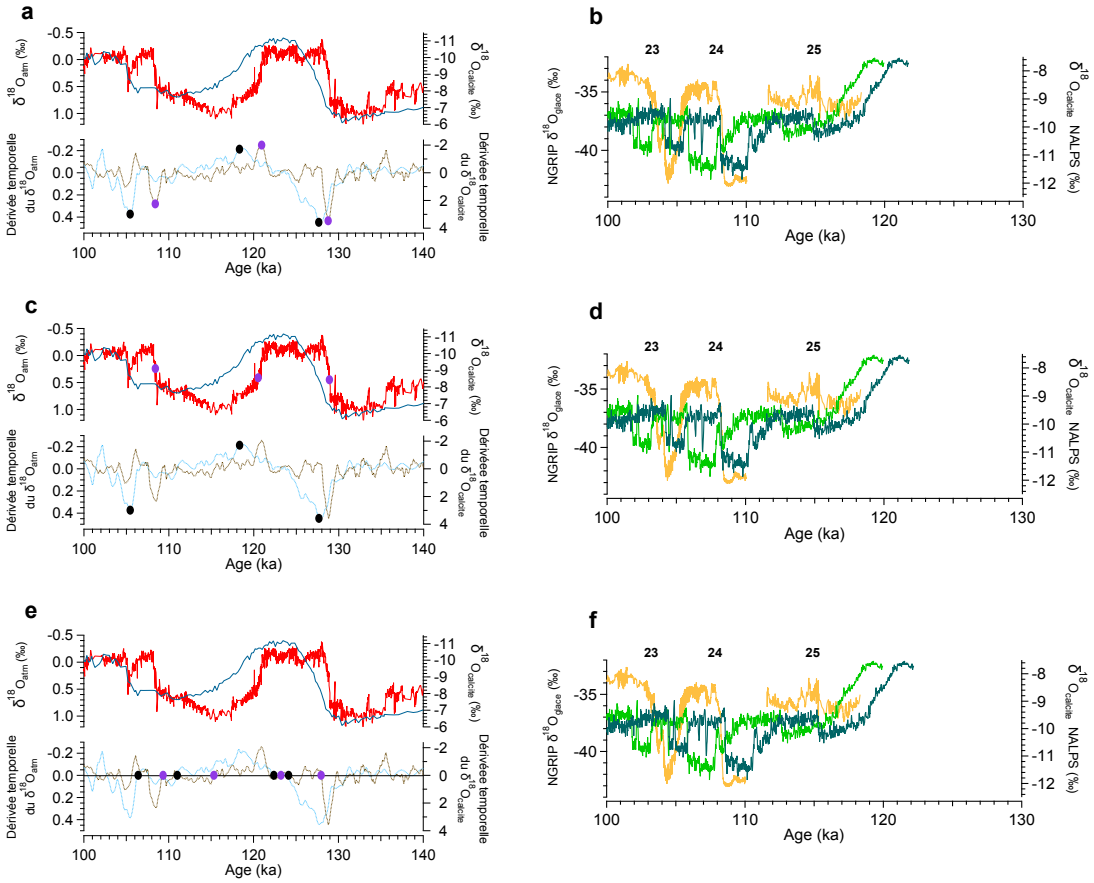



FIGURE 3.5 – Détail des marqueurs utilisés pour la construction de la chronologie selon la méthode choisie et comparaison avec l'enregistrement de NGRIP sur la chronologie originale AICC2012 et sur la nouvelle chronologie au cours de la dernière entrée en glaciation. Les figures a, c et e montrent l'évolution du $\delta^{18}O_{atm}$ en bleu [Dreyfus et al., 2007] ; [Landais et al., 2013] ; [Bazin et al., 2016] ; [Extier et al., 2018], du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques en rouge [Cheng et al., 2016] et de leurs dérivées temporelles respectives en bleu clair et en marron. Les points noirs et violets correspondent aux marqueurs utilisés pour aligner les deux enregistrements. Les figures b, d et f représentent l'évolution de l'enregistrement de NGRIP sur la chronologie AICC2012 en vert [NorthGRIP Community Members, 2004] et sur la nouvelle chronologie basée sur l'alignement du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques en bleu foncé, parallèlement aux variations du $\delta^{18}O_{calcite}$ de l'enregistrement de NALPS en orange [Boch et al., 2011]. Les évènements de Dansgaard-Oeschger sont également notés. Les cas a) et b) correspondent à l'alignement des valeurs extrêmes des dérivées, les cas c) et d) à l'alignement de la dérivée du $\delta^{18}O_{atm}$ et des changements abrupts de $\delta^{18}O_{calcite}$ et enfin les cas e) et f) à l'alignement lors des changements de signe des dérivées.

| | Décalage entre la nouvelle chronologie de NGRIP et AICC2012 | | |
|---|---|---|---|
| Méthode d'alignement | DO23 | DO24 | DO25 |
| Valeurs extrêmes des dérivées | 2,30 ka | 2,30 ka | 2,20 ka |
| Valeurs extrêmes de la dérivée du $\delta^{18}O_{atm}$ et changements abrupts du $\delta^{18}O_{calcite}$ | 2,42 ka | 2,40 ka | 2,30 ka |
| Changements de signe des dérivées | 2,67 ka | 2,74 ka | 2,65 ka |

TABLE 3.2 – Valeurs des décalages obtenus entre la chronologie AICC2012 et les nouvelles chronologies selon la méthode d'alignement choisie pour l'enregistrement de NGRIP lors des évènements de Dansgaard-Oeschger 23, 24 et 25.

| | Décalage des DO entre NGRIP et NALPS | | |
|---|---|---|---|
| Méthode d'alignement | DO23 | DO24 | DO25 |
| Valeurs extrêmes des dérivées | 0,53 ka | 0,14 ka | 0,52 ka |
| Valeurs extrêmes de la dérivée du $\delta^{18}O_{atm}$ et changements abrupts du $\delta^{18}O_{calcite}$ | 0,64 ka | 0,05 ka | 0,39 ka |
| Changements de signe des dérivées | 0,95 ka | 0,31 ka | 0,07 ka |
| | | | |
| Sur AICC2012 | 1,75 ka | 2,45 ka | 2,70 ka |

TABLE 3.3 – Valeurs des décalages obtenus lors des évènements de Dansgaard-Oeschger 23, 24 et 25 entre l'enregistrement de NGRIP sur les nouvelles chronologies (selon la méthode d'alignement choisie) et sur AICC2012, par rapport à l'enregistrement de NALPS.

## 3.5 Article 1 : On the use of $\delta^{18}O_{atm}$ for ice core dating

Quaternary Science Reviews 185 (2018) 244–257

Contents lists available at ScienceDirect

Quaternary Science Reviews

journal homepage: www.elsevier.com/locate/quascirev

# On the use of $\delta^{18}O_{atm}$ for ice core dating

Thomas Extier [a, *], Amaelle Landais [a], Camille Bréant [a], Frédéric Prié [a], Lucie Bazin [a], Gabrielle Dreyfus [b], Didier M. Roche [a, c], Markus Leuenberger [d]

[a] Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, LSCE/IPSL, CEA-CNRS-UVSQ, Université Paris-Saclay, 91191, Gif-sur-Yvette, France
[b] Institute for Governance and Sustainable Development, Washington, DC, 20007, United States
[c] Earth and Climate Cluster, Faculty of Sciences, Vrije Universiteit Amsterdam, Amsterdam, The Netherlands
[d] Climate and Environmental Physics, Physics Institute and Oeschger Center for Climate Research, University of Bern, Sidlerstrasse, 5, 3012, Bern, Switzerland

ARTICLE INFO

*Article history:*
Received 9 November 2017
Received in revised form
9 February 2018
Accepted 9 February 2018

*Keywords:*
Oxygen isotopes
$\delta^{18}O_{atm}$
Glacial terminations
Water cycle
Ice core
Chronology

ABSTRACT

Deep ice core chronologies have been improved over the past years through the addition of new age constraints. However, dating methods are still associated with large uncertainties for ice cores from the East Antarctic plateau where layer counting is not possible. Indeed, an uncertainty up to 6 ka is associated with AICC2012 chronology of EPICA Dome C (EDC) ice core, which mostly arises from uncertainty on the delay between changes recorded in $\delta^{18}O_{atm}$ and in June 21$^{st}$ insolation variations at 65°N used for ice core orbital dating. Consequently, we need to enhance the knowledge of this delay to improve ice core chronologies.

We present new high-resolution EDC $\delta^{18}O_{atm}$ record (153–374 ka) and $\delta O_2/N_2$ measurements (163–332 ka) performed on well-stored ice to provide continuous records of $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta O_2/N_2$ between 100 and 800 ka. The comparison of $\delta^{18}O_{atm}$ with the $\delta^{18}O_{calcite}$ from East Asian speleothems shows that both signals present similar orbital and millennial variabilities, which may represent shifts in the InterTropical Convergence Zone position, themselves associated with Heinrich events. We thus propose to use the $\delta^{18}O_{calcite}$ as target for $\delta^{18}O_{atm}$ orbital dating. Such a tuning method improves the ice core chronology of the last glacial inception compared to AICC2012 by reconciling NGRIP and mid-latitude climatic records. It is especially marked during Dansgaard-Oeschger 25 where the proposed chronology is 2.2 ka older than AICC2012. This $\delta^{18}O_{atm} - \delta^{18}O_{calcite}$ alignment method applied between 100 and 640 ka improves the EDC ice core chronology, especially over MIS 11, and leads to lower ice age uncertainties compared to AICC2012.

© 2018 Elsevier Ltd. All rights reserved.

## 1. Introduction

The EPICA Dome C (EDC) ice core provides a continuous 800 ka (thousands of years before 1950) record of past atmospheric greenhouse gases concentrations (Spahni et al., 2005; Loulergue et al., 2008; Lüthi et al., 2008) and Antarctic surface temperature (Jouzel et al., 2007), contributing to paleoclimatic and paleoenvironmental information. However the uncertainties arising from ice core dating methodologies limit the interpretation of records in terms of past climate dynamics, especially on long time scales. Establishing a causal relationship between orbital forcing (precession or obliquity) and polar temperature over deglaciations, or making the link between polar ice cores and low latitudes climate archives is particularly critical in this context. The EDC3 chronology (Parrenin et al., 2007) has been developed using ice flow modeling, peaks in $^{10}$Be record and orbital dating constraints based on air content and $\delta^{18}O_{atm}$ ($\delta^{18}O$ of atmospheric $O_2$), especially in the deeper part of the ice core (300–800 ka, Dreyfus et al., 2007). The more recent AICC2012 chronology (Bazin et al., 2013; Veres et al., 2013) was built using revised and additional age constraints compared to EDC3, especially through the addition of numerous gas and ice stratigraphic links, combined with the inverse dating method DATICE (Lemieux-Dudon et al., 2010) to provide a coherent chronology for four Antarctic ice cores (EDC, Vostok, EPICA Dronning Maud Land - EDML, TALos Dome ICE core - TALDICE) and one Greenland ice core (NorthGRIP - NGRIP). An uncertainty of up to 6 ka is associated with the AICC2012 EDC chronology for the oldest part (Bazin et al., 2013).

* Corresponding author.
*E-mail address:* thomas.extier@lsce.ipsl.fr (T. Extier).

https://doi.org/10.1016/j.quascirev.2018.02.008
0277-3791/© 2018 Elsevier Ltd. All rights reserved.

Despite the numerous dating constraints implemented in the EDC3 and AICC2012 chronologies, there are evidences that these chronologies should be revised. First, the comparison of Dome F (DFO2006) and AICC2012 age scales over the Marine Isotope Stage (MIS) 5 features an age difference with maximum values of 4.5 and 3.1 ka over MIS 5d and MIS 5b respectively (Fujita et al., 2015). Second, the comparison of the NGRIP $\delta^{18}O_{ice}$ record on the AICC2012 chronology with lower latitudes records such as the Northern rim of the Alps speleothems - NALPS (Boch et al., 2011) highlights inconsistencies of several millennia between chronologies over the last glacial inception (Veres et al., 2013).

Total air content has largely been used for the establishment of EDC chronologies (Parrenin et al., 2007) based on its link with the integrated local summer insolation (Raynaud et al., 2007). Another ice core parameter, the $\delta O_2/N_2$, was proposed as an orbital tuning tool (Bender, 2002). Indeed, the $\delta O_2/N_2$ outlines variations at orbital scale that are in phase with the local summer insolation (Bender, 2002; Kawamura et al., 2007; Suwa and Bender, 2008; Landais et al., 2012; Bazin et al., 2016). The relationship between $\delta O_2/N_2$ and the local summer insolation is likely established through the near-surface snow metamorphism (Hutterli et al., 2010) that influences snow density down to the pore close-off depth during firnification (Fujita et al., 2009). Then, at close-off, trapping process favors the loss of $O_2$ compared to $N_2$ molecules (Battle et al., 1996; Huber et al., 2006; Severinghaus and Battle, 2006). This link can be used to build ice core chronologies when associated with an appropriate error bar.

The $\delta^{18}O_{atm}$ measured in ice cores is a complex signal that can still be related to the low latitude water cycle (Landais et al., 2010; Seltzer et al., 2017). This marker combines variations in biospheric and low latitude water cycle processes, thus integrating changes in global sea level, water cycle and biosphere productivity through photosynthesis and respiration fluxes (Bender et al., 1994). Although the drivers of $\delta^{18}O_{atm}$ variations over the last 800 ka remain poorly known, several studies have highlighted the resemblance between those variations and the precession signal or mid-June 65°N insolation (Jouzel et al., 1996; Petit et al., 1999; Dreyfus et al., 2007; Landais et al., 2010). A 5–6 ka lag is classically applied between precession and $\delta^{18}O_{atm}$ minima, as primarily observed over Termination I (Bender et al., 1994; Jouzel et al., 1996, 2002; Petit et al., 1999; Dreyfus et al., 2007). The existence of this lag and the difficulty to explain it due to the complexity of the $\delta^{18}O_{atm}$ signal are the main reasons why EDC ice core chronologies are associated with a 6 ka uncertainty. A reduction of this error bar would allow the use of $\delta^{18}O_{atm}$ as a better dating tool.

Advances in the use of $\delta^{18}O_{atm}$ for chronology construction goes through a better understanding of processes affecting the $\delta^{18}O_{atm}$. It has been suggested that precessional variations in solar input can play a key role in influencing the low latitude water cycle and hence $\delta^{18}O_{atm}$ through changes of the ITCZ (InterTropical Convergence Zone) position (Bender et al., 1994; Landais et al., 2010). The role of precession or northern summer insolation on ITCZ shifts is expected from interhemispheric atmospheric energy balance (Cheng et al., 2016). It is visible in East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ record with the additional imprint of millennial scale variability. The resemblance between $\delta^{18}O_{atm}$ and East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ has already been highlighted (Wang et al., 2008; Severinghaus et al., 2009; Landais et al., 2010). A recent speleothem composite $\delta^{18}O_{calcite}$ record from Chinese caves supports the idea that the last seven glacial terminations recorded in $\delta^{18}O_{calcite}$ were driven by Northern Hemisphere summer insolation changes (Cheng et al., 2016). Since speleothem records are precisely dated, this composite record is a good candidate to progress in our use of $\delta^{18}O_{atm}$ as a dating constraint.

In this paper we first present new high-resolution $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta O_2/N_2$ reference records from EDC ice core over the last 400 ka and hence complement the study of Bazin et al. (2016) focused on the 300–800 ka period. We use these composite records to decipher the orbital and millennial components of the $\delta^{18}O_{atm}$ signal and explore mechanisms driving the $\delta^{18}O_{atm}$ variations in comparison with East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$. We thus propose a novel method using the $\delta^{18}O_{atm}$ data to improve the ice core dating and find support for it through an application over the last 640 ka.

## 2. Methods

### 2.1. Analytical method

All analyzed samples come from the EPICA Dome C deep ice core from Antarctica. 75 samples were stored at −50 °C and could be used for both $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta O_2/N_2$ measurements. Additional 333 samples, stored at −20 °C, completed the $\delta^{18}O_{atm}$ series. Except for the 56 samples measured at Princeton University by Dreyfus (2008) for $\delta^{18}O_{atm}$, following the analytical method given in Dreyfus et al. (2010), most of the $\delta^{18}O_{atm}$ and all $\delta O_2/N_2$ analyses have been performed at LSCE using a semi-automatic extraction line (Capron et al., 2010). Before measurement, 3–5 mm of ice are removed from each sample face in order to prevent contamination from exchanges with ambient air. Each day, three ice samples with duplicates are placed in cold flasks and the air in the flask is evacuated. The samples are then melted and left at room temperature for at least 1h30 in order to extract the air trapped in ice samples. The air samples are transferred through water vapor and $CO_2$ traps one by one and are cryogenically trapped into a manifold immersed in liquid helium (Capron et al., 2010; Bazin et al., 2016). Two exterior air samples are analyzed for each daily batch of measurements. These exterior air samples serve as standard for $\delta O_2/N_2$, $\delta^{18}O_{atm}$ and atmospheric $\delta^{15}N$ measurements, and are used to check the evolution of our internal laboratory standard and the proper functioning of our analytical set-up.

The measurements of the isotopic composition of air extracted from the ice are then performed using a dual inlet Delta V plus (Thermo Electron Corporation) mass spectrometer. A run is composed of 16 measurements for each sample and allows measurements of the composition of $\delta^{18}O$, $\delta^{15}N$, $\delta O_2/N_2$ and $CO_2$ (mass 44) simultaneously.

### 2.2. Corrections

The raw data are corrected for several processes such as pressure imbalance and mass interferences following procedures described in Landais et al. (2003a) and Severinghaus et al. (2003). They also need to be calibrated against the mean exterior air values in order to express the $\delta^{18}O_{atm}$, $\delta^{15}N$ and $\delta O_2/N_2$ with respect to the composition of atmospheric air, i.e. the standard of reference for these isotopic and elemental ratios. As we did not observe any evolution in the isotopic measurements of atmospheric air through the period of measurements, the correction with respect to atmospheric air was done using a constant value for each period of measurements. In addition to these standard corrections, we also account for firn fractionation and gas loss effects.

#### 2.2.1. Firn fractionation correction due to diffusive processes

The $\delta^{18}O$ of $O_2$ and $\delta O_2/N_2$ records must be corrected for processes in the firn diffusive column that directly affect the distribution of isotopes. The associated fractionations are driven either by the Earth's gravity field or by the temperature gradient within the firn column (Severinghaus et al., 1998). In our case, the thermal fractionation correction in East Antarctica is neglected because temperature changes are too slow to create large transient temperature gradients, which lead to the migration of the heavier

species toward the colder regions of the firn column (Goujon et al., 2003; Bréant et al., 2017).

The fractionation induced by the Earth's gravity field is proportional to the mass difference between the considered isotopes: 2 g/mol for $^{18}O/^{16}O$ ratio, 1 g/mol for the $^{15}N/^{14}N$ ratio and 4 g/mol for the $O_2/N_2$ ratio (Craig et al., 1988; Schwander, 1989; Severinghaus et al., 1998). Hence, the $\delta^{18}O$ will be affected twice as much as the $\delta^{15}N$ by the gravitational signal. To correct the $\delta^{18}O_{atm}$ from gravitational fractionation effects, we use the measurements of $\delta^{15}N$ of $N_2$ performed on the same samples using Eq. (1), assuming that $\delta^{15}N$ enrichment in air bubbles is only of gravitational origin. The $\delta O_2/N_2$ is also corrected using $\delta^{15}N$ of $N_2$ but with a factor 4 in Eq. (2).

$$\delta^{18}O_{atm\,corrected} = \delta^{18}O_{atm} - 2 \times \delta^{15}N \quad (1)$$

$$\delta O_2/N_{2corrected} = \delta O_2/N_2 - 4 \times \delta^{15}N \quad (2)$$

#### 2.2.2. Gas loss correction

Several authors have shown that gas loss fractionation affects the $\delta^{18}O$ of $O_2$ when ice is stored for a long time above -50 °C (Landais et al., 2003b; Dreyfus et al., 2007; Kawamura et al., 2007; Suwa and Bender, 2008; Severinghaus et al., 2009). This loss of $O_2$ affects the $\delta^{18}O_{atm}$ following a linear relationship (Landais et al., 2003b, Appendix A) and has to be taken into account:

$$\delta^{18}O_{atm\,corrected} = \delta^{18}O_{atm} + (\delta O_2/N_2 + 10) \times 0.01 \quad (3)$$

The resulting pooled standard deviation is 0.03‰ for the $\delta^{18}O_{atm}$ measurements and 0.37‰ for the $\delta O_2/N_2$ measurements after taking all corrections into account.

### 2.3. New records

We present here new $\delta^{18}O_{atm}$ measurements on 408 samples regrouping different data sets from LSCE and Princeton University (Table 1). We also present 75 new $\delta O_2/N_2$ measurements performed on EDC ice samples stored at -50 °C until their analysis (Table 1). The common AICC2012 chronology (Bazin et al., 2013; Veres et al., 2013) was used to convert the sample depths into corresponding gas and ice ages.

## 3. Results

### 3.1. $\delta^{18}O_{atm}$ over the last 800 ka

Our dataset complements previously available EDC $\delta^{18}O_{atm}$ series between 0 and 40 ka, 98–152 ka and 300–800 ka (Dreyfus et al., 2007, 2008; Landais et al., 2013; Bazin et al., 2016) with an overlap between 300 and 374 ka. To display a continuous $\delta^{18}O_{atm}$ record over the last 800 ka, the $\delta^{18}O_{atm}$ record presented on Fig. 1 between 40 and 98 ka has been obtained from the Vostok ice core (Petit et al., 1999). The common EDC $\delta^{18}O_{atm}$ section between 300 and 374 ka shows a good agreement between the previous and new data with comparable trends and amplitude variations. Thanks to this new record, the $\delta^{18}O_{atm}$ over the last four terminations is recorded at high temporal resolution (~300 years for Terminations I and II, ~160 years for Termination III and ~700 years for Termination IV, Fig. 1), the highest resolution corresponding to Termination III.

Fig. 1 displays the good correlation between the EDC $\delta^{18}O_{atm}$ signal and June 21$^{st}$ insolation variations at 65°N as already observed in previous studies (Petit et al., 1999; Dreyfus et al., 2007). The amplitudes of $\delta^{18}O_{atm}$ variations and June 21$^{st}$ insolation at 65°N are comparable, except for two distinct periods: 190–230 ka and around 430 ka. The high-resolution EDC record permits to look in details at the behavior of $\delta^{18}O_{atm}$ during terminations. Terminations I, II, IV and V display a large amplitude $\delta^{18}O_{atm}$ decrease in parallel with relatively large variations in June 21$^{st}$ insolation at 65°N and important increases in sea-level and δD of EDC ice core (Fig. 1). On the opposite, the $\delta^{18}O_{atm}$ record over Termination III is associated with a lower amplitude for the decrease and displays a superimposed millennial-scale variability (inset of Fig. 1) as previously identified for the last glacial period by Landais et al. (2007) and Severinghaus et al. (2009). The reason why Termination III exhibits a different signal compared to Terminations I, II, IV and V, may be linked to the fact that these four terminations are associated with strong Heinrich events identified by high IRD imprint (Ice Rafted Debris, characterized by large amount of detrital quartz in the sediments), while Termination III is associated with a series of Heinrich events of smaller IRD imprint as well as a smaller sea level change (Fig. 1).

The long EDC $\delta^{18}O_{atm}$ record can readily be compared to the Vostok and Dome F data over the last 400 ka (Petit et al., 1999; Kawamura et al., 2007, Fig. 2). While Vostok and Dome C are both drawn on the AICC2012 chronology, the Dome F chronology DFO2006 has been transferred to AICC2012 by Bazin et al. (2016) using the volcanic synchronization of EDC and Dome F over the last 216 ka (Fujita et al., 2015). The resolution of Vostok and Dome F records is lower than the EDC record (~1.27 ka and ~1.15 ka compared to ~0.55 ka resolution respectively for the last 400 ka). This difference in resolution is especially large during terminations. The orbital trend is similar for the three $\delta^{18}O_{atm}$ signals, with a clear resemblance with the 65°N mid-June insolation. The amplitudes of the $\delta^{18}O_{atm}$ signals are also identical except when the higher resolution of the EDC record allows a better description of $\delta^{18}O_{atm}$ peaks (e.g. between 240 and 280 ka, Fig. 2).

### 3.2. $\delta O_2/N_2$ record

$\delta O_2/N_2$ data measured on EDC ice stored at −50 °C have already been published between 338 and 800 ka and also between 100 and 161 ka (Landais et al., 2012; Bazin et al., 2016). We present here new measurements for the time period covering 163–332 ka (Fig. 3). These new data allow a continuous record from 100 to 800 ka on EDC well-conserved ice. The most recent 100 ka do not show clear insolation imprinted variability due to large $\delta O_2/N_2$ depletions at the air bubbles/clathrates transition (Bender, 2002).

On Fig. 3, we can see clear similarities between the local December 21$^{st}$ insolation (75°S for EDC) and $\delta O_2/N_2$ variations as evidenced in previous studies (Bender, 2002; Kawamura et al.,

**Table 1**
Summary of the new EDC $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta O_2/N_2$ data.

| Year | Measurements | Laboratory | Number of samples | Depth (m) | Age (ka) |
|---|---|---|---|---|---|
| 2014 to 2017 | $\delta^{18}O_{atm}$ | LSCE | 352 | 1872.23–2664.72 | 153.03–374.22 |
| 2008 | $\delta^{18}O_{atm}$ | Princeton University (Dreyfus, PhD thesis) | 56 | 2261.63–2351.88 | 235.01–256.35 |
| 2014 to 2016 | $\delta O_2/N_2$ | LSCE | 75 | 1904.07–2561.87 | 163.56–332.03 |

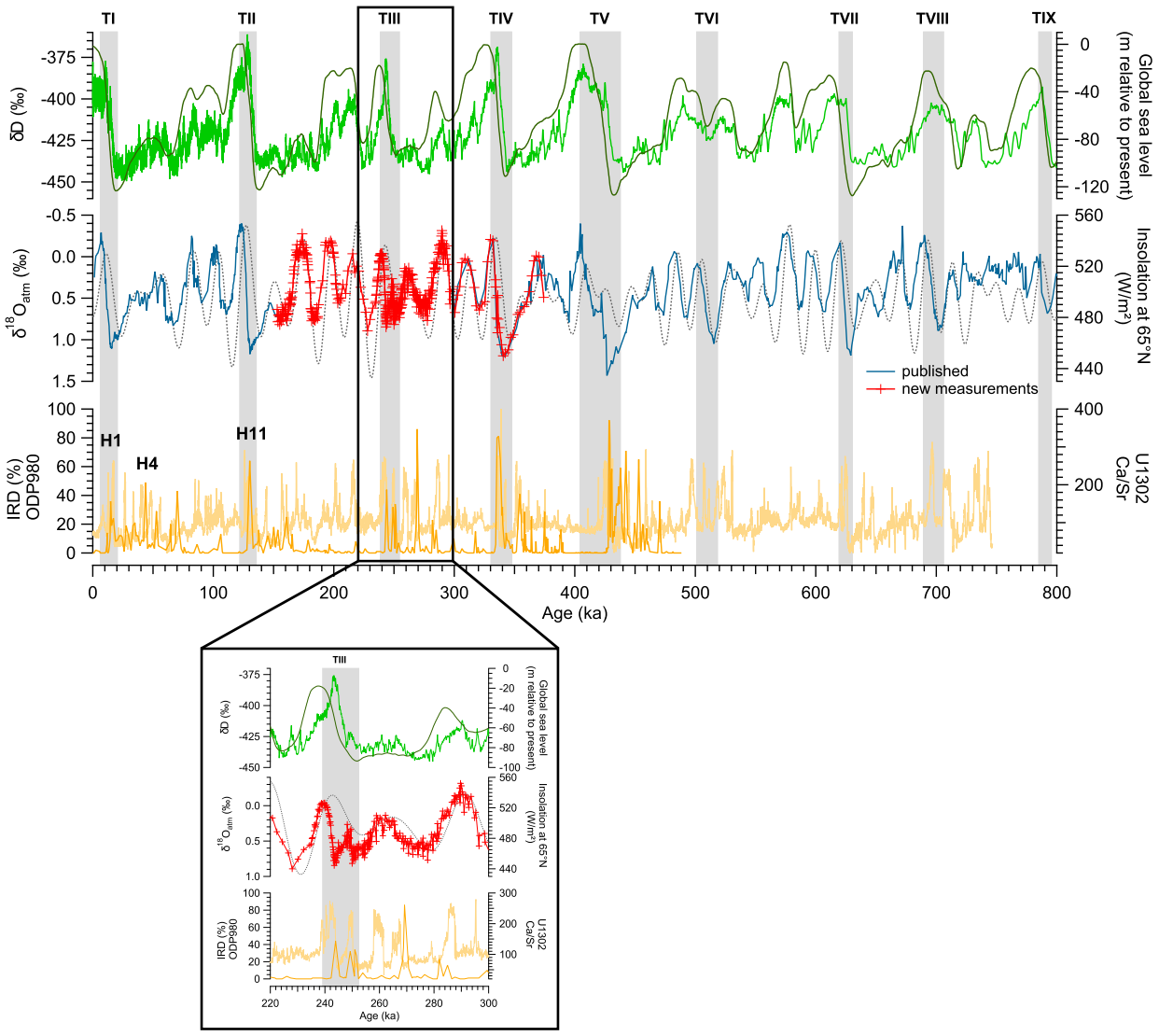



**Fig. 1.** Top: Record over the last 800 ka of ice δD from EDC (light green: Jouzel et al., 2007) and global sea level estimate (green: Bintanja et al., 2005). Middle: Composite EDC-Vostok $\delta^{18}O_{atm}$ variations (blue: Petit et al., 1999; Dreyfus et al., 2007, 2008; Landais et al., 2013; Bazin et al., 2016, red: this study) on the AICC2012 chronology (Bazin et al., 2013; Veres et al., 2013) and the June 21st insolation signal at 65°N (grey: Laskar et al., 2004). Bottom: The percentage of IRD at site ODP980 (orange: McManus et al., 1999) transferred on AICC2012 timescale (Vazquez Riveiros, Comm. Pers.) and the Ca/Sr ratio at site U1302, a proxy of Laurentide sourced IRD (light orange: Channell et al., 2012). The grey bars highlight the glacial terminations. The inset shows a focus on the high-resolution data over Termination III. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the Web version of this article.)

2007). Even if there is a clear correspondence between $\delta O_2/N_2$ and local summer insolation variations, the relative amplitudes of the two signals do not match, as already observed for the period 350–800 ka (Bazin et al., 2016).

Landais et al. (2012) and Bazin et al. (2016) identified a general decreasing $\delta O_2/N_2$ trend over the last 800 ka by 7.9‰ (1σ) per million years (Ma). Stolper et al. (2016) have interpreted the mean decrease of 8.4‰ per million years (±0.2‰ per million years, 1σ) for all $\delta O_2/N_2$ record (EDC, Vostok and Dome F) as a result of the changes in organic carbon fluxes over the last 800 ka. Still, many of the $\delta O_2/N_2$ data presented in the cited work were affected by gas loss, hence questioning the robustness of this long $\delta O_2/N_2$ trend. Our new measurements, free from gas loss correction, show that this long-term trend is significant and we obtain a new value of 7.0 ± 0.6‰ per million years (1σ) decrease of $\delta O_2/N_2$ for the whole EDC curve (Fig. 4).

The EDC $\delta O_2/N_2$ record can also be compared with Vostok (Suwa and Bender, 2008) and Dome F (Kawamura et al., 2007) measurements covering the last 400 ka (Fig. 4). Note that the EDC record is the only one that is not much affected by gas loss. Dome F and Vostok $\delta O_2/N_2$ data displayed on Fig. 4 were obtained on samples stored at −20 °C and corrected for gas loss. However, similar decreasing trends are observed for all three sites with a higher value for EDC than for Dome F and Vostok (Fig. 4). The variations at orbital scale are also observed on these three records between 100 and 150 ka, as previously noted by Bazin et al., (2016). Furthermore, the Vostok curve shows lower values and higher amplitude than the other two sites, most probably due to the gas loss influence.

## 4. Discussion

### 4.1. $\delta^{18}O_{atm}$ orbital variations

Orbital tuning is largely used for dating paleoclimate archives. Still, one of the main difficulties is to properly determine the orbital

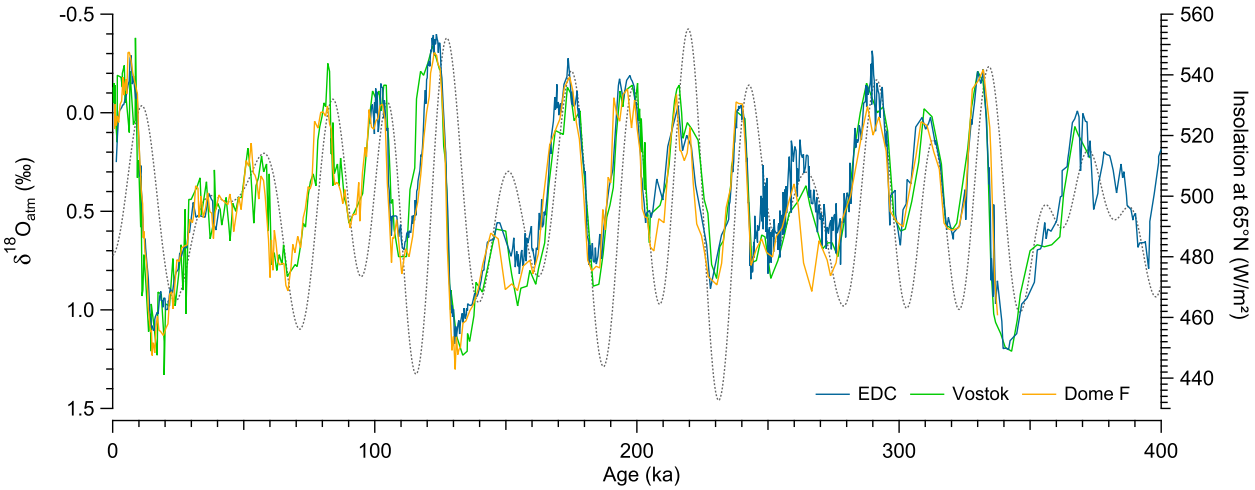



**Fig. 2.** Comparison of EDC $\delta^{18}O_{atm}$ data (blue: Dreyfus et al., 2007, 2008; Landais et al., 2013; Bazin et al., 2016; this study), Vostok record (green: Petit et al., 1999; Bazin et al., 2013) and Dome F record (orange: Kawamura et al., 2007). Dome C and Vostok are drawn on the AICC2012 chronology. Dome F is presented on AICC2012 between 0 and 216 ka using volcanic synchronization (Fujita et al., 2015). The June 21st insolation at 65°N is also represented (grey: Laskar et al., 2004). (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the Web version of this article.)

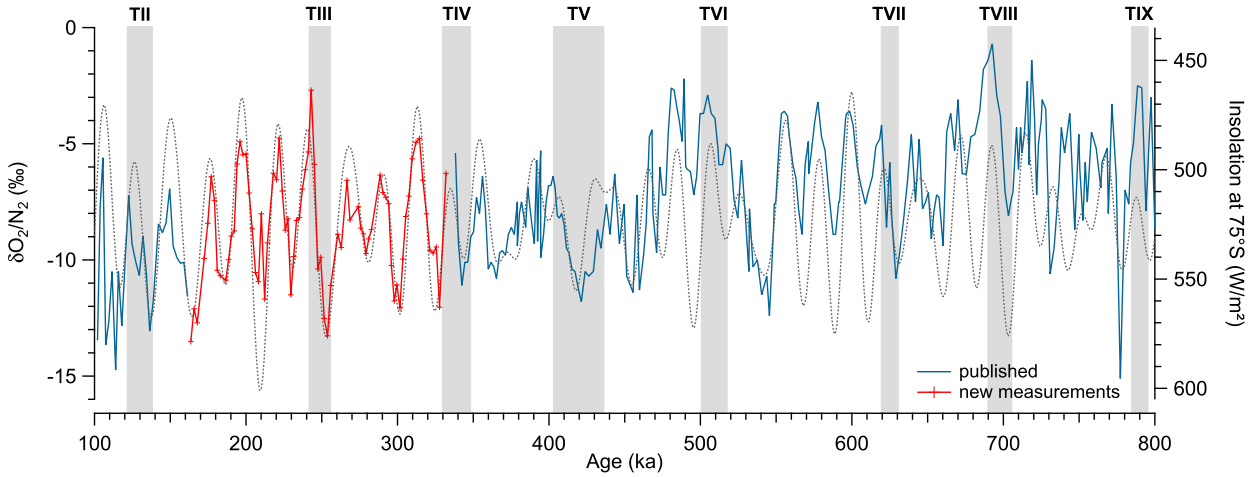



**Fig. 3.** EDC records of $\delta O_2/N_2$ (blue: Landais et al., 2012; Bazin et al., 2016, red: this study) on the AICC2012 chronology superimposed to the 75°S summer solstice (December 21st) insolation (grey: Laskar et al., 2004). The grey bars highlight the glacial terminations. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the Web version of this article.)

target. This is particularly important for $\delta^{18}O_{atm}$ because of the multiplicity of mechanisms involved in driving its variations. Some studies used the June 21st insolation at 65°N as target for $\delta^{18}O_{atm}$ (Jouzel et al., 1996; Shackleton, 2000; Dreyfus et al., 2007), or even the 20°N summer insolation (Bender et al., 1994; Malaizé et al., 1999). In parallel, $\delta^{18}O_{calcite}$ from East Asian speleothems, also largely linked to water cycle dynamic on a large regional scale (Caley et al., 2014) aligns well with the boreal summer insolation, July 21st at 65°N (or integrated summer insolation over June-July-August; Wang et al., 2001, 2008).

Some phase delays have been observed between orbital variations of proxy records and their chosen target. On average, there is a ~3 ka lead of precession (2 ka lead of July 21st insolation) over East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ variations through the last climatic cycles (Wang et al., 2008; Clemens et al., 2010). This is 2 ka larger than the mean delay obtained over the last climatic cycle between modeled $\delta^{18}O_{calcite}$ variations of East Asian speleothems and precession using an intermediate complexity fully coupled climate model forced only by orbital parameters, ice sheet size and greenhouse gases concentration (i.e. no freshwater forcing representing the influence of Heinrich events, Caley et al., 2014). The 2 ka additional lag between $\delta^{18}O_{calcite}$ variations of East Asian speleothems and summer insolation may thus be attributed to the influence of Heinrich events on low latitude water cycle through shifts of the ITCZ. Ice core $\delta^{18}O_{atm}$ variations also exhibit a lag with respect to its orbital target: a lag of 5–6 ka has been observed between the June 21st insolation and $\delta^{18}O_{atm}$ variations over the last two deglaciations (Dreyfus et al., 2007; Bazin et al., 2016). The influence of Heinrich events on this lag can also be questioned. Based on the similarity between $\delta^{18}O_{atm}$ and speleothems, already noted by Wang et al. (2008), Severinghaus et al. (2009) and Landais et al. (2010), we choose the July 21st insolation at 65°N as target for the $\delta^{18}O_{atm}$ in the following.

The simplest way to look at the delay between the $\delta^{18}O_{atm}$ and the July 21st insolation is to draw the temporal evolution of the shift between $\delta^{18}O_{atm}$ and its orbital target over time. This is however circular since the ice core chronology, before annual layer counting (60 ka), is partly deduced from $\delta^{18}O_{atm}$ tuning with the June 21st

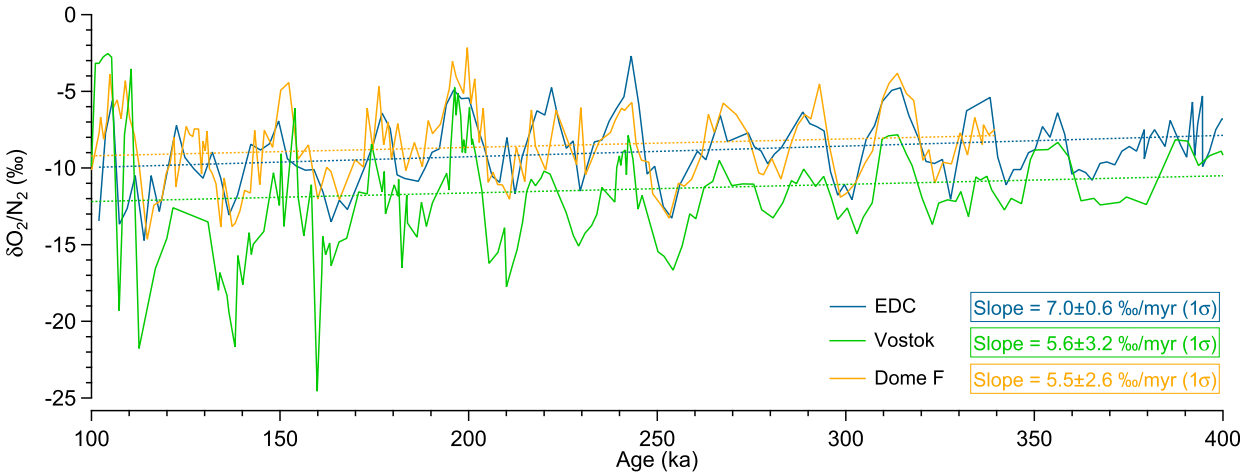



**Fig. 4.** Inter-comparison of $\delta O_2/N_2$ records from EDC (blue: Landais et al., 2012; Bazin et al., 2016; this study), Vostok (green: Suwa and Bender, 2008) and Dome F (orange: Kawamura et al., 2007) presented on the AICC2012 chronology. The Dome F data are transferred on the AICC2012 chronology using the volcanic matching of Fujita et al. (2015) over the period 0–216 ka. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the Web version of this article.)

insolation accounting for a 6 ka delay (Dreyfus et al., 2007; Parrenin et al., 2007; Bazin et al., 2013). To keep a critical eye on this assumption, we look in parallel at the delay between the $\delta O_2/N_2$ variations and its orbital target, the local summer solstice insolation, as already proposed by Bazin et al. (2016). The idea behind this comparison is the following: if a large delay is observed synchronously between $\delta O_2/N_2$ vs local summer solstice insolation and between $\delta^{18}O_{atm}$ vs June 21st insolation at 65°N, this delay is due to an issue with the chronology. If the delay is observed only for one of the two comparisons, it questions the phasing between the proxy variation and its orbital target.

The delay is estimated through the use of Match protocol (Lisiecki and Lisiecki, 2002). This method uses dynamic programming with penalty functions to constrain accumulation rates in order to find a realistic and optimal fit between two records. Before matching $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta O_2/N_2$ to their respective orbital targets (July 21st insolation at 65°N and December 21st insolation at 75°S), the data have been normalized by subtracting the mean from each series and then dividing by the series' standard deviation. Using the normalized data it is then possible to calculate the age differences between the original series and the tuned series to explore the delay between each proxy series and their orbital targets (Fig. 5).

The difference between (1) the delay $\delta^{18}O_{atm}$ vs July 21st insolation at 65°N and (2) the delay $\delta O_2/N_2$ vs December 21st insolation at 75°S provides a mean of discerning between lags resulting from chronological tuning and climate mechanisms (Fig. 5). Still, because of scatter in the $\delta O_2/N_2$ data, this curve may be associated with some uncertainties such as between 100 and 110 ka. Furthermore, the low correlation between $\delta O_2/N_2$ and its orbital target before 650 ka limits the interpretation of the delay over this period. Making the assumption that $\delta O_2/N_2$ is tied to its orbital target without delay (Kawamura et al., 2007), we propose that the most prominent peaks in the black curve reflect the largest delays between the July 21st insolation at 65°N and the $\delta^{18}O_{atm}$ variations. We highlight periods where insolation is in advance by more than 5 ka compared to the $\delta^{18}O_{atm}$ signal at 135, 250, 340, 405 and 430 ka (Fig. 5). In addition, periods where $\delta^{18}O_{atm}$ is in advance with respect to insolation are highlighted at 376 and 445 ka. Most of the identified peaks (at 135, 250, 340 and 430 ka) correspond to the occurrence of large or repeated Heinrich events (Fig. 5) including those associated with Terminations II, III, IV and V (no $\delta O_2/N_2$ are available for Termination I because of poor ice core quality). The two remaining peaks (at 376 and 445 ka) are associated with poor resemblance between the $\delta O_2/N_2$ or $\delta^{18}O_{atm}$ and their orbital targets and should thus be considered with caution. For the remaining periods, the delay between $\delta^{18}O_{atm}$ and the July 21st insolation at 65°N corrected from the delay between $\delta O_2/N_2$ and its insolation target is always lower than 5 ka, hence suggesting that the systematic shift of 5 ka (or 6 ka) between $\delta^{18}O_{atm}$ and July 21st insolation at 65°N (or the June 21st insolation at 65°N) is not optimal for ice core chronology construction.

### 4.2. Drivers of the millennial variations

Heinrich events and the millennial climate variability of the last glacial period have already been shown to leave an imprint on the $\delta^{18}O_{atm}$ signal through the influence of the low latitude hydrological cycle (Landais et al., 2007, 2010; Severinghaus et al., 2009; Reutenauer et al., 2015; Seltzer et al., 2017). Indeed, southward ITCZ shifts during Heinrich events are associated with changes in the biosphere productivity and in the isotopic composition, leading to increases in $\delta^{18}O_{atm}$ (Reutenauer et al., 2015).

Due to the long residence time of oxygen in the atmosphere (1–2 ka), the signature of millennial events on the $\delta^{18}O_{atm}$ record is smoothed. Severinghaus et al. (2009) proposed to look at the drivers of $\delta^{18}O_{atm}$ changes, themselves being expected to bear a millennial-scale signature. They thus introduce the empirical parameter, $\Delta\varepsilon_{LAND}$ as defined in Eq. (4), representing the changes in water cycle $\delta^{18}O$ and fractionation during oxygen uptake driving the relative changes of $\delta^{18}O_{atm}$ with respect to global $\delta^{18}O_{sea\ water}$ (hence Dole effect).

$$\Delta\varepsilon_{LAND} = \left[\tau \times \frac{d\delta^{18}O_{atm}}{dt} + \delta^{18}O_{atm} - \delta^{18}O_{sea\ water}\right] \times \frac{1}{f_L} \quad (4)$$

$\tau$ is the residence time of oxygen in the atmosphere (1 ka), $d\delta^{18}O_{atm}/dt$ is the temporal derivative of $\delta^{18}O_{atm}$, $\delta^{18}O_{sea\ water}$ is the global isotopic composition of sea water, whose evolution over the last climatic cycles can be obtained from Lisiecki and Raymo (2005), and $f_L$ is the fraction of oxygen photosynthesis occurring on land (considered constant through time and equal to 0.65 based on the discussion in Blunier et al., 2002). $\Delta\varepsilon_{LAND}$ has been calculated based on new high resolution $\delta^{18}O_{atm}$ record (Appendix B) and is displayed on Fig. 6. As observed for the Siple and WAIS ice cores (Seltzer et al., 2017), the $\Delta\varepsilon_{LAND}$ deduced from the $\delta^{18}O_{atm}$ data from Dome C (and Vostok between 41 and 98 ka) displays strong

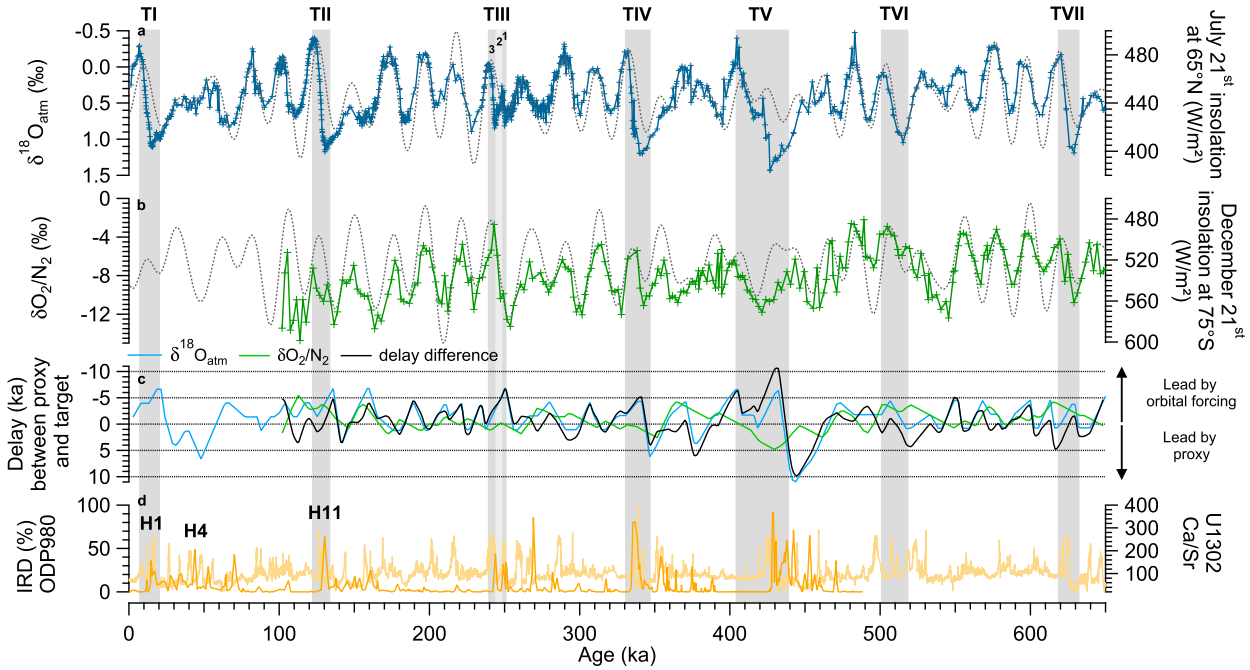



**Fig. 5.** Evolution of the time delay over the last 650 ka. a: $\delta^{18}O_{atm}$ record (blue: Petit et al., 1999; Dreyfus et al., 2007, 2008; Landais et al., 2013; Bazin et al., 2016; this study) and its orbital forcing (grey: July 21st insolation at 65°N, Laskar et al., 2004). b: $\delta O_2/N_2$ record (green: Landais et al., 2012; Bazin et al., 2016; this study) associated with its orbital forcing (grey: December 21st insolation at 75°S, Laskar et al., 2004). The delay between the original data ($\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta O_2/N_2$) and the results after optimal alignment with their respective orbital targets using Match Protocol are shown next. c: The light blue curve represents the age difference between the original $\delta^{18}O_{atm}$ record and the tuned $\delta^{18}O_{atm}$ signal on the July 21st insolation at 65°N and the light green curve represents the age difference between the original $\delta O_2/N_2$ record and the tuned $\delta O_2/N_2$ signal on the December 21st insolation at 75°S. The black curve is the difference between the light blue curve and the light green curve, hence the delay of $\delta^{18}O_{atm}$ vs its insolation target assuming that $\delta O_2/N_2$ should always be in phase with local summer solstice insolation (Bender, 2002; Kawamura et al., 2007). The EDC data are presented on the AICC2012 chronology. d: The percentage of IRD at site ODP980 (orange: McManus et al., 1999) transferred on AICC2012 timescale (Vazquez Riveiros, Comm. Pers.) as well as the Ca/Sr ratio at site U1302, a proxy of Laurentide sourced IRD are also displayed (light orange: Channell et al., 2012). (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the Web version of this article.)

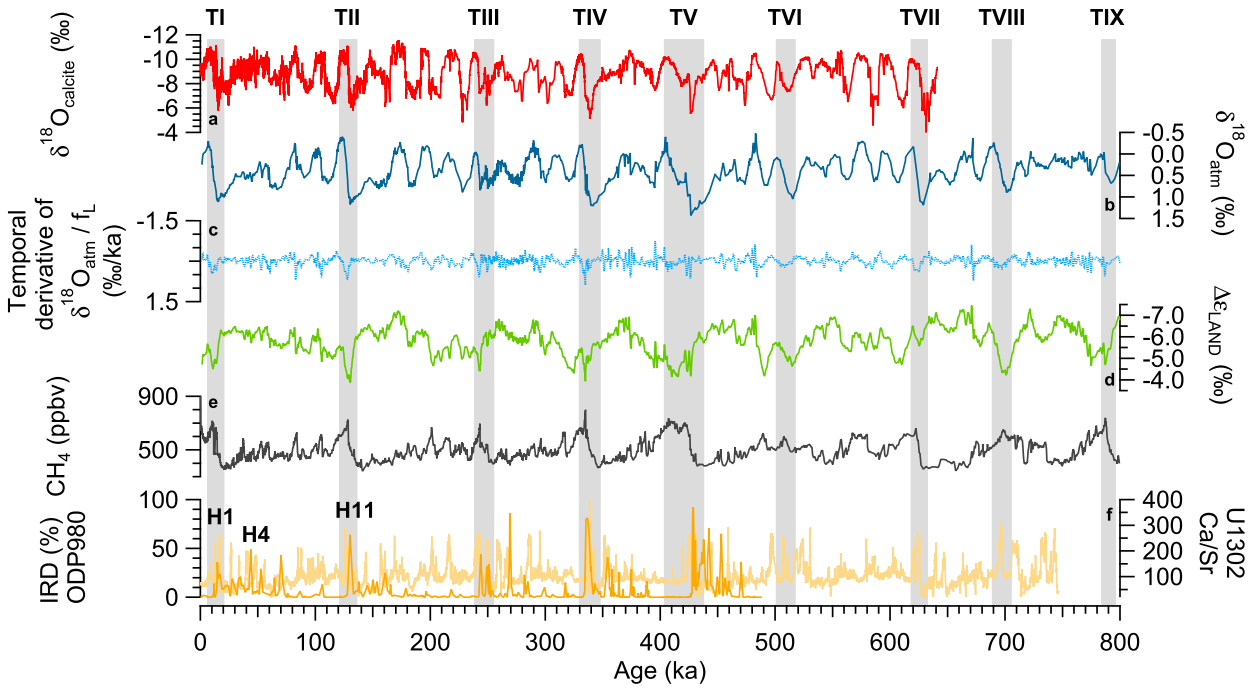



**Fig. 6.** a: $\delta^{18}O_{calcite}$ composite record from Chinese caves (Cheng et al., 2016). b: $\delta^{18}O_{atm}$ record (Petit et al., 1999; Dreyfus et al., 2007, 2008; Landais et al., 2013; Bazin et al., 2016; this study). c: The temporal derivative of the $\delta^{18}O_{atm}$ divided by the fraction of oxygen photosynthesis occurring on land $f_L$. d: The inferred change in terrestrial $^{18}O/^{16}O$ fractionation $\Delta\varepsilon_{LAND}$ (based on Severinghaus et al., 2009). e: $CH_4$ concentration measured on EDC ice core (Loulergue et al., 2008). f: The percentage of IRD at site ODP980 (orange: McManus et al., 1999) transferred on AICC2012 timescale (Vazquez Riveiros, Comm. Pers.) and the Ca/Sr ratio at site U1302 used for Heinrich events identification (light orange: Channell et al., 2012). The $\delta^{18}O_{atm}$, $\Delta\varepsilon_{LAND}$, $CH_4$ and the percentage of IRD are presented on the AICC2012 chronology. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the Web version of this article.)

increases corresponding to Heinrich event 1. Deeper in time, $\Delta\varepsilon_{LAND}$ also strongly increases during Terminations II, III, IV, V, VI, VIII and IX (Fig. 6). Such increases are partly driven by the Dole effect term $\delta^{18}O_{atm}$ - $\delta^{18}O_{sea\ water}$ in Eq. (4) through delays of several millennia between the decreases in $\delta^{18}O_{sea\ water}$ and $\delta^{18}O_{atm}$ during terminations.

In addition to the $\delta^{18}O_{sea\ water}$ component, $\Delta\varepsilon_{LAND}$ as driver of $\delta^{18}O_{atm}$ on land is expected to be linked to the low latitude water cycle on land, and, hence to be associated with southward shift of the ITCZ, expressed as Weak Monsoon Intervals (WMI) in East Asia. This influence is also responsible for part of the positive $\Delta\varepsilon_{LAND}$ excursions during terminations associated with Heinrich events through the temporal derivative term $d\delta^{18}O_{atm}/dt$. A link between $\Delta\varepsilon_{LAND}$, East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ and $CH_4$ is expected over the last 800 ka through common influences of southward shift of the ITCZ, as already observed over the last glacial period (Severinghaus et al., 2009; Seltzer et al., 2017). The comparison between $\Delta\varepsilon_{LAND}$ and $\delta^{18}O_{calcite}$ records is however not obvious when looking at long time periods (i.e. several glacial-interglacial cycles, Fig. 6). Overall, the global correspondence is much better when comparing $\delta^{18}O_{atm}$ to $\delta^{18}O_{calcite}$ with maximum correlation over the last 224 ka ($R^2 = 0.81$, Landais et al., 2010) and a maximum $R^2$ of 0.70 over the last 640 ka (this study). Moreover, the temporal derivative term does not match well with $\delta^{18}O_{calcite}$ over the full 640 ka record (Fig. 6) while there is a clear resemblance over the last glacial period (Severinghaus et al., 2009). Similarly, the resemblance between $CH_4$ and $\Delta\varepsilon_{LAND}$ is not straightforward despite the fact that $CH_4$ is mainly driven by low latitude terrestrial emissions at least during glacial period (Loulergue, 2007). Over the last 350 ka, (i.e. period with higher resolution in the $\delta^{18}O_{atm}$ signal, enabling millennial variations to be resolved), the correlation is rather poor between $CH_4$ and $\delta^{18}O_{atm}$ ($R^2 = 0.20$) and between $CH_4$ and $\Delta\varepsilon_{LAND}$ ($R^2 = 0.35$). This is probably because $CH_4$ is not only sensitive to shifts of the ITCZ position, but also largely driven by high latitudes emissions especially during warm periods. As a conclusion, while $\Delta\varepsilon_{LAND}$ is appropriate to detect the drivers of $\delta^{18}O_{atm}$ changes during Heinrich events, it is not of much help on orbital timescale because of the strong influence of $\delta^{18}O_{sea\ water}$ whose relative chronology with respect to ice core chronologies is also uncertain.

### 4.3. Suggestions for the use of $\delta^{18}O_{atm}$ in ice core dating and application on the last glacial inception

Over the last 350 ka, where we have the highest resolution, there is clear evidence of millennial $\delta^{18}O_{atm}$ changes superimposed on $\delta^{18}O_{atm}$ variations resembling 65°N insolation. This is particularly visible over Termination III where the negative $\delta^{18}O_{atm}$ excursion, probably driven by insolation at 250 ka (Fig. 5 TIII-1), is interrupted by a positive excursion at 245 ka (Fig. 5 TIII-2) just before the strong characteristic decrease in $\delta^{18}O_{atm}$ of Termination III (Fig. 5 TIII-3). This feature can be generalized to each termination where Heinrich events are responsible for a significant increase in $\delta^{18}O_{atm}$, at the origin of a larger delay between summer insolation forcing and $\delta^{18}O_{atm}$ variations. The conclusion suggested by Fig. 5 is thus that the 5 ka delay between summer insolation forcing and $\delta^{18}O_{atm}$ variations used for ice core dating is mainly due to the occurrence of Heinrich events and hence especially valid for terminations. Consequently we propose that this 5 ka shift should not be systematically imposed for dating purposes using $\delta^{18}O_{atm}$ and July 21$^{st}$ insolation at 65°N and search for alternative tuning solutions.

Similarly to $\delta^{18}O_{atm}$, the East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ records are also influenced by millennial and orbital dynamics, high summer integrated insolation leading to lower $\delta^{18}O_{calcite}$ and southward shifts of the ITCZ concomitant with Heinrich events, leading to increases of $\delta^{18}O_{calcite}$. The common variations of $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta^{18}O_{calcite}$ are not unexpected. Using a modeling experiment, Reutenauer et al. (2015) clearly showed that the southward shift of the ITCZ, due to a North Atlantic freshwater flux designed to mimic a Heinrich event, leads to an increase of both $\delta^{18}O_{calcite}$ and $\delta^{18}O_{atm}$. It is thus tempting to use $\delta^{18}O_{calcite}$, integrating both millennial and orbital variations, as a target for the $\delta^{18}O_{atm}$ signal. Based on the above discussion, we argue that the choice of this target may be more correct than the July 21$^{st}$ insolation with a constant delay of 5 ka (or the June 21$^{st}$ insolation with a constant delay of 6 ka). Previous studies choose to align $CH_4$ with East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ speleothem (Shackleton et al., 2004; Buizert et al., 2015). While we recognize that this method may be appropriate for millennial events of the last glacial period, we argue for caution during deglaciations. Indeed, during the weak monsoon interval occurring within the first phase of a deglaciation marked by a Heinrich event, $CH_4$ shows a strong increase, probably induced by high latitude emissions. This $CH_4$ pattern during deglaciations disagrees with the $\delta^{18}O_{calcite}$ variations. Similarly, the orbital variations of the East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ are not seen in the $CH_4$ record probably due to high latitude emissions of $CH_4$ in the Northern hemisphere (e.g. Yu et al., 2013).

In Fig. 7, we display the phase delay (calculated with Match protocol) between the EDC $\delta^{18}O_{atm}$ record and the $\delta^{18}O_{calcite}$ stack for East Asian speleothems. In contrast to the difference between the orbitally tuned $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta O_2/N_2$ (Fig. 5) and despite chronological uncertainties, the delay between ice core $\delta^{18}O_{atm}$ and East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ does not exhibit systematic large values associated with terminations. Over the most recent period presenting a high-resolution $\delta^{18}O_{atm}$ record (last 350 ka), strong variations of the delay between ice core $\delta^{18}O_{atm}$ and East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ occur over MIS 5. We note that MIS 3, between 50 and 40 ka, is also associated with a high delay (~5 ka, Fig. 7). However, we refrain from discussing further this period because of the low correlation between the $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta^{18}O_{calcite}$ records (maximum $R^2 = 0.3$ against 0.7 for the whole 640 ka period), due to the multitude of rapid events recorded within the $\delta^{18}O_{calcite}$ record that cannot be captured accurately by $\delta^{18}O_{atm}$ due to the long residence time of oxygen.

In the following, we propose that aligning ice core $\delta^{18}O_{atm}$ and East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ can be a solution for improving ice core chronologies on long timescales and should replace the classical orbital alignment method. As a test for this new tuning method for $\delta^{18}O_{atm}$, we propose an application on the ice core MIS 5 chronology.

For this test, it should be stated that aligning $\delta^{18}O_{atm}$ and East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ is not always obvious because of the long residence time of oxygen in the atmosphere and the fact that $\delta^{18}O_{calcite}$ is sometimes showing abrupt variations, even during deglaciations or glacial inceptions. In a first attempt, we propose to align the $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta^{18}O_{calcite}$ records using mid-slopes of their variations. In other words, we align the extrema in the temporal derivatives of $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta^{18}O_{calcite}$ (Fig. 8). This exercise was done for the period 100–140 ka in order to propose an alternative timescale for the EDC and NGRIP ice cores, NGRIP and EDC chronologies being linked through stratigraphic dating constraints gathered in the AICC2012 chronology (Bazin et al., 2013; Veres et al., 2013). Other alignment methods between these records are presented in the section 4.4 dedicated to uncertainties.

Fig. 8 compares EDC $\delta^{18}O_{atm}$ with the East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ stack (as low latitude water cycle proxy) on one hand and NGRIP $\delta^{18}O_{ice}$ with $\delta^{18}O_{calcite}$ from NALPS (reflecting high latitudes northern hemisphere climate, Boch et al., 2011) on the other hand. As already noted in the introduction and in Veres et al. (2013), there is a clear mismatch between NGRIP $\delta^{18}O_{ice}$ and NALPS $\delta^{18}O_{calcite}$ over the last glacial inception when drawing NGRIP $\delta^{18}O_{ice}$ on the AICC2012 timescale. A similar mismatch is observed between EDC $\delta^{18}O_{atm}$

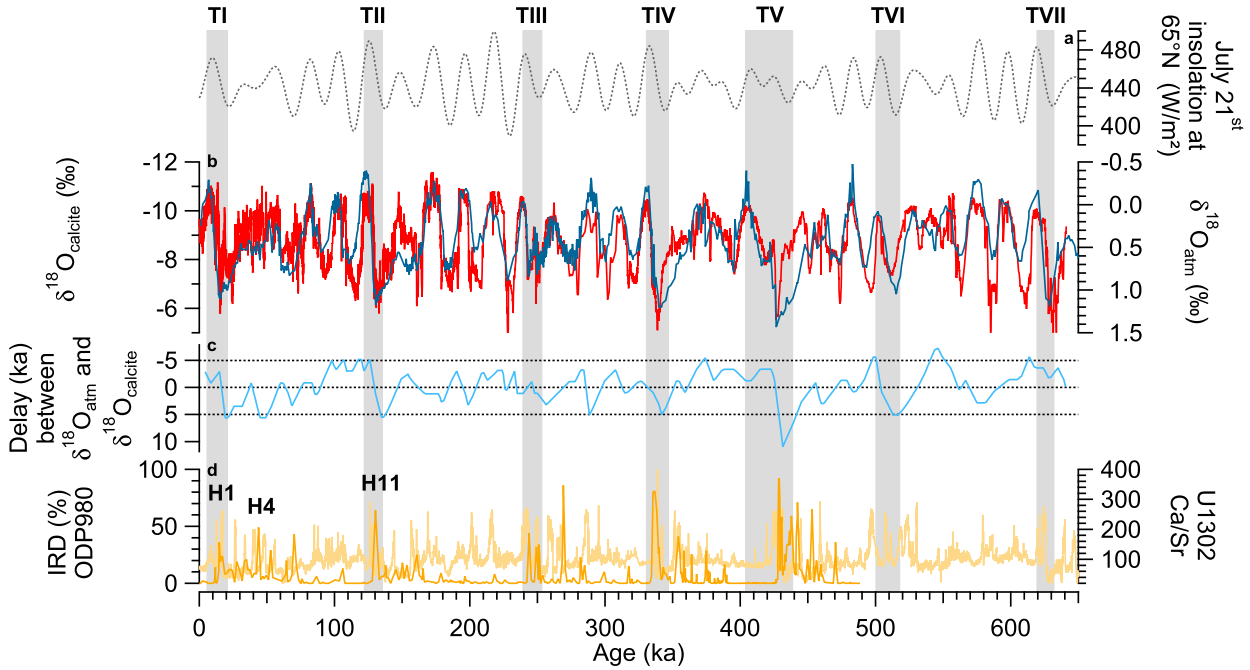



**Fig. 7.** a: July 21st insolation at 65°N (Laskar et al., 2004). b: The respective $\delta^{18}O_{atm}$ (blue: Petit et al., 1999; Dreyfus et al., 2007, 2008; Landais et al., 2013; Bazin et al., 2016; this study) and $\delta^{18}O_{calcite}$ (red: Cheng et al., 2016) records. c: Delay between ice core $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta^{18}O_{calcite}$ from Chinese caves. d: IRD percentage at site ODP980 (orange: McManus et al., 1999; Vazquez Riveiros, Comm. Pers.) and the Ca/Sr ratio at site U1302 (light orange: Channell et al., 2012). The line at 5 ka is the mean delay between the $\delta^{18}O_{atm}$ and the July 21st insolation at 65°N obtained during Terminations I and II. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the Web version of this article.)

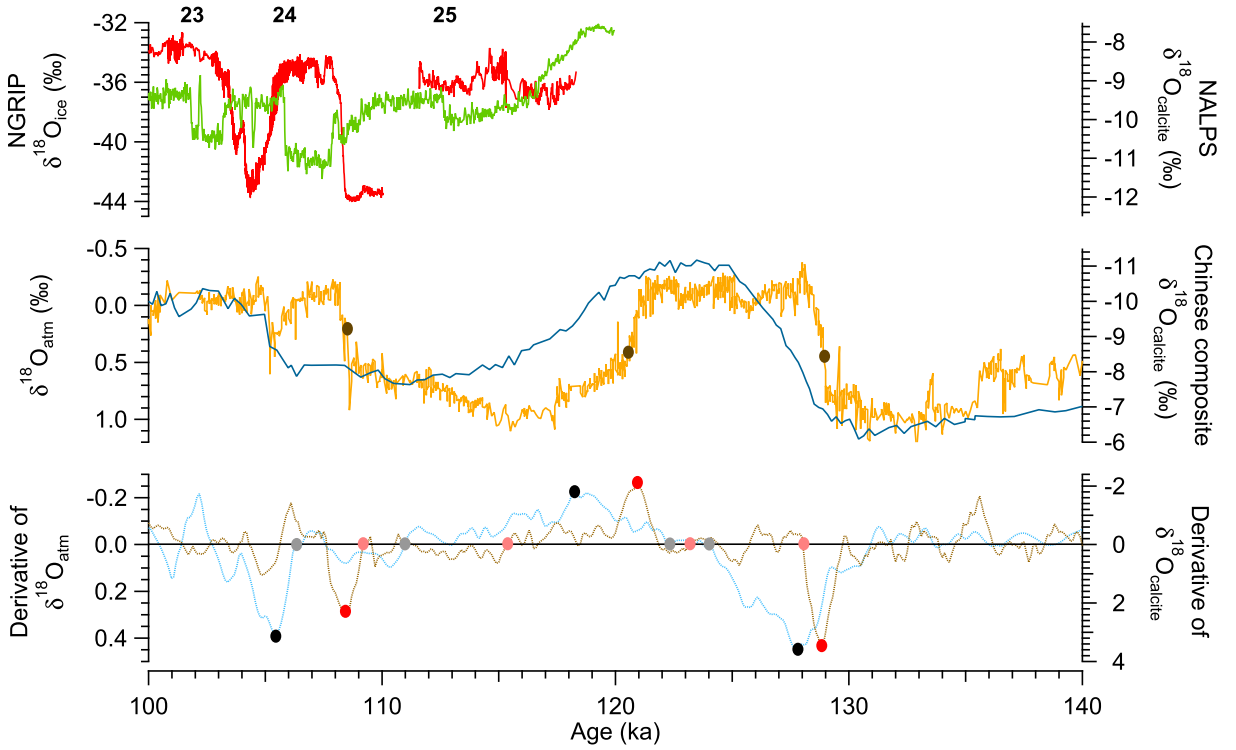



**Fig. 8.** Top: Comparison of high-mid latitude signals: NGRIP $\delta^{18}O_{ice}$ (green: NGRIP members, 2004) and NALPS speleothem $\delta^{18}O_{calcite}$ (red: Boch et al., 2011). Middle: Low latitude records: EDC $\delta^{18}O_{atm}$ (dark blue: Landais et al., 2013) and East Asian speleothem $\delta^{18}O_{calcite}$ (orange: Cheng et al., 2016). The brown dots represent the tie points used for the alignment between the extrema derivative of $\delta^{18}O_{atm}$ (black dots) and the abrupt changes in $\delta^{18}O_{calcite}$. Bottom: Time derivative of EDC $\delta^{18}O_{atm}$ (light blue) and East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ (brown) with indication of respective extrema (black and red dots) and change of sign (grey and pink dots) used to test the alignment method. The Dansgaard-Oeschger events are numbered. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the Web version of this article.)

and East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ records. Even if shifts are expected between abrupt changes in surface temperature in Greenland and $\delta^{18}O_{calcite}$ in the Alps during the succession of Dansgaard-Oeschger (DO) events, a delay of 2.7 ka over the onset of DO 25 seems quite unrealistic (Fig. 8), given uncertainty of the NALPS chronology of 0.2–0.5 ka over the 60–120 ka period (Boch et al., 2011). Following our proposed alignment method between EDC $\delta^{18}O_{atm}$ and East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$, we revise the EDC and NGRIP AICC2012 chronologies over this period using the Datice tool (Lemieux-Dudon et al., 2010; Bazin et al., 2013) using the new control points defined in Fig. 8 with a 1.22 ka uncertainty (chosen in agreement with uncertainties determined in section 4.4). All other stratigraphic and absolute control points used to constrain the coherent chronology between EDC, Vostok, EPICA Dronning Maud Land, TALDICE and NGRIP ice cores are the same as during the AICC2012 construction, except for the four Vostok $\delta^{18}O_{atm}$ age markers over MIS 5 that have been removed. We find an improved agreement between NGRIP $\delta^{18}O_{ice}$ on the revised chronology and NALPS $\delta^{18}O_{calcite}$, especially over the onset of DO 25, with a resulting chronology 2.2 ka older than AICC2012 (Fig. 9). The timing of DO 24 in NGRIP record is also 2.3 ka older than AICC2012 and is now comparable to the NALPS record. We thus consider the improved synchronization between NGRIP $\delta^{18}O_{ice}$ and NALPS $\delta^{18}O_{calcite}$ on Fig. 9 as encouraging for further use of East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ as target for $\delta^{18}O_{atm}$ dating.

### 4.4. Uncertainties and limitations

Even if alignment between $\delta^{18}O_{atm}$ and East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ may be a tool to refine ice core chronologies, we want to stress that it should not be used without cautiousness. First, the $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta^{18}O_{calcite}$ signals should be comparable on the considered periods. Second, even if modeling studies have confirmed the good correspondence between East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ and $\delta^{18}O_{atm}$ during Heinrich events (Reutenauer et al., 2015), the same demonstration needs to be done for orbital scales. Third, the match between $\delta^{18}O_{atm}$ and East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ is associated with three major sources of uncertainty detailed below.

1/ $\delta^{18}O_{atm}$ is a more integrative signal than East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ which involves large-scale atmospheric circulation effects but also a potential control of seasonality (sea surface temperature variation or ITCZ migration). However, Caley et al. (2014) have shown that the $\delta^{18}O_{calcite}$ has to be considered as a proxy of the mean annual hydrological cycle and not as a summer monsoonal proxy. They also estimate the uncertainty between summer and annual $\delta^{18}O_{calcite}$ variations in response to insolation forcing to about 1 ka. Taking into account a maximum 1 ka uncertainty, the $\delta^{18}O_{calcite}$ seems then a good proxy to infer annual variations of hydrological processes and comfort the suggestion of using it as a target for $\delta^{18}O_{atm}$ tuning.

2/ The uncertainties associated with the speleothems chronologies (obtained with $^{230}$Th dating) need also to be considered. The different speleothems records in the composite signal of Cheng et al. (2016) have different uncertainties over the recent part. Wang et al. (2008) have obtained an uncertainty in age of ±0.7 ka (2σ) between 60 and 130 ka and ±1.5 ka (2σ) between 130 and 180 ka. Kelly et al. (2006) have an uncertainty of ~1 ka (2σ) between 100 and 140 ka and Dorale et al. (2004) have shown that for the last interglacial, the errors associated with $^{230}$Th dating are ranging between 0.5 and 1 ka (2σ). So over the recent part of the East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ composite record, the uncertainty can be estimated to ~0.5 ka (1σ), but increases up to 8 ka at 640 ka (Cheng et al., 2016). This limits the alignment of $\delta^{18}O_{atm}$ with $\delta^{18}O_{calcite}$ for old time periods.

3/ In order to estimate the uncertainty related to the alignment method between the records, we test three different methods. First we choose to align both extrema in the time derivative corresponding to mid-slopes of $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta^{18}O_{calcite}$ records (Fig. 8). Second, we align periods where the sign of both derivatives are changing, corresponding to inflexion points in the $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta^{18}O_{calcite}$ original records (Fig. 8). Finally, we align the extrema values in the time derivative of $\delta^{18}O_{atm}$ and sharp changes in $\delta^{18}O_{calcite}$ (Fig. 8) since $\delta^{18}O_{atm}$ signal is an integrative signal on a much longer timescale than $\delta^{18}O_{calcite}$; this method is particularly well adapted for millennial variability. After realization of the different alignment methods and comparison of the resulting chronologies (Fig. 9), we estimate a maximum difference between the chronologies of 0.37 ka for DO 23, 0.44 ka for DO 24, and 0.40 ka for DO 25. Considering an upper limit for discrepancy between chronologies, we assign an additional 0.50 ka (1σ) uncertainty for the alignment method.

Finally, combining these three sources of uncertainties, we estimate a 1.22 ka (1σ) uncertainty for the $\delta^{18}O_{atm} - \delta^{18}O_{calcite}$ dating method over MIS 5.

### 4.5. Toward a new Antarctic ice core chronology

We apply here the new $\delta^{18}O_{atm}$ dating approach for the EDC ice

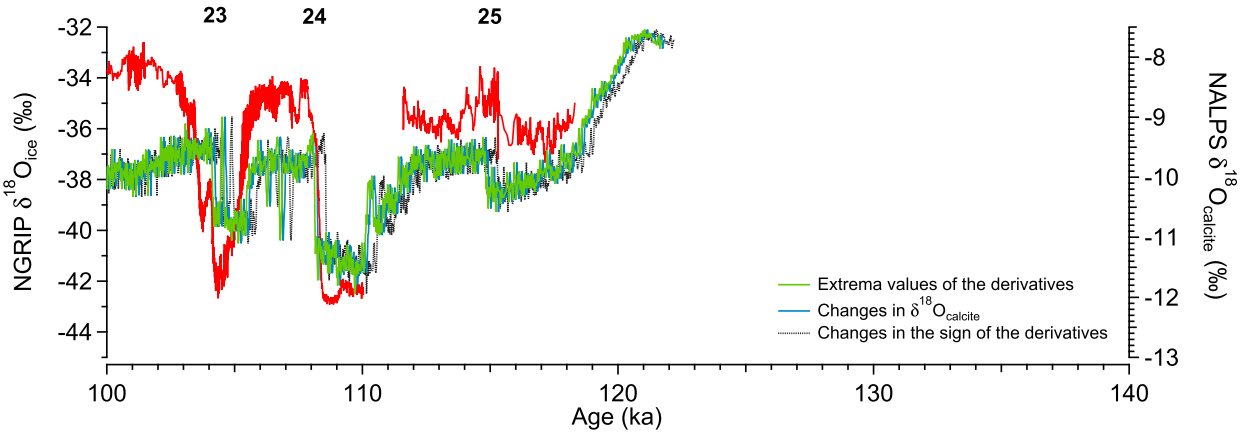



**Fig. 9.** NALPS speleothem $\delta^{18}O_{calcite}$ record (red: Boch et al., 2011) and NGRIP $\delta^{18}O_{ice}$ evolution on the new chronologies after aligning $\delta^{18}O_{atm}$ and East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ based on the extrema values of the derivatives (green curve), the extrema values of the $\delta^{18}O_{atm}$ derivative with changes in $\delta^{18}O_{calcite}$ (blue curve), and change of the derivatives sign (dashed black curve). The Dansgaard-Oeschger events are numbered. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the Web version of this article.)

core over the 100–640 ka period where alignment with speleothems could potentially reduce the current uncertainty in EDC chronology. Using the same methodology as presented in section 4.3, we chose 51 markers between 100 and 640 ka (corresponding to the extrema values of the time derivative) to align the $\delta^{18}O_{atm}$ and the $\delta^{18}O_{calcite}$ signals (Fig. 10). Over this time period, the uncertainties associated with speleothems $^{230}Th$ dating are taken from Cheng et al. (2016). We additionally consider a 1 ka uncertainty for the $\delta^{18}O_{calcite}$ variations in response to insolation forcing and a 0.5 ka uncertainty for the $\delta^{18}O_{atm} - \delta^{18}O_{calcite}$ alignment method as discussed in previous section. The total uncertainties can then be calculated and applied between 100 and 640 ka. They vary between 1.3 ka at 105 ka to 6.9 ka at 630 ka. Before 640 ka, in the absence of speleothem data, we kept the classical $\delta^{18}O_{atm}$ orbital tuning to precession with an uncertainty of 6 ka as used for AICC2012.

Fig. 10 compares the EDC δD record on AICC2012 and on the new chronology based on the $\delta^{18}O_{atm} - \delta^{18}O_{calcite}$ alignment method. The difference between the two chronologies is generally below 2 ka except for the last glacial inception and over the sequence of MIS 10 and MIS 11 where differences up to 4 ka are reached. In particular, taking the classical threshold of −403‰ as a definition of an Antarctic warm period (EPICA community members, 2004), the MIS 11 duration is only 29.8 ka on the $\delta^{18}O_{atm} - \delta^{18}O_{calcite}$ chronology compared to the 31.1 ka estimated on AICC2012. Most importantly, the age uncertainty is strongly reduced around MIS 11 in the chronology based on the $\delta^{18}O_{atm} - \delta^{18}O_{calcite}$ alignment with a reduction from 3.8 ka for AICC2012 to 2.3 ka (Fig. 10). Indeed, due to low eccentricity, only few orbital tie points could be found over this period during the construction of AICC2012 as can be seen from the poor correspondence between $\delta^{18}O_{atm}$ ($\delta O_2/N_2$) and summer insolation at 65°N (December 21$^{st}$ insolation at 75°S) on Fig. 5. The matching between $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta^{18}O_{calcite}$ over the MIS 10 – MIS 11 period (Appendix C) is much better than the matching between $\delta^{18}O_{atm}$ and summer insolation. Before 450 ka and due to higher speleothem dating uncertainties, the $\delta^{18}O_{atm} - \delta^{18}O_{calcite}$ chronology present higher uncertainties, close to the ones obtained with the AICC2012 chronology (Fig. 10).

## 5. Summary & conclusions

In this study we have presented new EDC $\delta^{18}O_{atm}$ data between 153 and 374 ka expanding the previous EDC record focused on the 300–800 ka and 100–150 ka periods. The high-resolution record presented here allows an unprecedented study of $\delta^{18}O_{atm}$ dynamics over the recent glacial terminations. These data were combined with new $\delta O_2/N_2$ data obtained on well-preserved ice (−50 °C) for the same period. Combination of these series on the same ice core shows that the classical dating target for $\delta^{18}O_{atm}$, i.e. the boreal summer insolation with a constant 5 ka shift, should be revised. Indeed, we show that this 5 ka shift is mainly due to the delay induced by Heinrich events particularly during deglaciations. As already demonstrated in previous studies (e.g. Landais et al., 2007; Severinghaus et al., 2009; Capron et al., 2012), $\delta^{18}O_{atm}$ is sensitive to both orbital and millennial scale variations of the low latitude water cycle.

Because East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ includes similar orbital and millennial variations, and is also directly influenced by the low latitude water cycle, we propose that East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ could be used as an alternative target for the $\delta^{18}O_{atm}$ signal because of their concomitant variations. This is especially true over Heinrich events associated with Weak Monsoon Interval through a southward shift of the ITCZ. We argue that matching $\delta^{18}O_{atm}$ with East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ is probably a better tool for ice core dating than the matching of $CH_4$ to East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ during glacial-interglacial transitions. Indeed, while methane shares many similarities with

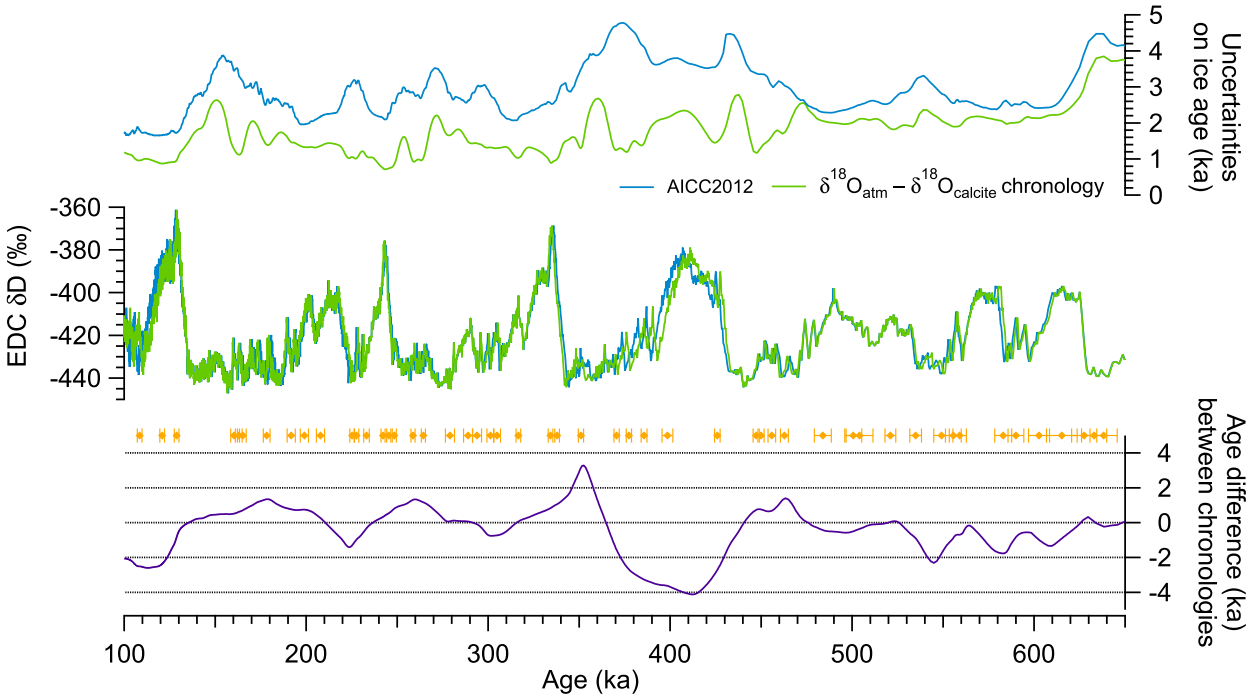



**Fig. 10.** Top: Representation of the uncertainties associated with the ice age of AICC2012 (blue: Bazin et al., 2013) and $\delta^{18}O_{atm} - \delta^{18}O_{calcite}$ (green) chronologies. Middle: δD evolution between 100 and 640 ka on AICC2012 (blue: Jouzel et al., 2007) and on the new EDC chronology (green). The orange diamonds represent the markers used for the alignment between $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta^{18}O_{calcite}$. Bottom: The age difference between AICC2012 and the $\delta^{18}O_{atm} - \delta^{18}O_{calcite}$ chronology is represented. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the Web version of this article.)

$\delta^{18}O_{calcite}$ during millennial scale variability of the last glacial period, methane variations do not exhibit similar variations to $\delta^{18}O_{calcite}$ over deglaciation and some precession cycle. This is probably because methane is strongly influenced by high latitude emissions during warm periods while $\delta^{18}O_{atm}$ is more sensitive to low latitude water cycle.

Finally, this new dating strategy has been tested over the last glacial inception where the alignment between $\delta^{18}O_{atm}$ and East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ leads to an improved comparison between NGRIP $\delta^{18}O_{ice}$ record and mid-latitude climatic record (here NALPS speleothems). It was then extended to the last 640 ka where the new chronology based on $\delta^{18}O_{atm} - \delta^{18}O_{calcite}$ alignment implies revised ages, in particular for duration of MIS 11. The uncertainty of the chronology based on $\delta^{18}O_{atm} - \delta^{18}O_{calcite}$ alignment is significantly reduced (~2 ka instead of ~4 ka) around MIS 11, hence supporting further use of this dating tool for future ice core dating.

Still, it could be argued that there is yet no direct proof that $\delta^{18}O_{atm}$ is varying synchronously with East Asian climatic signal and hence $\delta^{18}O_{calcite}$ on long timescales. This is the reason why, following the model study of $\delta^{18}O_{atm}$ over a Heinrich event (Reutenauer et al., 2015), we see as a next step the direct simulation of both $\delta^{18}O_{calcite}$ and $\delta^{18}O_{atm}$ over at least one climatic cycle.


## Acknowledgments

We acknowledge Alexandre Cauquoin for his contribution to the Match protocol learning. We thank Frédéric Parrenin, Jai Chowdhry Beeman, Bruno Malaizé and Louis Francois for fruitful discussions. We also thank the glaciological program of the French Polar Institute (IPEV) and Catherine Ritz involved in cutting EDC $\delta O_2/N_2$ samples. It is a contribution to the European Project for Ice Coring in Antarctica (EPICA). This work was supported by Labex L-IPSL, which is funded by the ANR (grant no. ANR-10-LABX-0018) as well as the Belmont Forum's Pacmedy project.


## Appendix A. $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta O_2/N_2$ relationship

Gas loss during storage at −20 °C has the effect to decrease the $O_2/N_2$ ratio, since $O_2$ molecules are smaller than $N_2$ molecules. It also affects the $\delta^{18}O$ of $O_2$ in air trapped in ice core and hence $\delta^{18}O_{atm}$. Landais et al. (2003b) have found a linear relationship of 0.01 due to gas loss between the changes in $\delta O_2/N_2$ and changes in $\delta^{18}O_{atm}$ in the Vostok and GRIP ice cores. This relationship is in good agreement with the link between $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta O_2/N_2$ variations found by Severinghaus et al. (2009) for the Siple Dome ice core even if these authors also used the $Ar/N_2$ ratio to better constrain gas loss effects.

In our study, $Ar/N_2$ measurements could not be determined with a sufficient precision. We thus used $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta O_2/N_2$ measurements presenting large differences between the $\delta O_2/N_2$ replicate values to study the relationship between these two proxies. We did this exercise for two datasets, 2014 and 2015–2016, and plot the difference between $\delta^{18}O_{atm}$ replicates versus the difference between $\delta O_2/N_2$ replicates of the same sample on Fig. A1. We obtain a mean slope of 0.012 (Fig. A1), which is coherent with the slope of 0.01 found by Landais et al. (2003b) for the relationship between $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta O_2/N_2$ due to gas loss and we thus choose to apply the same correction:

$$\delta^{18}O_{atm\,corrected} = \delta^{18}O_{atm} + (\delta O_2/N_2 + 10) \times 0.01 \quad (A1)$$

The average value of −10‰ in the above equation agrees with the mean value of the $\delta O_2/N_2$ signal at EDC without gas loss influence over our series of measurements.

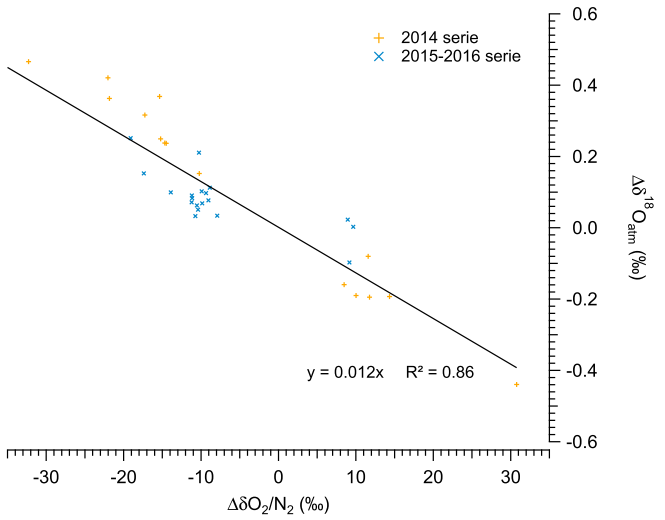



**Fig. A1.** Paired difference plot for the $\delta^{18}O_{atm}$ versus $\delta O_2/N_2$ (second replicate minus first replicate) for two datasets: 2014 in orange and 2015–2016 in blue.

## Appendix B. $\Delta\varepsilon_{LAND}$ calculation

$\Delta\varepsilon_{LAND}$ is an empirical parameter that represents the water cycle and respiratory fractionation changes over time (Severinghaus et al., 2009). This parameter is calculated using the following equation:

$$\Delta\varepsilon_{LAND} = \left[\tau \times \frac{d\delta^{18}O_{atm}}{dt} + \delta^{18}O_{atm} - \delta^{18}O_{sea\ water}\right] \times \frac{1}{f_L} \quad (B1)$$

where $\tau$ is the residence time of oxygen in the atmosphere (1 ka), $d\delta^{18}O_{atm}/dt$ is the temporal derivative of $\delta^{18}O_{atm}$, $\delta^{18}O_{sea\ water}$ is the global isotopic composition of sea water, whose evolution over the last climatic cycles can be obtained from Lisiecki and Raymo (2005), and $f_L$ is the fraction of oxygen photosynthesis occurring on land (consider constant in time and equal to 0.65 based on the discussion by Blunier et al., 2002). To calculate $\Delta\varepsilon_{LAND}$, the $\delta^{18}O_{atm}$ series was interpolated with a 100 years' time step and then fitted using the Savitzky-Golay algorithm with 25 points at second order. The time derivative was then calculated on this fitted curve using the $\delta^{18}O_{atm}$ slope over a 200 years period. The $\delta^{18}O_{sea\ water}$ record has also been interpolated with a 100 years' time step and smoothed with the Savitzky-Golay algorithm to match the $\delta^{18}O_{atm}$ timescale. Finally, the $\Delta\varepsilon_{LAND}$ has been calculated using the time derivative and the corresponding smoothed and interpolated $\delta^{18}O$ values.

## Appendix C. $\delta^{18}O_{atm}$ chronology comparison

Fig. C1 shows how the new chronology improves the correlation between $\delta^{18}O_{atm}$ and $\delta^{18}O_{calcite}$ especially during periods where the delay was maximum in Fig. 7 (e.g. $R^2$ increases from 0.49 to 0.76 for Termination II and from 0.53 to 0.75 during MIS 10–11).

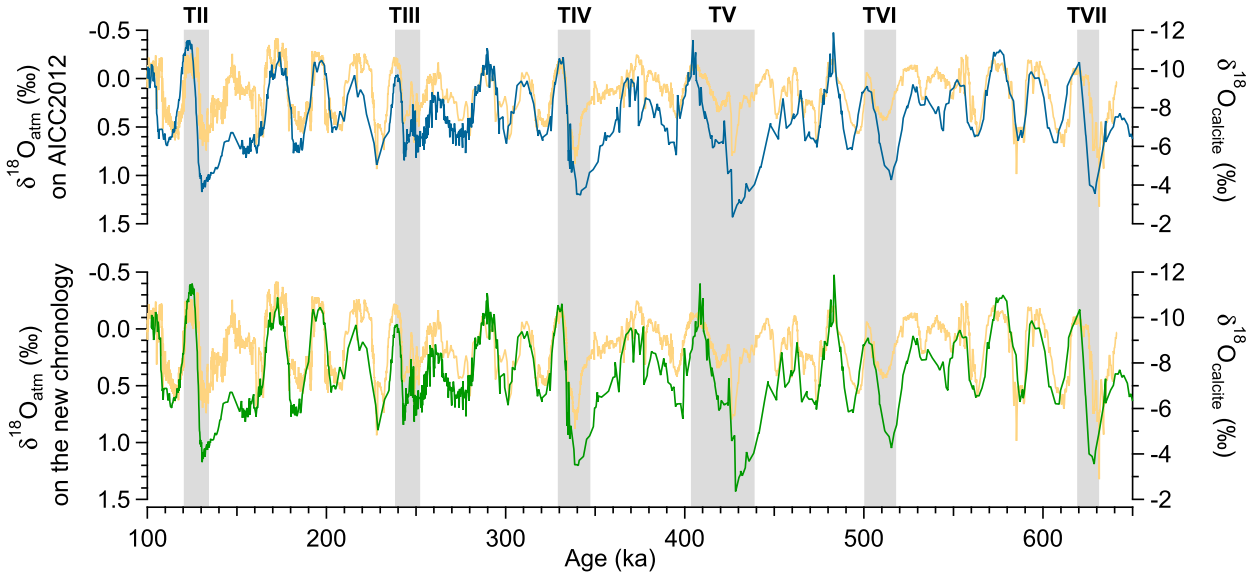



**Fig. C1.** Comparison of $\delta^{18}O_{calcite}$ from East Asian speleothems (orange: Cheng et al., 2016) with the $\delta^{18}O_{atm}$ record on AICC2012 in blue (Dreyfus et al., 2007, 2008; Landais et al., 2013; Bazin et al., 2016; this study) and on the $\delta^{18}O_{atm} - \delta^{18}O_{calcite}$ chronology in green.

## References


Battle, M., Bender, M., Sowers, T., Tans, P.P., Butler, J.H., Elkins, J.W., Ellis, J.T., Conway, T., Zhang, N., Lang, P., Clarket, A.D., 1996. Atmospheric gas concentrations over the past century measured in air from firn at the South Pole. Nature 383, 231–235. https://doi.org/10.1038/383231a0.

Bazin, L., Landais, A., Lemieux-Dudon, B., Toyé Mahamadou Kele, H., Veres, D., Parrenin, F., Martinerie, P., Ritz, C., Capron, E., Lipenkov, V., Loutre, M.-F., Raynaud, D., Vinther, B., Svensson, A., Rasmussen, S.O., Severi, M., Blunier, T., Leuenberger, M., Fischer, H., Masson-Delmotte, V., Chappellaz, J., Wolff, E., 2013. An optimized multi-proxy, multi-site Antarctic ice and gas orbital chronology (AICC2012): 120-800 ka. Clim. Past 9, 1715–1731. https://doi.org/10.5194/cp-9-1715-2013.

Bazin, L., Landais, A., Capron, E., Masson-Delmotte, V., Ritz, C., Picard, G., Jouzel, J., Dumont, M., Leuenberger, M., Prié, F., 2016. Phase relationships between orbital forcing and the composition of air trapped in Antarctic ice cores. Clim. Past 12, 729–748. https://doi.org/10.5194/cp-12-729-2016.

Bender, M.L., Sowers, T., Labeyrie, L., 1994. The Dole effect and its variations during the last 130,000 years as measured in the Vostok ice core. Global Biogeochem. Cycles 8, 363–376. https://doi.org/10.1029/94GB00724.

Bender, M.L., 2002. Orbital tuning chronology for the Vostok climate record supported by trapped gas composition. Earth Planet Sci. Lett. 204, 275–289. https://doi.org/10.1016/S0012-821X(02)00980-9.

Bintanja, R., van de Wal, R.S.W., Oerlemans, J., 2005. Modelled atmospheric temperatures and global sea levels over the past million years. Nature 437, 125–128. https://doi.org/10.1038/nature03975.

Blunier, T., Barnett, B., Bender, M.L., Hendricks, M.B., 2002. Biological oxygen productivity during the last 60,000 years from triple oxygen isotope measurements. Global Biogeochem. Cycles 16 (3). https://doi.org/10.1029/2001GB001460.

Boch, R., Cheng, H., Spötl, C., Edwards, R.L., Wang, X., Häuselmann, P., 2011. NALPS: a precisely dated European climate record 120–60 ka. Clim. Past 7, 1247–1259. https://doi.org/10.5194/cp-7-1247-2011.

Bréant, C., Martinerie, P., Orsi, A., Arnaud, L., Landais, A., 2017. Modelling firn thickness evolution during the last deglaciation: constraints on sensitivity to temperature and impurities. Clim. Past 13, 833–853. https://doi.org/10.5194/cp-13-833-2017.

Buizert, C., Cuffey, K.M., Severinghaus, J.P., Baggenstos, D., Fudge, T.J., Steig, E.J., Markle, B.R., Winstrup, M., Rhodes, R.H., Brook, E.J., Sowers, T.A., Clow, G.D., Cheng, H., Edwards, R.L., Sigl, M., McConnell, J.R., Taylor, K.C., 2015. The WAIS Divide deep ice core WD2014 chronology – Part 1: methane synchronization (68–31 ka BP) and the gas age–ice age difference. Clim. Past 11, 153–173. https://doi.org/10.5194/cp-11-153-2015.

Caley, T., Roche, D.M., Renssen, H., 2014. Orbital Asian summer monsoon dynamics revealed using an isotope-enabled global climate model. Nat. Commun. 5 (5371). https://doi.org/10.1038/ncomms6371.

Capron, E., Landais, A., Lemieux-Dudon, B., Schilt, A., Masson-Delmotte, V., Buiron, D., Chappellaz, J., Dahl-Jensen, D., Johnsen, S., Leuenberger, M., Loulergue, L., Oerter, H., 2010. Synchronising EDML and NorthGRIP ice cores using $\delta^{18}O$ of atmospheric oxygen ($\delta^{18}O_{atm}$) and $CH_4$ measurements over MIS5 (80–123 kyr). Quat. Sci. Rev. 29, 222–234. https://doi.org/10.1016/j.quascirev.2009.07.014.

Capron, E., Landais, A., Chappellaz, J., Buiron, D., Fischer, H., Johnsen, S.J., Jouzel, J., Leuenberger, M., Masson-Delmotte, V., Stocker, T.F., 2012. A global picture of the first abrupt climatic event occurring during the last glacial inception. Geophys. Res. Lett. 39. https://doi.org/10.1029/2012GL052656.

Channell, J.E.T., Hodell, D.A., Romero, O., Hillaire-Marcel, C., de Vernal, A., Stoner, J.S., Mazaud, A., Röhl, U., 2012. A 750-kyr detrital-layer stratigraphy for the North Atlantic (IODP sites U1302–U1303, Orphan Knoll, Labrador sea). Earth Planet Sci. Lett. 317–318, 218–230. https://doi.org/10.1016/j.epsl.2011.11.029.

Cheng, H., Edwards, R.L., Sinha, A., Spötl, C., Yi, L., Chen, S., Kelly, M., Kathayat, G., Wang, X., Li, X., Kong, X., Wang, Y., Ning, Y., Zhang, H., 2016. The Asian monsoon over the past 640,000 years and ice age terminations. Nature 534, 640–646. https://doi.org/10.1038/nature18591.

Clemens, S.C., Prell, W.L., Sun, Y., 2010. Orbital-scale timing and mechanisms driving Late Pleistocene Indo-Asian summer monsoons: reinterpreting cave speleothem δ18O. Paleoceanography 25. https://doi.org/10.1029/2010PA001926.

Craig, H., Horibe, Y., Sowers, T., 1988. Gravitational separation of gases and isotopes in polar ice caps. Science 242, 1675–1678. https://doi.org/10.1126/science.242.4886.1675.

Dorale, J.A., Edwards, R.L., Alexander, E.C., Shen, C.-C., Richards, D.A., Cheng, H., 2004. Uranium-series dating of speleothems: current techniques, limits, & applications. In: Sasowsky, I.D., Mylroie, J. (Eds.), Studies of Cave Sediments. Springer, Boston, MA, pp. 177–197. https://doi.org/10.1007/978-1-4419-9118-8_10.

Dreyfus, G.B., Parrenin, F., Lemieux-Dudon, B., Durand, G., Masson-Delmotte, V., Jouzel, J., Barnola, J.-M., Panno, L., Spahni, R., Tisserand, A., Siegenthaler, U., Leuenberger, M., 2007. Anomalous flow below 2700 m in the EPICA Dome C ice core detected using $\delta^{18}O$ of atmospheric oxygen measurements. Clim. Past 3, 341–353. https://doi.org/10.5194/cp-3-341-2007.

Dreyfus, G.B., 2008. Dating an 800,000 Year Antarctic Ice Core Record Using the Isotopic Composition of Trapped Air. PhD thesis. Princeton University.

Dreyfus, G.B., Raisbeck, G.M., Parrenin, F., Jouzel, J., Guyodo, Y., Nomade, S., Mazaud, A., 2008. An ice core perspective on the age of the Matuyama–Brunhes boundary. Earth Planet Sci. Lett. 274, 151–156. https://doi.org/10.1016/j.epsl.2008.07.008.

Dreyfus, G.B., Jouzel, J., Bender, M.L., Landais, A., Masson-Delmotte, V., Leuenberger, M., 2010. Firn processes and $\delta^{15}N$: potential for a gas-phase climate proxy. Quat. Sci. Rev. 29, 28–42. https://doi.org/10.1016/j.quascirev.2009.10.012.

EPICA community members, 2004. Eight glacial cycles from an Antarctic ice core. Nature 429, 623–628.

Fujita, S., Okuyama, J., Hori, A., Hondoh, T., 2009. Metamorphism of stratified firn at Dome Fuji, Antarctica: a mechanism for local insolation modulation of gas transport conditions during bubble close off. J. Geophys. Res. 114. https://doi.org/10.1029/2008JF001143.

Fujita, S., Parrenin, F., Severi, M., Motoyama, H., Wolff, E.W., 2015. Volcanic synchronization of Dome Fuji and Dome C Antarctic deep ice cores over the past 216 kyr. Clim. Past 11, 1395–1416. https://doi.org/10.5194/cp-11-1395-2015.

Goujon, C., Barnola, J.-M., Ritz, C., 2003. Modeling the densification of polar firn including heat diffusion: application to close-off characteristics and gas isotopic fractionation for Antarctica and Greenland sites. J. Geophys. Res. Atmospheres 108. D24, 4792. https://doi.org/10.1029/2002JD003319.

Huber, C., Beyerle, U., Leuenberger, M., Schwander, J., Kipfer, R., Spahni, R., Severinghaus, J., Weiler, K., 2006. Evidence for molecular size dependent gas fractionation in firn air derived from noble gases, oxygen, and nitrogen measurements. Earth Planet Sci. Lett. 243, 61–73. https://doi.org/10.1016/j.epsl.2005.12.036.

Hutterli, M.A., Schneebeli, M., Freitag, J., Kipfstuhl, J., Rothlisberger, R., 2010. Impact of Local Insolation on Snow Metamorphism and Ice Core Records. Hokkaido Univ. Press Sapporo Japan, pp. 223–232.

Jouzel, J., Waelbroeck, C., Malaizé, B., Bender, M., Petit, J.R., Stievenard, M., Barkov, N.I., Barnola, J.M., King, T., Kotlyakov, V.M., Lipenkov, V., Lorius, C., Raynaud, D., Sowers, T., 1996. Climatic interpretation of the recently extended Vostok ice records. Clim. Dynam. 12, 513–521.

Jouzel, J., Hoffmann, G., Parrenin, F., Waelbroeck, C., 2002. Atmospheric oxygen 18 and sea-level changes. Quat. Sci. Rev. 21, 307–314. https://doi.org/10.1016/S0277-3791(01)00106-8.

Jouzel, J., Masson-Delmotte, V., Cattani, O., Dreyfus, G., Falourd, S., Hoffmann, G., Minster, B., Nouet, J., Barnola, J.M., Chappellaz, J., Fischer, H., Gallet, J.C., Johnsen, S., Leuenberger, M., Loulergue, L., Luethi, D., Oerter, H., Parrenin, F., Raisbeck, G., Raynaud, D., Schilt, A., Schwander, J., Selmo, E., Souchez, R., Spahni, R., Stauffer, B., Steffensen, J.P., Stenni, B., Stocker, T.F., Tison, J.L., Werner, M., Wolff, E.W., 2007. Orbital and millennial Antarctic climate variability over the past 800,000 years. Science 317, 793–796. https://doi.org/10.1126/science.1141038.

Kawamura, K., Parrenin, F., Lisiecki, L., Uemura, R., Vimeux, F., Severinghaus, J.P., Hutterli, M.A., Nakazawa, T., Aoki, S., Jouzel, J., Raymo, M.E., Matsumoto, K., Nakata, H., Motoyama, H., Fujita, S., Goto-Azuma, K., Fujii, Y., Watanabe, O., 2007. Northern Hemisphere forcing of climatic cycles in Antarctica over the past 360,000 years. Nature 448, 912–916. https://doi.org/10.1038/nature06015.

Kelly, M.J., Edwards, R.L., Cheng, H., Yuan, D., Cai, Y., Zhang, M., Lin, Y., An, Z., 2006. High resolution characterization of the Asian Monsoon between 146,000 and 99,000 years B.P. from Dongge Cave, China and global correlation of events surrounding Termination II. Palaeogeogr. Palaeoclimatol. Palaeoecol. 236, 20–38. https://doi.org/10.1016/j.palaeo.2005.11.042.

Landais, A., Caillon, N., Severinghaus, J.P., Jouzel, J., Masson-Delmotte, V., 2003a. Analyses isotopiques à haute précision de l'air piégé dans les glaces polaires pour la quantification des variations rapides de température: méthodes et limites. Notes des activités instrumentales de l'IPSL 39.

Landais, A., Chappellaz, J., Delmotte, M., Jouzel, J., Blunier, T., Bourg, C., Caillon, N., Cherrier, S., Malaizé, B., Masson-Delmotte, V., Raynaud, D., Schwander, J., Steffensen, J.P., 2003b. A tentative reconstruction of the last interglacial and glacial inception in Greenland based on new gas measurements in the Greenland Ice Core Project (GRIP) ice core. J. Geophys. Res. 108. https://doi.org/10.1029/2002JD003147.

Landais, A., Masson-Delmotte, V., Combourieu Nebout, N., Jouzel, J., Blunier, T., Leuenberger, M., Dahl-Jensen, D., Johnsen, S., 2007. Millennial scale variations of the isotopic composition of atmospheric oxygen over Marine Isotopic Stage 4. Earth Planet Sci. Lett. 258, 101–113. https://doi.org/10.1016/j.epsl.2007.03.027.

Landais, A., Dreyfus, G., Capron, E., Masson-Delmotte, V., Sanchez-Goñi, M.F., Desprat, S., Hoffmann, G., Jouzel, J., Leuenberger, M., Johnsen, S., 2010. What drives the millennial and orbital variations of $\delta^{18}$Oatm? Quat. Sci. Rev. 29, 235–246. https://doi.org/10.1016/j.quascirev.2009.07.005.

Landais, A., Dreyfus, G., Capron, E., Pol, K., Loutre, M.F., Raynaud, D., Lipenkov, V.Y., Arnaud, L., Masson-Delmotte, V., Paillard, D., Jouzel, J., Leuenberger, M., 2012. Towards orbital dating of the EPICA Dome C ice core using $\delta O_2/N_2$. Clim. Past 8, 191–203. https://doi.org/10.5194/cp-8-191-2012.

Landais, A., Dreyfus, G., Capron, E., Jouzel, J., Masson-Delmotte, V., Roche, D.M., Prié, F., Caillon, N., Chappellaz, J., Leuenberger, M., Lourantou, A., Parrenin, F., Raynaud, D., Teste, G., 2013. Two-phase change in $CO_2$, Antarctic temperature and global climate during Termination II. Nat. Geosci. 6, 1062–1065. https://doi.org/10.1038/ngeo1985.

Laskar, J., Robutel, P., Joutel, F., Gastineau, M., Correia, A.C.M., Levrard, B., 2004. A long-term numerical solution for the insolation quantities of the Earth. Astron. Astrophys 428, 261–285. https://doi.org/10.1051/0004-6361, 20041335.

Lemieux-Dudon, B., Blayo, E., Petit, J.-R., Waelbroeck, C., Svensson, A., Ritz, C., Barnola, J.-M., Narcisi, B.M., Parrenin, F., 2010. Consistent dating for Antarctic and Greenland ice cores. Quat. Sci. Rev. 29, 8–20. https://doi.org/10.1016/j.quascirev.2009.11.010.

Lisiecki, L.E., Lisiecki, P.A., 2002. Application of dynamic programming to the correlation of paleoclimate records. Paleoceanography 17. https://doi.org/10.1029/2001PA000733.

Lisiecki, L.E., Raymo, M.E., 2005. A Pliocene-Pleistocene stack of 57 globally distributed benthic $\delta^{18}$O records. Paleoceanography 20. https://doi.org/10.1029/2004PA001071.

Loulergue, L., 2007. Contraintes chronologiques et biogéochimiques grâce au méthane dans la glace naturelle: une application aux forages du projet EPICA. PhD thesis. Université Joseph-Fourier-Grenoble I.

Loulergue, L., Schilt, A., Spahni, R., Masson-Delmotte, V., Blunier, T., Lemieux, B., Barnola, J.-M., Raynaud, D., Stocker, T.F., Chappellaz, J., 2008. Orbital and millennial-scale features of atmospheric $CH_4$ over the past 800,000 years. Nature 453, 383–386. https://doi.org/10.1038/nature06950.

Lüthi, D., Le Floch, M., Bereiter, B., Blunier, T., Barnola, J.-M., Siegenthaler, U., Raynaud, D., Jouzel, J., Fischer, H., Kawamura, K., Stocker, T.F., 2008. High-resolution carbon dioxide concentration record 650,000–800,000 years before present. Nature 453, 379–382. https://doi.org/10.1038/nature06949.

Malaizé, B., Paillard, D., Jouzel, J., Raynaud, D., 1999. The Dole effect over the last two glacial-interglacial cycles. J. Geophys. Res. Atmospheres 104, 14199–14208. https://doi.org/10.1029/1999JD900116.

McManus, J.F., Oppo, D.W., Cullen, J.L., 1999. A 0.5-million-year record of millennial-scale climate variability in the North Atlantic. Science 283, 971–975.

NorthGRIP members, 2004. High resolution climate record of the northern hemisphere reaching into the last glacial interglacial period. Nature 431, 147–151.

Parrenin, F., Barnola, J.-M., Beer, J., Blunier, T., Castellano, E., Chappellaz, J., Dreyfus, G., Fischer, H., Fujita, S., Jouzel, J., Kawamura, K., Lemieux-Dudon, B., Loulergue, L., Masson-Delmotte, V., Narcisi, B., Petit, J.-R., Raisbeck, G., Raynaud, D., Ruth, U., Schwander, J., Severi, M., Spahni, R., Steffensen, J.P., Svensson, A., Udisti, R., Waelbroeck, C., Wolff, E., 2007. The EDC3 chronology for the EPICA Dome C ice core. Clim. Past 3, 485–497.

Petit, J.-R., Jouzel, J., Raynaud, D., Barkov, N.I., Barnola, J.-M., Basile, I., Bender, M.L., Chappellaz, J., Davis, M., Delaygue, G., Delmotte, M., Kotlyakov, V.M., Lorius, C., Pepin, L., Ritz, C., Saltzman, E., Stievenard, M., 1999. Climate and atmospheric history of the past 420,000 years from the Vostok ice core, Antarctica. Nature 399, 429–436.

Raynaud, D., Lipenkov, V., Lemieux-Dudon, B., Duval, P., Loutre, M.-F., Lhomme, N., 2007. The local insolation signature of air content in Antarctic ice. A new step toward an absolute dating of ice records. Earth Planet Sci. Lett. 261, 337–349. https://doi.org/10.1016/j.epsl.2007.06.025.

Reutenauer, C., Landais, A., Blunier, T., Bréant, C., Kageyama, M., Woillez, M.-N., Risi, C., Mariotti, V., Braconnot, P., 2015. Quantifying molecular oxygen isotope variations during a Heinrich stadial. Clim. Past 11, 1527–1551. https://doi.org/10.5194/cp-11-1527-2015.

Schwander, J., 1989. The transformation of snow to ice and the occlusion of gases. In: Oeschger, H., Langway Jr., C.C. (Eds.), The Environmental Record in Glaciers and Ice Sheets. John Wiley, New York, pp. 53–67.

Seltzer, A.M., Buizert, C., Baggenstos, D., Brook, E.J., Ahn, J., Yang, J.-W., Severinghaus, J.P., 2017. Does $\delta^{18}$O of $O_2$ record meridional shifts in tropical rainfall? Clim. Past 13, 1323–1338. https://doi.org/10.5194/cp-13-1323-2017.

Severinghaus, J.P., Sowers, T., Brook, E.J., Alley, R.B., Bender, M.L., 1998. Timing of abrupt climate change at the end of the Younger Dryas interval from thermally fractionated gases in polar ice. Nature 391, 141–146.

Severinghaus, J.P., Grachev, A., Luz, B., Caillon, N., 2003. A method for precise measurement of argon 40/36 and krypton/argon ratios in trapped air in polar ice with applications to past firn thickness and abrupt climate change in Greenland and at Siple Dome, Antarctica. Geochem. Cosmochim. Acta 67, 325–343. https://doi.org/10.1016/S0016-7037(02)00965-1.

Severinghaus, J., Battle, M., 2006. Fractionation of gases in polar ice during bubble close-off: new constraints from firn air Ne, Kr and Xe observations. Earth Planet Sci. Lett. 244, 474–500. https://doi.org/10.1016/j.epsl.2006.01.032.

Severinghaus, J.P., Beaudette, R., Headly, M.A., Taylor, K., Brook, E.J., 2009. Oxygen-18 of $O_2$ records the impact of abrupt climate change on the terrestrial biosphere. Science 324, 1431–1434. https://doi.org/10.1126/science.1169473.

Shackleton, N.J., 2000. The 100,000-year ice-age cycle identified and found to lag temperature, carbon dioxide, and orbital eccentricity. Science 289, 1897–1902.

Shackleton, N., Fairbanks, R., Chiu, T., Parrenin, F., 2004. Absolute calibration of the Greenland time scale: implications for Antarctic time scales and for Δ14C. Quat. Sci. Rev. 23, 1513–1522. https://doi.org/10.1016/j.quascirev.2004.03.006.

Spahni, R., Chappellaz, J., Stocker, T.F., Loulergue, L., Hausammann, G., Kawamura, K., Flückiger, J., Schwander, J., Raynaud, D., Masson-Delmotte, V., Jouzel, J., 2005. Atmospheric methane and nitrous Oxide of the late pleistocene from Antarctic ice cores. Science 310, 1317–1321. https://doi.org/10.1126/science.1120132.

Stolper, D.A., Bender, M.L., Dreyfus, G.B., Yan, Y., Higgins, J.A., 2016. A Pleistocene ice core record of atmospheric $O_2$ concentrations. Science 353, 1427–1430. https://doi.org/10.1126/science.aaf5445.

Suwa, M., Bender, M.L., 2008. Chronology of the Vostok ice core constrained by $O_2/N_2$ ratios of occluded air, and its implication for the Vostok climate records. Quat. Sci. Rev. 27, 1093–1106. https://doi.org/10.1016/j.quascirev.2008.02.017.

Veres, D., Bazin, L., Landais, A., Toyé Mahamadou Kele, H., Lemieux-Dudon, B., Parrenin, F., Martinerie, P., Blayo, E., Blunier, T., Capron, E., Chappellaz, J., Rasmussen, S.O., Severi, M., Svensson, A., Vinther, B., Wolff, E.W., 2013. The Antarctic ice core chronology (AICC2012): an optimized multi-parameter and multi-site dating approach for the last 120 thousand years. Clim. Past 9, 1733–1748. https://doi.org/10.5194/cp-9-1733-2013.

Wang, Y.J., Cheng, H., Edwards, R.L., An, Z.S., Wu, J., Shen, C.-C., Dorale, J.A., 2001. A high-resolution absolute-dated late pleistocene monsoon record from hulu cave, China. Science 294, 2345–2348. https://doi.org/10.1126/science.1064618.

Wang, Y.J., Cheng, H., Edwards, R.L., Kong, X., Shao, X., Chen, S., Wu, J., Jiang, X., Wang, X., An, Z., 2008. Millennial- and orbital-scale changes in the East Asian monsoon over the past 224,000 years. Nature 451, 1090–1093. https://doi.org/10.1038/nature06692.

Yu, Z., Loisel, J., Turetsky, M.R., Cai, S., Zhao, Y., Frolking, S., MacDonald, G.M., Bubier, J.L., 2013. Evidence for elevated emissions from high-latitude wetlands contributing to high atmospheric $CH_4$ concentration in the early Holocene. Global Biogeochem. Cycles 27, 131–140. https://doi.org/10.1002/gbc.20025.

## 3.6 Variations de l'effet Dole

Maintenant que l'on dispose d'un enregistrement complet du $\delta^{18}O_{atm}$ à Dome C et d'une meilleur chronologie des carottes de glace, on peut regarder les variations de l'effet Dole sur les derniers 800 ka. Le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'effet Dole peuvent être comparés pour voir si l'effet Dole est un meilleur traceur que le $\delta^{18}O_{atm}$. En parallèle il est intéressant de regarder le lien de l'effet Dole et du $\delta^{18}O_{atm}$ avec le $\delta^{18}O_{calcite}$ des basses latitudes pour déterminer lequel des deux proxies présente le meilleur accord avec le $\delta^{18}O_{calcite}$.

L'effet Dole est défini comme l'enrichissement de 23,88 ‰ du $\delta^{18}O_{atm}$ par rapport à la composition isotopique de l'eau de mer. Les études de Bender et al. [1994] ; Leuenberger [1997] ; Malaizé et al. [1999] avaient déjà montré que cette différence entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta^{18}O_{eaudemer}$ moyen variait au cours du temps. L'obtention des nouvelles données de $\delta^{18}O_{atm}$ venant compléter l'enregistrement entre 153 et 375 ka permet d'obtenir un enregistrement complet au cours des derniers 800 ka. L'effet Dole peut alors être calculé sur cette même période à partir de mesures isotopiques du $\delta^{18}O_{atm}$ [Petit et al., 1999] ; [Dreyfus et al., 2007] ; [Dreyfus et al., 2008] ; [Landais et al., 2010] ; [Extier et al., 2018] et de la composition isotopique de l'eau de mer estimée par Bintanja et al. [2005] en utilisant des données interpolées avec un pas de temps de 100 ans sur leur chronologie respective (Figure 3.6). La différence d'échelle d'âge entre les enregistrements de $\delta^{18}O_{atm}$ et de $\delta^{18}O_{eaudemer}$ se traduit par un décalage de quelques milliers d'années qui peut se refléter par un déphasage des valeurs extrêmes de l'effet Dole. C'est pourquoi la modélisation du signal isotopique sur plusieurs cycles glaciaires-interglaciaires permettrait de réduire ces incertitudes de datation.

Malgré l'absence de chronologie commune, il est intéressant de comparer l'effet Dole avec des proxies tels que le $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques reflétant des modifications de l'activité de la mousson en lien avec les précipitations, ou encore avec des paramètres orbitaux. Severinghaus et al. [2009] avaient déjà montré une bonne corrélation entre les variations de l'effet Dole et les variations du $\delta^{18}O_{calcite}$ sur les derniers 60 ka.

Il est observé au cours du stade isotopique 6.5 il y a 175 ka, un minimum d'effet Dole en parallèle à un maximum de l'insolation au 21 juin à 20°N (choisie afin de voir les cycles de précession à 23 ka comme suggéré par Malaizé et al. [1999]) et à une activité de la mous-

son (indienne et africaine) plus importante [Masson et al., 2000]. On observe également une faible valeur de l'effet Dole précédant les terminaisons glaciaires-interglaciaires, en lien avec des calottes de glace très développées. Les changements dans l'effet Dole sont aussi similaires à ceux de l'activité de la mousson aux basses latitudes, ici représentée par le $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques. Lorsque la valeur du $\delta^{18}O_{calcite}$ est faible, l'activité de la mousson est-asiatique est importante traduisant une hausse des précipitations aux basses latitudes (causée par un déplacement de la Zone de Convergence Intertropicale vers le Nord) et lorsque le $\delta^{18}O_{calcite}$ est élevée, la ZCIT est déplacée vers le Sud et entraîne une réduction de l'activité de la mousson des basses latitudes [Cheng et al., 2009] ; [Jiang et al., 2010] ; [Cheng et al., 2016]. Cette variation de l'intensité de la mousson entraîne une augmentation de l'effet Dole, notamment lors des cinq dernières terminaisons avec un ou plusieurs évènements de Heinrich successifs. Ces pics d'effet Dole lors des terminaisons correspondent au décalage du $\delta^{18}O_{atm}$ par rapport à la précession pendant les évènements de Heinrich. Cette bonne corrélation entre l'effet Dole et le $\delta^{18}O_{caclite}$ des basses latitudes au cours des évènements de Heinrich confirme que l'effet Dole est principalement contrôlé par des modifications de l'activité de la mousson asiatique.

Les valeurs de l'effet Dole peuvent également être affectées par la fraction de respiration liée aux sols. Dans le cas d'un sol tropical humide la fraction de respiration est faible, au contraire d'un sol boréal ou celle-ci est plus forte, pouvant apporter une contribution positive à l'effet Dole.

L'effet Dole est donc approprié pour détecter les changements abrupts lors des évènements de Heinrich mais n'est pas très utile à l'échelle orbitale du fait de la forte influence du $\delta^{18}O_{eaudemer}$. Le $\delta^{18}O_{atm}$ est donc privilégié pour étudier son lien avec les variations du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques.

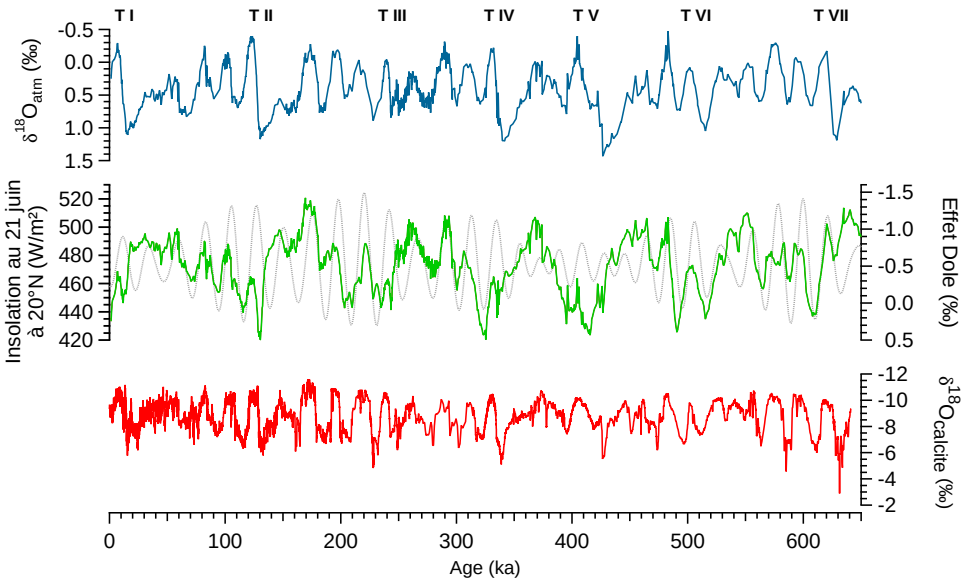



FIGURE 3.6 – Variations de l'effet Dole en comparaison avec le $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques au cours des derniers 650 ka. La courbe bleue représente les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ [Petit et al., 1999] ; [Dreyfus et al., 2007] ; [Landais et al., 2013] ; [Bazin et al., 2016] ; [Extier et al., 2018] sur AICC2012. La courbe verte représente l'effet Dole calculé à partir du $\delta^{18}O_{atm}$ ci-dessus et du $\delta^{18}O_{eaudemer}$ obtenu par Bintanja et al. [2005]. La courbe grise est celle de l'insolation au 21 juin à 20°N [Laskar et al., 2004]. La courbe rouge témoigne des variations du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes tropicaux [Cheng et al., 2016].

De plus, une analyse spectrale réalisée à partir de ces mêmes enregistrements de $\delta^{18}O_{atm}$ et de $\delta^{18}O_{eaudemer}$ ainsi que sur l'effet Dole montre que les variations de la précession (cycles à 23 ka) sont retrouvées dans le $\delta^{18}O_{atm}$ comme dans l'effet Dole (observé précédemment par Jouzel et al. [1996] ; Malaizé et al. [1999] ; Shackleton [2000]) (Figure 3.7). Ce lien avec la précession peut être directement relié aux variations de l'insolation dans l'hémisphère Nord et aux variations du cycle hydrologique des basses latitudes qui modifient la composition isotopique de l'eau de pluie transmise ensuite au $\delta^{18}O_{atm}$ via la photosynthèse de la biosphère. Les variations glaciaires-interglaciaires du $\delta^{18}O_{atm}$ proviennent en grande partie des changements dans le $\delta^{18}O_{eaudemer}$ reflétant les variations du niveau marin et donc du volume des calottes de glace forcé par l'obliquité (cycles à 41 ka). Cela se confirme lors du calcul de l'effet Dole puisque la soustraction du $\delta^{18}O_{eaudemer}$ entraîne une diminution de la composante de l'obliquité. Le pic d'excentricité (cycles à 100 ka) observé dans l'effet Dole provient quant à lui du fort signal dans le $\delta^{18}O_{eaudemer}$ comparativement au $\delta^{18}O_{atm}$. Il est aussi important de souligner que cette analyse spectrale est dépendante de la chronologie relative entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta^{18}O_{eaudemer}$.

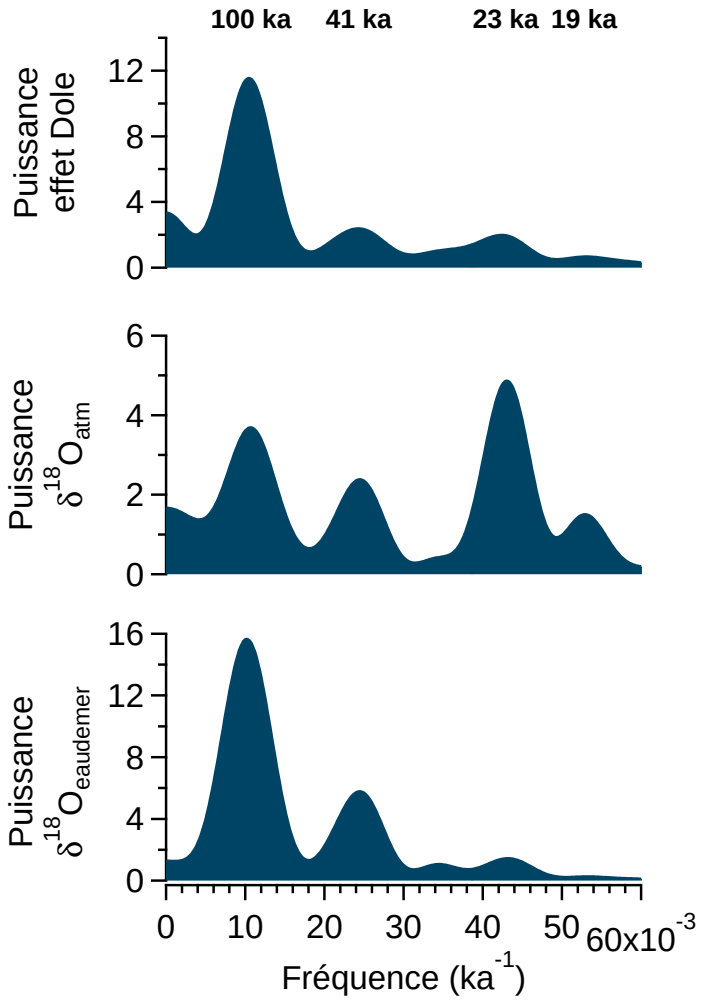



FIGURE 3.7 – Analyse spectrale sur les derniers 800 ka de l'effet Dole, du $\delta^{18}O_{atm}$ [Petit et al., 1999] ; [Dreyfus et al., 2007] ; [Dreyfus et al., 2008] ; [Landais et al., 2013] ; [Bazin et al., 2016] ; [Extier et al., 2018] et du $\delta^{18}O_{eaudemer}$ [Bintanja et al., 2005], réalisée avec la méthode de Tukey.

## 3.7 Etude de la dynamique de la Terminaison 3

Cette partie présente des résultats issus d'un article publié par Bréant et al. [2019] et présenté en Annexe 2.

Le $\delta^{18}O_{atm}$ est utilisé comme traceur du cycle hydrologique des basses latitudes et peut être comparé à différents enregistrements pour étudier la dynamique du climat entre les hautes et basses latitudes. Des mesures haute résolution du $\delta^{18}O_{atm}$ avaient déjà été utilisées pour étudier la séquence des évènements pendant la Terminaison 2 lors de l'évènement de Heinrich 11

[Landais et al., 2013].

En plus de permettre de réduire les incertitudes associées à la chronologie des carottes de glace, les nouvelles mesures à haute résolution du $\delta^{18}O_{atm}$ permettent d'obtenir des informations détaillées sur la séquence relative des évènements entre les hautes et basses latitudes pendant la Terminaison 3 entre 256 et 249 ka. Tandis qu'au cours des Terminaisons 1, 2, et 4 le $\delta^{18}O_{atm}$ présente des variations entre 1,38 et 1,55 ‰, la Terminaison 3 est différente avec seulement 0,86 ‰ de variation (Figure 3.8). On note également pendant la Terminaison 3 plusieurs évènements de Heinrich successifs (à 251, 249 et 244 ka) associés à une augmentation du $\delta^{18}O_{atm}$, alors que les Terminaisons 1, 2, 4 présentent un évènement de Heinrich unique et plus large. Ces évènements de Heinrich sont observés dans un contexte de minimum de niveau marin et de faible température antarctique. L'effet de ces évènements de Heinrich est aussi observé dans les variations du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes asiatiques [Jiang et al., 2010] ; [Cheng et al., 2016] et au travers d'évènements plus arides en Europe du Sud [Pérez-Mejías et al., 2017].

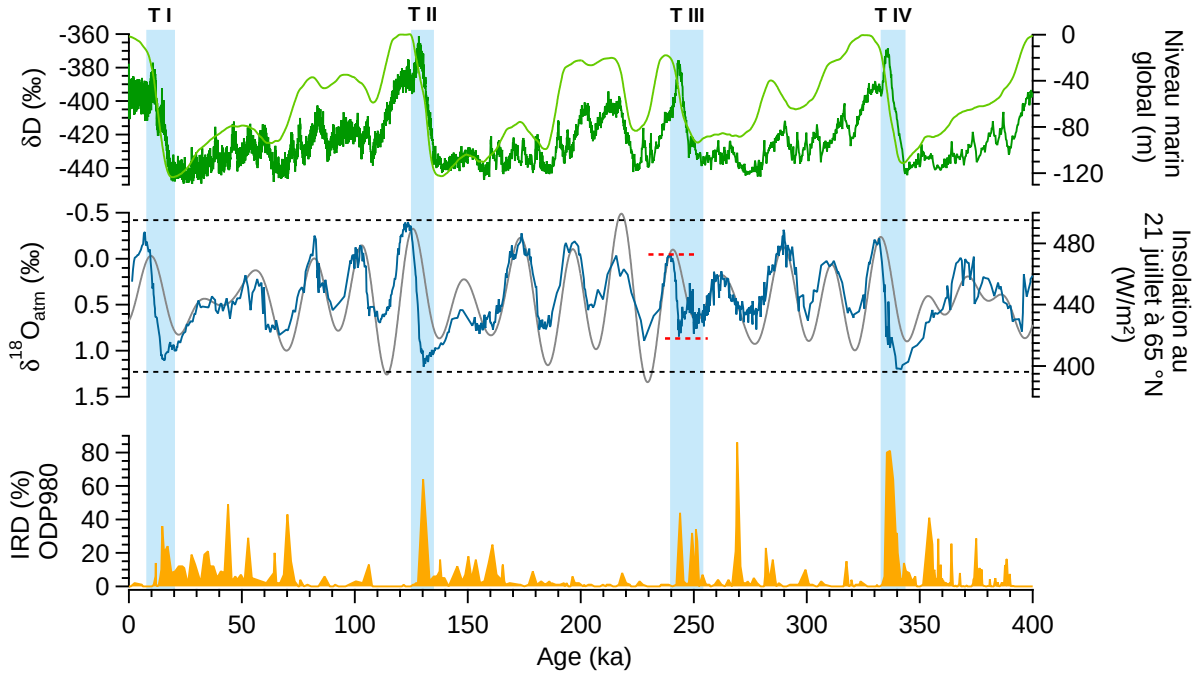



FIGURE 3.8 – Evolution au cours des derniers 400 ka du $\delta$D à EDC (en vert foncé) [Jouzel et al., 2007], du niveau marin global (en vert clair) [Bintanja et al., 2005], du $\delta^{18}O_{atm}$ (en bleu) [Petit et al., 1999] ; [Dreyfus et al., 2007] ; [Landais et al., 2013] ; [Bazin et al., 2016] ; [Extier et al., 2018], de l'insolation au 21 juillet à 65°N (en gris) [Laskar et al., 2004] et du pourcentage d'IRD au site ODP980 (en orange) [McManus et al., 1999]. Les bandes bleues représentent les 4 dernières terminaisons.

De nouveaux enregistrements du $\delta^{15}$N, d-excess et de l'évolution de la température locale $T_{site}$ à Dome C sur cette période permettent également d'appréhender l'évolution de la température antarctique en plusieurs phases. Pour regarder la séquence des évènements entre les hautes et basses latitudes on utilise le $\delta^{18}O_{atm}$ comme indicateur du cycle hydrologique des basses latitudes et le $\delta^{15}$N, d-excess et $T_{site}$ pour avoir des informations sur les variations climatiques des hautes latitudes. L'ensemble de ces mesures permet donc de faire le lien entre les mécanismes des hautes et des basses latitudes via la bascule bipolaire à partir d'enregistrements sur la même échelle de temps comme présenté dans l'article de Bréant et al. [2019] lors de la Terminaison 3 avec ma contribution sur le $\delta^{18}O_{atm}$.

A partir des différents enregistrements sédimentaires et glaciologiques, la Terminaison 3 peut être divisée en plusieurs phases comme proposé par Cheng et al. [2009] et repris par Bréant et al. [2019] en utilisant de nouvelles données des isotopes de l'eau mesurés à Dome C.

Il y a tout d'abord une première phase entre 252 et 248 ka qui intervient dans un contexte orbital de minimum d'insolation au 21 juillet à 65°N. Deux évènements de Heinrich de moyenne amplitude sont enregistrés dans l'océan Atlantique Nord provoquant certainement à la fois l'augmentation du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques suite au déplacement vers le sud de la ZCIT. La concentration en $CH_4$, utilisé pour avoir des informations sur le climat des basses latitudes (puisque les principales sources de méthane sont situées dans ces régions) augmente pendant cette période, de même que le $\delta$D indiquant une hausse des températures antarctiques (Figure 3.9). Le $\delta^{15}$N, relié directement à la température antarctique (ou indirectement via le taux d'accumulation), augmente également lors de cette première phase confirmant le signal de $\delta$D et de $T_{site}$ [Bréant et al., 2019]. La diminution du $\delta^{18}O_{planctonique}$ mesuré dans l'océan Austral reflète un changement climatique (via l'augmentation de la température océanique), hydrologique ou bien de la position du front polaire en lien avec la source des précipitations au cours de cette première phase. Le $\delta^{15}$N et le $\delta^{18}O_{atm}$ ayant la même échelle d'âge, l'augmentation du $\delta^{15}$N et du $\delta^{18}O_{atm}$ lors de cette première phase témoigne de la synchronicité entre un évènement froid dans l'hémisphère Nord suite à un évènement de Heinrich et un réchauffement de la température antarctique, via des téléconnections atmosphériques et océaniques.

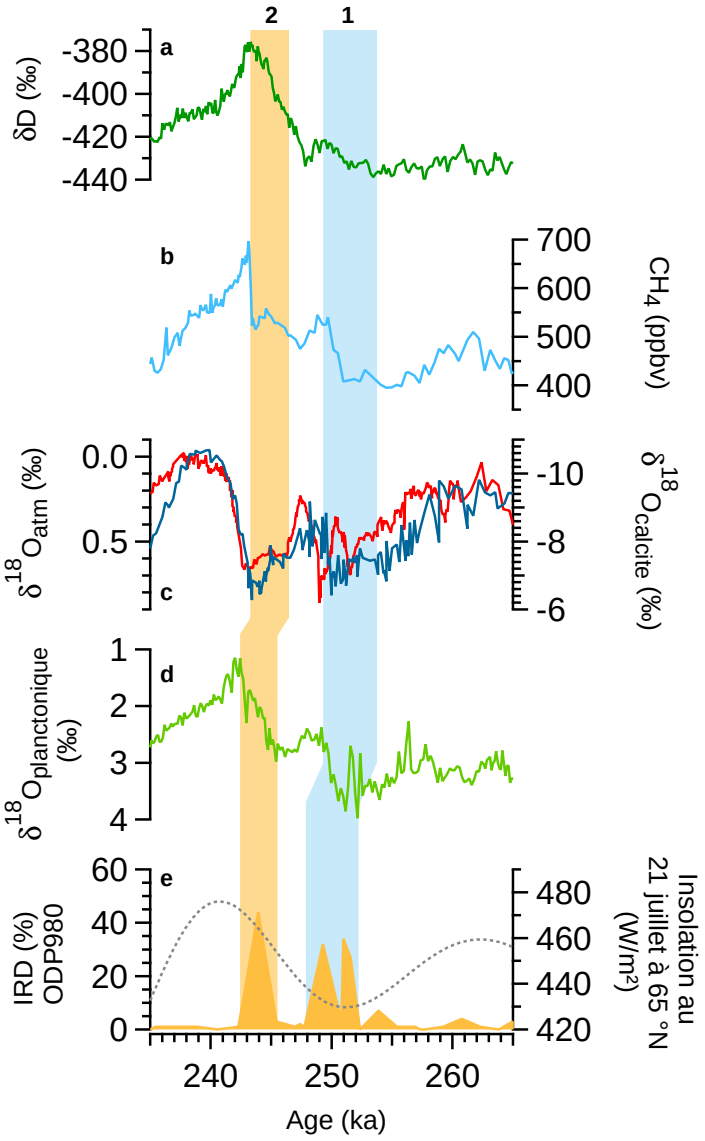



FIGURE 3.9 – Variabilité millénaire observée pendant la Terminaison 3. (a) Le $\delta$D à EDC [Jouzel et al., 2007], (b) le $CH_4$ à EDC [Loulergue et al., 2008], (c) le $\delta^{18}O_{atm}$ à EDC en bleu foncé [Extier et al., 2018] et le $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques en rouge [Cheng et al., 2016], (d) le $\delta^{18}O_{planctonique}$ dans l'océan Austral [Pahnke, 2003], (e) le pourcentage d'IRD au site ODP980 [McManus et al., 1999] et l'insolation au 21 juillet à 65°N [Laskar et al., 2004].

Au cours de la seconde phase entre 246 et 242 ka, un évènement de Heinrich de plus grande amplitude est mesuré dans une carotte sédimentaire de l'océan Atlantique Nord en parallèle à une augmentation de l'insolation au 21 juillet à 65°N. Le $\delta$D présente une augmentation plus marquée et plus rapide que lors de la première phase, expliquée notamment par le contexte orbital différent de la première phase (Figure 3.9). Le pic principal d'augmentation de la concentration en $CH_4$ est observé à la fin de la phase 2 et est similaire aux pics observés lors des déglacia-

tions. De même que lors de la phase 1, le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta^{18}O_{calcite}$ augmentent à cause d'un déplacement de la ZCIT et de la modification du cycle hydrologique des basses latitudes et le $\delta^{18}O_{planctonique}$ diminue suite à des changements (température, position du front polaire) dans l'océan Austral. L'augmentation en parallèle du $\delta D$ et du $\delta^{18}O_{atm}$ est également corrélée à un évènement de Heinrich, une période de faible activité de la mousson et une température antarctique plus élevée, en lien avec la bascule bipolaire (Figure 3.10). Entre ces deux phases, l'activité de la mousson asiatique est plus élevée, le $\delta^{18}O_{atm}$ diminue, et l'on observe une baisse dans les températures dans l'hémisphère Sud.

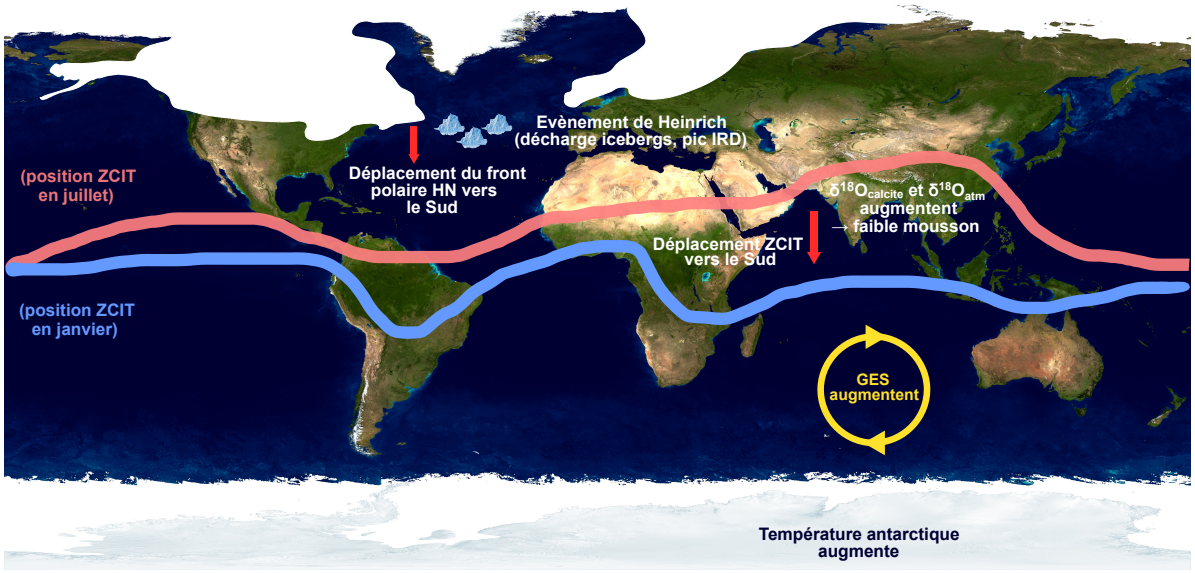



FIGURE 3.10 – Schéma synthétique des processus lors d'un évènement de Heinrich (dans le cas d'une augmentation de l'insolation de l'hémisphère Nord) avec tout d'abord la décharge d'icebergs dans l'océan Atlantique Nord, le déplacement vers le Sud du front polaire de l'hémisphère Nord et de la Zone de Convergence Intertropicale, l'augmentation du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques, l'augmentation du $\delta^{18}O_{atm}$, l'augmentation de la concentration des gaz à effet de serre et de la température antarctique.

## 3.8 Conclusions et perspectives

Les nouvelles mesures à haute résolution du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta O_2/N_2$ entre 153 et 375 ka permettent de compléter les données existantes à Dome C sur les 8 derniers cycles climatiques. La méthode de datation classique des carottes de glace basée sur le lien entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation au 21 juillet à 65°N présente un décalage de 5 ka principalement dû aux évènements de

Heinrich observés lors des terminaisons et à la complexité de la réponse du $\delta^{18}O_{atm}$ aux variations orbitales. Afin d'améliorer la chronologie actuelle AICC2012 en réduisant les incertitudes associées, j'ai développé une nouvelle méthode de datation des carottes de glace. Cette méthode se base sur les enregistrements de $\delta^{18}O_{atm}$ et de $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques qui partagent tous deux les mêmes variations orbitales et millénaires. Les variations orbitales sont notamment contrôlées par les modifications de l'insolation au 21 juillet à 65°N, et les variations millénaires (évènements de Heinrich) vont entraîner un déplacement de la Zone de Convergence Intertropicale vers le Sud provoquant une modification du cycle hydrologique des basses latitudes. L'alignement de ces deux enregistrements testé sur la dernière entrée en glaciation permet d'obtenir une nouvelle chronologie de NGRIP et de comparer l'enregistrement hautes latitudes de $\delta^{18}O$ de la glace avec celui moyennes latitudes du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes alpins. Les évènements de Dansgaard-Oeschger qui jusque là présentaient un décalage de plusieurs milliers d'années entre les deux enregistrements, apparaissent maintenant synchrones sur la nouvelle chronologie de NGRIP. Cette méthode d'alignement a également été appliquée sur la période 100-640 ka en définissant de nouveaux marqueurs utilisés pour obtenir une nouvelle chronologie de l'enregistrement de Dome C. Il en résulte une révision de la chronologie avec une réduction importante des incertitudes sur les derniers 450 ka par rapport à la chronologie AICC2012, et notamment lors du stade isotopique 11 (avec $\sim$2 ka contre $\sim$4 ka). En comparaison avec les nouvelles données sur la Terminaison 3, le $\delta^{18}O_{atm}$ peut également être utilisé pour étudier la séquence des évènements climatiques entre les hautes et basses latitudes.

Les résultats encourageants de cette nouvelle chronologie confortent son utilisation future pour la datation des carottes de glace. Cependant, il n'existe pas encore de preuves directes que le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta^{18}O_{calcite}$ des basses latitudes varient de manière similaire sur de longues échelles de temps et il manque une interprétation quantitative du $\delta^{18}O_{atm}$ en considérant l'évolution passée des flux d'oxygène et du fractionnement isotopique associé. C'est pourquoi dans les chapitres suivants nous aborderons l'intégration du $\delta^{18}O_{atm}$ et des processus de fractionnement associés dans un modèle climatique de complexité intermédiaire, couplé à un modèle de végétation détaillé, afin de réaliser des simulations permettant de quantifier les échanges passés des flux d'oxygène et les changements de la composition isotopique de l'$O_2$ associés à la biosphère terrestre.

# Chapitre 4

# Développement d'un couplage capable de simuler le $\delta^{18}O_{atm}$

## 4.1 Description du modèle de climat iLOVECLIM

iLOVECLIM est un modèle climatique de complexité intermédiaire qui se fonde sur des équations de la mécanique des fluides discrétisées sur une grille tridimensionnelle. Même si les équations sont simplifiées par rapport aux modèles de circulation générale, ce type de modèle permet de rendre compte des rétroactions entre les compartiments représentés (océan, atmosphère, végétation...). L'avantage de ce type de modèle est qu'il permet de réaliser des simulations de plusieurs milliers d'années en des temps humains raisonnables (1000 ans de simulation avec iLOVECLIM sont réalisés en 24h). Les modèles de circulation générale couplés océan-atmosphère (e.g. modèle couplé de l'IPSL) sont eux plus complexes et demandent un coût et un temps de calcul beaucoup plus important pour réaliser la même simulation (1000 ans de simulation en deux semaines avec un nombre important de processeurs). Le modèle iLOVECLIM est donc une bonne solution pour réaliser des simulations sur plusieurs cycles glaciaires-interglaciaires.

Le modèle iLOVECLIM est utilisé ici dans sa version 1.1.3, qui ne présente pas de différences majeures dans la physique de l'atmosphère et de l'océan avec la version LOVECLIM 1.2 décrite par Goosse et al. [2010]. Il se compose de plusieurs composantes principales que

sont l'atmosphère [Opsteegh et al., 1998], l'océan [Goosse and Fichefet, 1999], la végétation et la surface terrestre [Brovkin et al., 1997] décrites par la suite. D'autres composantes ont été rajoutées comme un modèle de calotte de glace [Roche et al., 2014], d'icebergs [Bügelmayer et al., 2015], de permafrost [Kitover et al., 2015] et de sédiments marins. Des développements supplémentaires ont également été réalisés afin d'ajouter au modèle la simulation des isotopes de l'oxygène de l'eau [Roche, 2013] ; [Roche and Caley, 2013] et du cycle du carbone dans les océans [Bouttes et al., 2015]. La spécificité de la version que j'ai développée est la possibilité d'utiliser le modèle de végétation dynamique CARAIB (incluant un cycle hydrologique et cycle du carbone) à la place de la composante de végétation VECODE. L'avantage de ce modèle est double. Il se compose de 26 PFTs (Plant Functional Types) au lieu des 2 PFTs existant dans VECODE, ce qui permet de reproduire de manière plus détaillée les changements de distribution de la végétation terrestre ainsi que les flux associés. Enfin, le pas de temps dans CARAIB est journalier alors qu'il est annuel dans VECODE.

***ECBilt*** est la composante atmosphérique, développée au Dutch Royal Meteorological Institute (KNMI) par Opsteegh et al. [1998]. Il s'agit d'un modèle quasi-géostrophique avec une grille de 5,6° de résolution en latitude et longitude et un pas de temps de 4 heures. ECBilt permet de représenter l'ensemble du cycle de l'eau avec l'évaporation, les précipitations et la condensation. L'atmosphère est subdivisée en trois niveaux verticaux à 800, 500 et 200 hPa avec le contenu en humidité calculé uniquement dans le premier niveau à 800 hPa (appelée couche humide au contraire des deux autres couches dites sèches) et représentatif de l'ensemble du contenu en humidité dans l'atmosphère. La température est calculée pour deux niveaux intermédiaires à 650 et 350 hPa. Les isotopes de l'eau peuvent être calculés dans ce modèle.

***CLIO*** est le modèle 3D de circulation global de l'océan fondé sur les équations de Navier-Stokes et développé par Goosse and Fichefet [1999]. Il possède une résolution horizontale de 3°x3° en latitude et longitude, 20 niveaux verticaux et une surface libre permettant de prendre en compte des apports en eau douce liés à la fonte des icebergs. CLIO utilise également une bathymétrie réaliste et les isotopes de l'eau sont considérés comme traceurs passifs. Les variables océaniques (e.g. la température et salinité de surface) sont calculées une fois par jour.

***VECODE*** est le modèle de végétation développé par Brovkin et al. [1997]. Il tourne sur la même grille que le modèle atmosphérique ECBilt mais permet de fractionner les cellules de la grille selon les changements de végétation. Il se subdivise en trois sous-modèles :

- un modèle de végétation qui utilise les variables bioclimatiques pour calculer la fraction de chaque PFT en équilibre avec le climat.
- un modèle biogéochimique qui calcule la productivité primaire nette (NPP pour Net Primary Productivity soit la différence entre la photosynthèse et la respiration autotrophe), l'affectation dynamique de la NPP et des réservoirs de carbone (dans les feuilles, les troncs et le sol).
- un modèle de végétation dynamique qui simule l'évolution de 2 PFTs que sont les arbres et l'herbe. Le sol dépourvu de végétation est aussi pris en compte en fonction de la réponse des températures et précipitations fournies par ECBilt.

Dans le cadre de cette étude, seules les composantes principales de ce modèle sont utilisées (Figure 4.1).

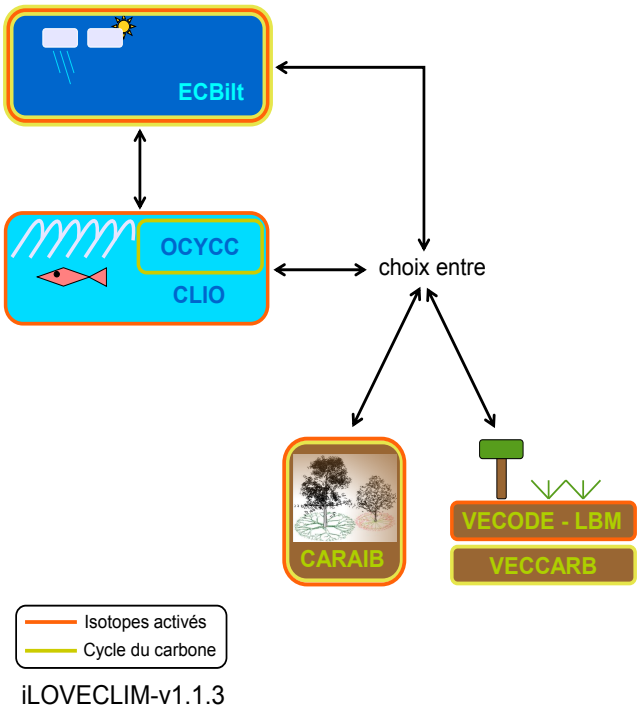



FIGURE 4.1 – Description des différentes composantes utilisées dans la version 1.1.3 du modèle iLOVECLIM.

## 4.2 Description du modèle de végétation CARAIB

CARAIB est un modèle global dynamique de végétation développé par Warnant et al. [1994] ; François et al. [1998] ; Otto et al. [2002] ; Laurent et al. [2008] ; Dury et al. [2011] et qui se compose de cinq différents modules décrits ci-dessous (Figure 4.2) permettant de calculer (1) le budget hydrologique, (2) la photosynthèse de la canopée (étage supérieur de la forêt) et la régulation des stomates, (3) l'affectation du carbone et la croissance des plantes, (4) la respiration hétérotrophe et la dynamique du carbone dans la litière (feuilles mortes et débris végétaux en décomposition qui recouvrent le sol) et dans le sol et (5) la distribution géographique des plantes. Ce modèle a été utilisé pour étudier le rôle de la végétation sur le cycle du carbone et pour reconstituer la distribution de la végétation à l'actuel [Warnant et al., 1994] ; [Nemry et al., 1996] ; [Gérard et al., 1999] ; [Laurent et al., 2008], au cours du Dernier Maximum Glaciaire, pendant l'Holocène [François et al., 1998] ; [François et al., 1999] ; [Otto et al., 2002] ; [Cheddadi et al., 2006] ; [Galy et al., 2008] ; [Henrot et al., 2009] ainsi qu'au Miocène [François et al., 2006] ; [Favre et al., 2007] ; [Henrot, 2010] ; [François et al., 2011] ; [Henrot et al., 2017].

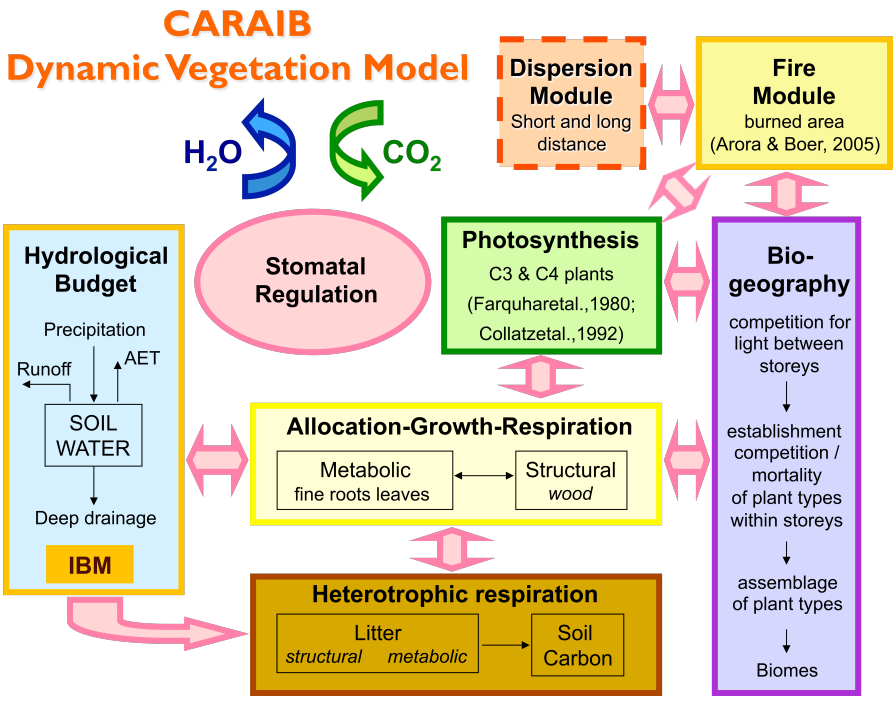



FIGURE 4.2 – Structure et principaux modules du modèle de végétation CARAIB [Minet et al., 2013].

***Le modèle hydrologique*** est utilisé pour calculer la quantité moyenne d'eau dans le sol au niveau des racines, le couvert de neige et les flux hydrologiques associés [Hubert et al., 1998] ; [François et al., 2006]. Ces valeurs sont calculées avec un pas de temps journalier. Pour cela, l'évolution de la quantité d'eau au niveau des racines est calculée pour l'ensemble des PFTs en considérant qu'ils partagent tous le même réservoir d'eau dans le sol. La profondeur des racines varie entre 0,7 et 2,5 m selon le type de végétation et la texture du sol. Les précipitations journalières sont séparées en deux contributions, neige et pluie, selon les valeurs minimales et maximales de température de l'air. Une fraction des précipitations peut être interceptée par le feuillage et être réévaporée sans toucher le sol. Cette fraction se calcule au travers du Leaf Area Index (LAI) et du ratio précipitation/évapotranspiration. La fraction d'eau de pluie qui atteint le sol est incorporée dans le réservoir d'eau du sol. On fait également l'hypothèse que l'eau du sol est draînée à la base des racines avec un taux égal à la conductivité hydrolique du sol calculée comme une fonction de la texture du sol paramétrisé par Saxton et al. [1986]. Lorsque le contenu d'eau dans le sol atteint la valeur de saturation, l'excès est évacué en ruissellement de surface. Le flux sortant d'eau restant dans le sol est la somme de la transpiration de la canopée et de l'évaporation du sol (calculé en fonction de l'évapotransipration potentielle et du contenu en eau dans le sol).

***Le module de photosynthèse de la canopée et de régulation des stomates*** est basé sur un modèle de plantes en C3 [Farquhar et al., 1980] et en C4 [Collatz et al., 1992]. Pour chaque PFT, la photosynthèse est calculée pour les feuilles au soleil et ombragées [De Pury and Farquhar, 1997]. La canopée est subdivisée en 2 niveaux d'épaisseur égale en terme de surface des feuilles, avec les niveaux supérieurs composés des feuilles des arbres et les niveaux inférieurs composés de l'herbe et des arbustes. La photosynthèse de l'herbe et des arbustes est par ailleurs limitée par la quantité de lumière transmise à travers la canopée de l'étage au-dessus. La conductance des stomates est calculée en utilisant la paramétrisation de Ball et al. [1987], modifée par Van Wijk et al. [2000] pour prendre en compte la dépendance à l'eau du sol.

***Le modèle d'affectation du carbone et de croissance des plantes*** attribue le produit de la photosynthèse aux différents réservoirs de carbone [Nemry et al., 1996] : métabolique (feuilles) et structurel (bois et racines). La séparation entre les différents réservoirs est spécifique à chaque

PFT et dépend des conditions environnementales [Otto et al., 2002]. Ce modèle permet aussi de calculer la respiration autotrophe et les flux de production associés à la litière.

***Le modèle de respiration hétérotrophe et de dynamique du carbone dans la litière*** permet de calculer l'évolution temporelle de la litière métabolique et structurelle, de même que les réservoirs en carbone du sol. La respiration hétérotrophe de chaque réservoir est fonction de la température, l'humidité du sol et du contenu en carbone de celui-ci [Warnant et al., 1994] ; [Nemry et al., 1996].

***Le module de distribution géographique des plantes*** est utilisé pour estimer la fraction occupée par chaque PFT pour chaque cellule de la grille. La fraction de couverture entre les PFTs pour chaque niveaux est fonction de la NPP des PFTs en question et permet d'obtenir l'assemblage de PFT pour chaque pixel. Il est également possible de regrouper les différents PFTs en grands biomes selon les caractéristiques de la végétation (PFT dominant et fraction occupée, NPP totale, LAI totale, LAI des arbres, ratio entre la NPP de l'herbe et la NPP des arbres). Les déserts correspondent aux zones ayant une valeur nulle de NPP pour tous les PFTs. Pour les déserts polaires et les zones de tundra, on utilise la valeur de degrés/jours nécessaires à la germination avec un seuil de température de 5°C (GDD5 [Otto et al., 2002]).

CARAIB se compose de 26 PFTs (Table 4.1) regroupant des plantes herbacées et arborées pouvant partager le même pixel. La classification actuelle est basée sur Popova et al. [2013] avec 15 PFTs arborées, 3 PFTs herbacées et 8 PFTs de type arbuste. Chaque PFT comprend les espèces qui partagent les mêmes attributs morphologiques (herbe, arbre, arbuste), phénologiques (feuilles décidues ou non), de mécanisme photosynthétique en C3 ou C4 et donc le même rôle dans un écosystème [Utescher et al., 2007]. Le couvert de végétation est mis à jour une fois par mois pour l'herbe et une fois par an pour les arbres. Le modèle calcule l'évolution temporelle pour chaque PFT des deux réservoirs de carbone dans la plante (le réservoir métabolique et la biomasse structurelle) et des trois réservoirs dans le sol (la litière métabolique et structurelle, le carbone organique du sol). L'actualisation des différents réservoirs se fait une fois par jour. La photosynthèse et respiration des plantes est toutefois calculée toutes les deux heures afin de prendre en compte les effets non-linéaires associés à leur variation au cours de la journée.

| | PFT name | Selected species or families belonging to the PFT |
|---|---|---|
| 1 | C3 herbs (humid) | *Poaceae* |
| 2 | C3 herbs (dry) | *Asteraceae* |
| 3 | C4 herbs | All C4 herbaceous plant |
| 4 | Broadleaved summergreen arctic shrubs | *Alnus viridis, Arctostaphylos alpina, Betula nana, Hippophae rhamnoides, Salix nana* |
| 5 | Broadleaved summergreen boreal/temperate cold shrubs | *Frangula alnus, Lonicera, Prunus, Rubus, Sambucus, Sorbus, Vaccinium, Viburnum* |
| 6 | Broadleaved summergreen temperate warm shrubs | *Berberis vulgaris, Crataegus, Euonymus europaeus, Genista, Rhamnus cathartica* |
| 7 | Broadleaved evergreen boreal/temperate cold shrubs | *Arctostaphylos uva-ursi, Calluna vulgaris, Daphne* |
| 8 | Broadleaved evergreen temperate warm shrubs | *Buxus sempervirens, Hedera helix, Ilex aquifolium, Ligustrum vulgare, Viscum* |
| 9 | Broadleaved evergreen xeric shrubs | *Cistus, Myrtus* |
| 10 | Subdesertic shrubs | *Nitraria* |
| 11 | Tropical shrubs | *Aegiceras corniculatum, Cassine, Ceriops tagal, Kandelia obovata, Rhizophora mucronata* |
| 12 | Needleleaved evergreen boreal/temperate cold trees | *Abies, Cupressaceae, Picea abies, Picea omorika, Pinus sylvestris* |
| 13 | Needleleaved evergreen temperate cool trees | *Chamaecyparis, Pinus nigra, Platycladus orientalis, Pseudotsuga menziesi, Sequoia sempervirens, Taxus, Tsuga diversifolia* |
| 14 | Needleleaved evergreen drought-tolerant trees | *Cedrus* |
| 15 | Needleleaved evergreen drought-tolerant thermophilous trees | *Cupressus, Pinus halepensis, Pinus pinaster, Tetraclinis* |
| 16 | Needleleaved evergreen subtropical trees | *Athrotaxis, Cathaya, Keteleeria, Sciadopitys, Taiwania, Torreya* |
| 17 | Needleleaved summergreen boreal/temperate cold trees | *Larix* |
| 18 | Needleleaved summergreen subtropical swamp trees | *Glyptostrobus, Taxodium* |
| 19 | Broadleaved evergreen drought-tolerant trees | *Arbutus, Phillyrea, Quercus ilex, Quercus suber* |
| 20 | Broadleaved evergreen drought-tolerant thermophilous trees | *Olea europaea, Pistacia* |
| 21 | Broadleaved evergreen subtropical trees | *Alangium, Castanopsis, Fatsia japonica, Gordonia, Lindera, Neolitsea, Reevesia* |
| 22 | Broadleaved summergreen boreal/temperate cold trees | *Alnus, Betula, Corylus avellana, Populus, Quercus robur, Tilia, Salix* |
| 23 | Broadleaved summergreen temperate cool trees | *Acer, Aesculus glabra, Carpinus betulus, Fagus sylvatica, Fraxinus excelsior, Populus cathayana, Quercus castaneifolia, Quercus lobata, Tilia cordata, Tilia platyphyllos, Ulmus* |
| 24 | Broadleaved summergreen temperate warm trees | *Castanea, Craigia, Diospyros lotus, Halesia, Juglans, Ostrya, Quercus pubescens, Quercus benthamii* |
| 25 | Broadleaved raingreen tropical trees | *Adansonia, Bursera, Dendropanax, Gironniera, Punica* |
| 26 | Broadleaved evergreen tropical trees | *Amanoa, Bursera, Cupania, Monotes, Sterculia* |

TABLE 4.1 – Classification des 26 PFTs et principales espèces associées [Henrot et al., 2017].

## 4.3 Interaction entre le modèle de climat et de végétation

### 4.3.1 Procédure de couplage

Le modèle climatique de complexité intermédiaire iLOVECLIM intègre plusieurs composantes plus ou moins détaillées. Le modèle actuel de végétation VECODE ne considère que 2 types de plantes et ne permet donc pas une représentation précise des différents flux associés aux processus de photosynthèse et de respiration. Afin d'étudier les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ au cours du temps, il est nécessaire d'avoir des estimations correspondant aux différents processus associés à la biosphère terrestre. Pour cela, le modèle de végétation CARAIB qui considère 26 PFTs permet de quantifier de manière plus précise que VECODE les changements de distribution et de productivité de la biosphère. Cela permet par la suite l'intégration d'un nouveau modèle quantifiant l'évolution de la production d'oxygène lors de la photosynthèse et de séparer les différents flux d'oxygène lors de la respiration. Les différentes valeurs de fractionnement isotopique associées aux processus de consommation de l'oxygène ainsi que la valeur des isotopes dans les feuilles sont calculées en se basant sur les résultats obtenus avec le modèle de végétation.

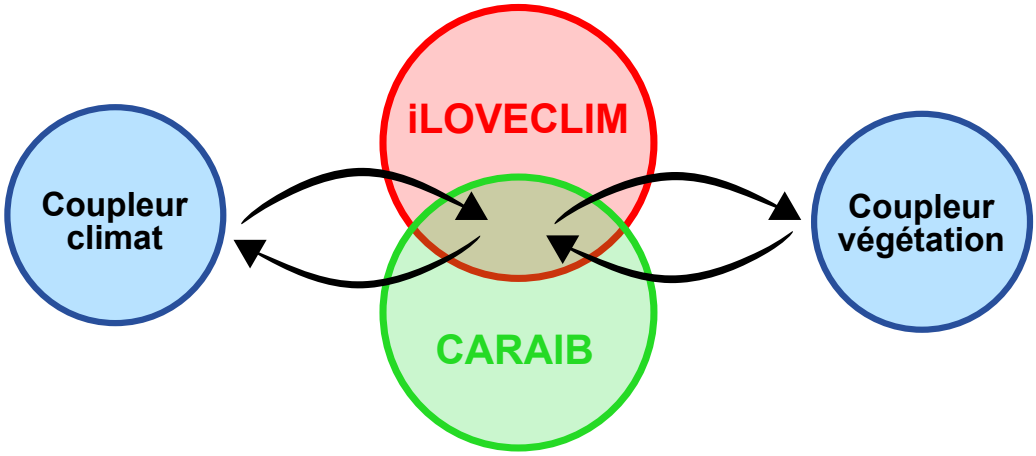



FIGURE 4.3 – Schéma simplifié du couplage du modèle de climat et de végétation.

L'objectif est de mettre en lien le modèle climatique et le modèle de végétation afin de leur fournir à chacun les paramètres dont ils ont besoin. J'ai donc développé des modules appelés "coupleurs" et qui permettent de transmettre d'un modèle à l'autre les variables souhaitées avec

la bonne résolution temporelle et spatiale (Figure 4.3). Le code principal de CARAIB a également dû être réorganisé de façon à pouvoir être appelé par le code d'iLOVECLIM. Cela passe par la séparation du code en trois grandes parties : (1) initialisation, (2) calculs, (3) écriture des résultats et finalisation. Ces portions de code sont ensuite appelées dans le code principal d'iLOVECLIM avec une routine journalière pixel par pixel pour tous les calculs effectués par CARAIB.

#### 4.3.1.1 Paramètres climatiques

Afin d'estimer la distribution de la végétation, les flux de carbone et autres, le modèle CARAIB a besoin de plusieurs variables climatiques que sont la température moyenne de l'air, l'amplitude journalière des températures, l'humidité relative de l'air, les précipitations, la vitesse du vent et le pourcentage d'ensoleillement. Généralement ces variables sont obtenues à partir de bases de données climatologiques (e.g. à partir du Climatic Research Unit) ou de sorties de modèle de circulation générale en valeurs mensuelles. Elles sont ensuite interpolées à l'échelle journalière à l'aide d'un générateur stochastique intégré dans CARAIB [Hubert et al., 1998]. J'utilise ici le modèle d'atmosphère ECBilt pour fournir ces mêmes variables directement à l'échelle journalière. La boucle temporelle du code principal de CARAIB étant définie sur 365 jours et celle du code d'ECBilt sur 360 jours, les variables climatiques ne peuvent pas être transmises directement. Un générateur de nombres aléatoires est donc utilisé afin de dupliquer aléatoirement 5 jours dans l'année pour arriver à 365 jours. Ces paramètres climatiques sont transmis à CARAIB avec une résolution de 5,6x5,6° en latitude et longitude. Le pourcentage d'ensoleillement n'étant pas directement calculé par ECBilt, celui-ci est dérivé de la couverture nuageuse calculée par le modèle. De plus, l'amplitude journalière des températures (température maximale - température minimale) n'étant pas calculée par le modèle, les mêmes valeurs d'amplitude moyenne de température entre 1961-2012 obtenue par le CRU sont utilisées quelque soit l'année simulée. Les paramètres orbitaux (obliquité, excentricité et précession) de même que la concentration en $CO_2$ atmosphérique sont fixés dans CARAIB lors des simulations à l'équilibre (Section 4.3.2).

#### 4.3.1.2 Transfert de la végétation

iLOVECLIM se compose d'un modèle de végétation et d'un modèle de surface séparé. Le modèle de végétation simple VECODE est remplacé par le modèle détaillé CARAIB mais le modèle de surface est conservé. Celui-ci permet notamment le calcul de l'évaporation, de l'humidité du sol, du ruissellement, des décharges des rivières... L'albédo de surface et la valeur d'humidité maximale dans le sol sont estimés à partir du type de végétation, plus spécifiquement grâce à la proportion de végétation de type herbacée, arborée et désertique. Le modèle CARAIB simule la fraction occupée par chaque PFT pour chaque pixel et permet donc de regrouper les PFTs de 1 à 11 pour avoir la fraction occupée par les plantes herbacés (les arbustes/buissons étant considérés comme faisant partie des herbacés) et les PFTs de 12 à 26 pour la fraction occupée par les plantes arborées (Table 4.1). La fraction désertique de chaque pixel est calculée comme la différence du total du pixel (soit 1) avec les fractions des plantes arborées et herbacées.
Le couplage de CARAIB vers iLOVECLIM aurait pu se faire directement par le transfert de l'albédo de surface calculée par CARAIB selon le type de végétation. Cependant, les résultats incohérents obtenus avec cette méthode nous ont obligé à passer par la fraction de végétation afin de recalculer l'albédo. Le couplage pourrait être complété par la suite par le transfert de l'indice de surface foliaire (Leaf Area Index) et de l'évapotranspiration.

### 4.3.2 Paramétrisation pour des simulations à l'équilibre

Les simulations de contrôle au pré-industriel avec une résolution de 5,6° utilisent les mêmes paramètres orbitaux que ceux utilisés pour les expériences PMIP2 (Paleoclimate Modelling Intercomparison Project [Braconnot et al., 2007]) avec des valeurs de 0,016724 pour l'excentricité, 23,446° pour l'obliquité et 102,04° pour la précession. La constante solaire est également fixée à 1365 W/m². Les calottes de glace, la topographie et le masque continent-océan sont dérivés des observations actuelles. La concentration en $CO_2$ est quant à elle fixée à 280 ppm.

Pour les simulations du Dernier Maximum Glaciaire il y a 21 ka, les paramètres orbitaux sont de 0,018994 pour l'excentricité, 22,949° pour l'obliquité et 114,42° pour la précession (PMIP2 [Braconnot et al., 2007]). La constante solaire est gardée identique au pré-industriel avec 1365

W/m². La distribution des calottes de glace est prise d'après les simulations de Ganopolski and Calov [2011] et le masque continent-océan est une adaptation dérivée de ICE-5G de Peltier [2004]. La concentration en $CO_2$ est plus faible que celle au pré-industriel avec 185 ppm.

Les simulations du dernier interglaciaire (130 ka) utilisent les forçages orbitaux suivants (d'après le protocole PMIP3) : 0,038209 pour l'excentricité, 24,242° pour l'obliquité et 228,32° pour la précession. La constante solaire est identique au pré-industriel avec 1365 W/m². La bathymétrie et les calottes de glaces sont initiées comme celles du pré-industriel. La concentration en $CO_2$ est fixée à 257 ppm (en suivant la valeur prise à 130 ka dans le cadre des expériences PMIP3).

A partir des paramètres climatiques et du masque terre-océan défini pour chaque période, il est ensuite possible de générer le fichier environnemental sur la même grille qu'iLOVECLIM, calculant entre autre la valeur de la texture du sol (i.e. le pourcentage de silt, d'argile et de sable) nécessaires aux calculs du module hydrologique de CARAIB. La distribution des différents PFTs est ensuite calculée avec la même résolution de 5,6° et représente la végétation potentielle en équilibre avec le climat. Les zones urbaines et l'occupation humaine des sols ne sont pas pris en compte. De plus, il a été choisi de ne pas représenter l'Antarctique (bien que les données climatiques soient disponibles sur cette zone) du fait de l'absence de végétation aux échelles de temps étudiées ici.

### 4.3.3 Paramétrisation pour des simulations transitoires

Pour les simulations transitoires les paramètres orbitaux et la concentration en $CO_2$ utilisés par le modèle atmosphérique sont directement transmis au modèle de végétation afin d'assurer la cohérence entre les modèles sur plusieurs milliers d'années. Des pointeurs ont été définis dans ECBilt afin de transmettre ces variables à CARAIB chaque année. Dans le cas d'une simulation transitoire de 130 à 100 ka, celle-ci est initialisée à partir d'une simulation à l'équilibre du dernier interglaciaire en gardant les mêmes topographie et masque continent-océan. La partie atmosphérique du modèle couplé utilise des forçages (gaz à effet de serre, insolation et calottes de glace) accélérés par un facteur 10.

Le fichier environnemental généré en pré-processing et utilisé par le modèle hydrologique de

CARAIB n'a ici pas été adapté pour être modifié au cours de la simulation selon les changements de topographie. J'ai donc choisi de fixer ce fichier comme défini lors d'une simulation à l'équilibre pour le dernier interglaciaire.

## 4.4 Validation du couplage au pré-industriel

Afin de vérifier les résultats obtenus à partir du nouveau modèle couplé, une comparaison est réalisée avec le modèle CARAIB seul. Cela permet notamment de vérifier que les modifications effectuées dans la structure du code principal de CARAIB ne modifient pas les résultats. Pour cela, CARAIB est forcé dans sa version d'origine avec les valeurs journalières des paramètres climatiques (température de l'air, amplitude de température, humidité, précipitations, vitesse du vent et pourcentage d'ensoleillement) identiques à celles utilisées pour une simulation couplée avec iLOVECLIM au pré-industriel.

Si l'on s'intéresse aux différences de distribution de la végétation et de productivité de carbone entre la version couplée et offline à partir de la moyenne réalisée sur les 100 dernières années de la simulation, on ne constate qu'une différence très négligeable entre les deux. La valeur globale de GPP et de NPP sont respectivement de 158,623 GtC/an et 59,928 GtC/an pour la version couplée et de 158,626 GtC/an et 59,929 GtC/an pour la version offline. La carte des anomalies de GPP présentée ci-après (Figure 4.4) traduit cette très faible différence des valeurs calculées pour les deux versions. Le stock total de carbone (végétation et sol) est lui estimé à 2487,62 GtC et 2487,63 GtC pour le modèle couplé et offline respectivement, soit quasiment identique. Quant à la distribution de la végétation, celle-ci est représentée à la fin de la simulation pour les deux cas (Figure 4.5) et montre que pour la version couplée comme pour la version offline, les PFTs simulés sont identiques. On retrouve une distribution de la végétation avec des zones de toundra, semi-désertiques et de forêts boréales aux hautes latitudes de l'hémisphère Nord, une végétation de type forêt tempérée sur les régions de l'Amérique du Nord, de l'Europe et de l'Asie avec des zones de forêt ouverte ou plus arbustive. Au niveau de la zone équatoriale (Amérique du Sud, Afrique du Sud et Indonésie), on observe la présence de forêts tropicales décidues et de forêts tropicales humides.
La très faible différence entre les résultats des deux modèles confirme ainsi que les modifica-

tions apportées au code lors du couplage n'ont un impact que négligeable sur les résultats de CARAIB. Malgré des recherches pour comprendre l'origine cette différence, celle-ci n'a pas pu être mise en évidence.

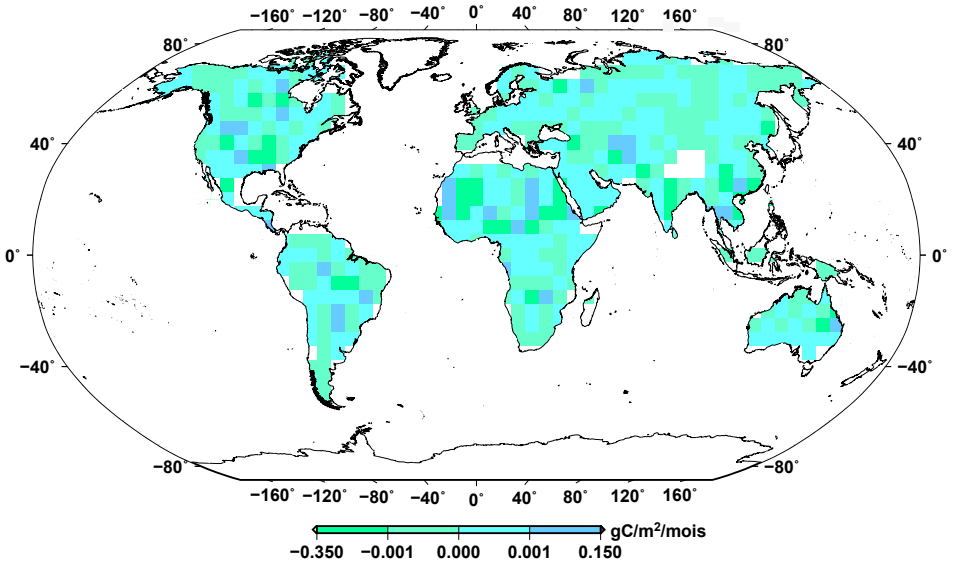



FIGURE 4.4 – Carte d'anomalie de la GPP obtenue entre le modèle couplé et le modèle de végétation seul forcé par le climat.

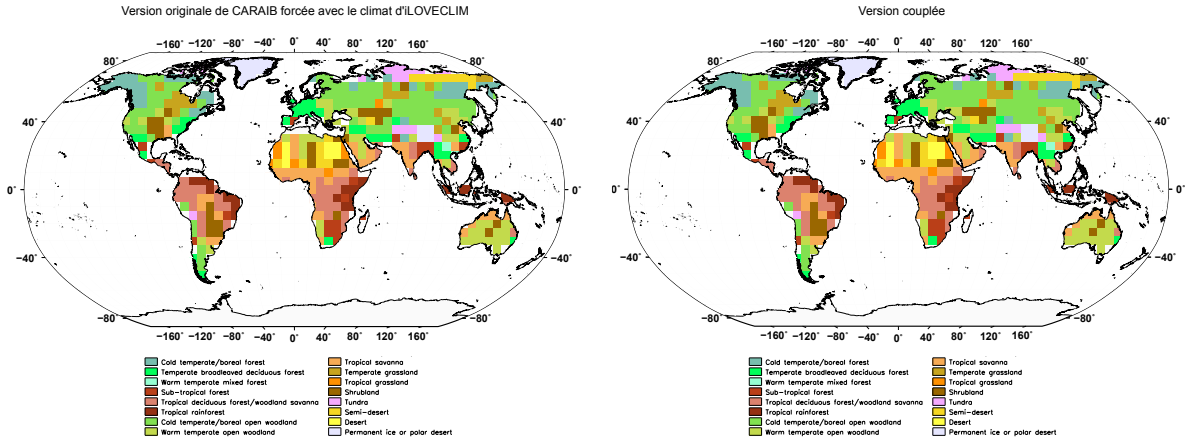



FIGURE 4.5 – Comparaison de la distribution de la végétation obtenue dans deux cas : à gauche avec le modèle CARAIB forcé avec le climat d'iLOVECLIM et à droite avec le modèle couplé.

## 4.5 Implémentation des isotopes de l'oxygène atmosphérique

Le $\delta^{18}O_{atm}$ rend compte des variations du cycle hydrologique des basses latitudes au travers des modifications globales de la biosphère, du niveau marin et du cycle de l'eau. La composition isotopique est contrôlée par plusieurs processus nécessitant de connaître (1) la distribution de la composition isotopique de la vapeur d'eau et de l'eau du sol (et donc de l'eau météorique), (2) les paramètres climatiques comme la température et l'humidité (3) la distribution de la végétation et les flux d'oxygène associés à la photosynthèse et (4) les valeurs de fractionnement isotopique de l'oxygène associés aux différents processus de respiration. Les équations décrites dans le Chapitre 1 basées notamment sur les études de Craig and Gordon [1965] ; Lloyd and Farquhar [1994] et Hoffmann et al. [2004], allant du calcul de la température et de l'humidité au niveau des stomates des feuilles jusqu'à l'estimation des flux d'oxygène et du $\delta^{18}O_{feuille}$ en passant par les facteurs de fractionnement de l'oxygène selon les processus de respiration ont donc été intégrées dans le code de CARAIB (Figure 4.6).
Le modèle de végétation permet de récupérer les différentes valeurs de fraction des PFTs et de GPP pour chaque pixel, utilisées pour convertir les flux de carbone en flux d'oxygène produit par la biosphère terrestre.

Les paramètres climatiques, i.e. la température de l'air et l'humidité de l'air, sont transmis par le modèle de climat de la même façon que pour le couplage avec CARAIB. Cela permet d'avoir ces valeurs de façon journalière et pour chaque pixel. Dans ECBilt, l'humidité est calculée dans la première couche de la troposphère comme étant la moyenne de l'ensemble de l'atmosphère. Pour estimer la valeur au niveau de la surface de la feuille, celle-ci doit être corrigée de l'amplitude journalière des changements de température. Pour cela, l'humidité de l'air est réduite de 15 % en suivant Hoffmann et al. [2004]. La température moyenne de l'air est augmentée en utilisant l'amplitude des températures minimales et maximales de la journée puisque la photosynthèse se déroule en journée avec un production maximum au milieu de la journée. Les valeurs journalières des isotopes de la vapeur d'eau $\delta^{18}O_{vapeur}$ et de l'eau du sol $\delta^{18}O_{eaudusol}$ sont également transmises par ce même coupleur au modèle de calcul des isotopes de l'oxy-

gène atmosphérique, ceux-ci étant nécessaires au calcul du $\delta^{18}O_{feuille}$. En effet, au cours du processus de photosynthèse, les isotopes de l'eau dans le sol et dans la vapeur d'eau (ici dans la première couche de la troposphère) sont utilisés par les plantes et leurs compositions isotopiques sont transmises à celle des isotopes de l'eau dans les feuilles. Ce modèle des isotopes de l'oxygène atmosphérique inclut également une estimation du fractionnement de l'oxygène associé aux différents processus de respiration de la biosphère terrestre. Par la suite, la valeur du $\varepsilon_{cinétique}$ correspondant à l'enrichissement du $H_2^{18}O/H_2^{16}O$ lors des échanges diffusifs des molécules d'eau en dehors des stomates et utilisé dans le calcul du la composition isotopique de l'eau dans les feuilles est fixé à 20 ‰ en suivant l'étude de Reutenauer et al. [2015].

Toutefois, comme expliqué précédemment, seule la composante liée à la biosphère terrestre est ici prise en compte dans le calcul du $\delta^{18}O_{atm}$. Les processus associés à la biosphère océanique ne sont pas inclus dans le modèle et feront l'objet de développements futurs.

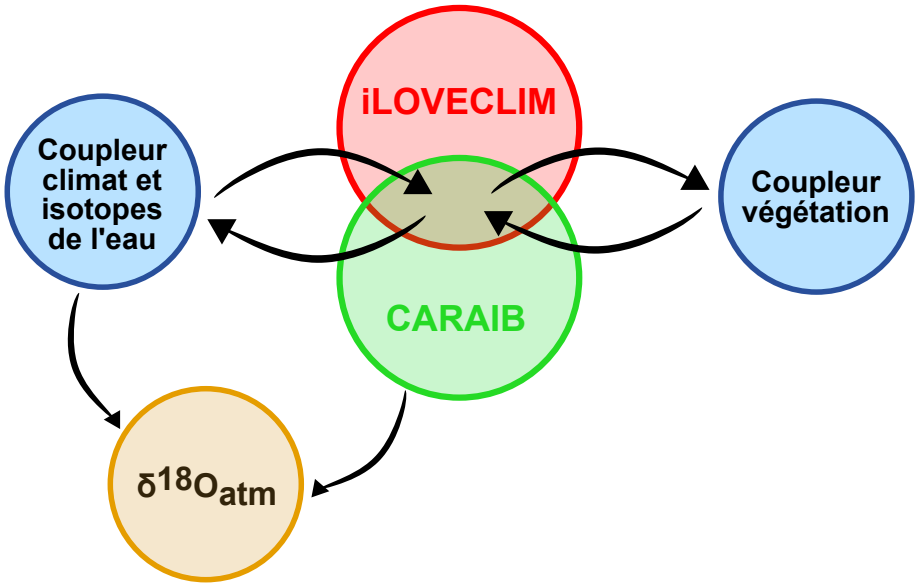



FIGURE 4.6 – Schéma simplifié du couplage avec l'intégration du $\delta^{18}O_{atm}$.

# Chapitre 5

# Modélisation des isotopes de l'oxygène atmosphérique à l'échelle orbitale et millénaire

Ce chapitre présente les résultats d'un article en préparation abordant les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ à l'échelle orbitale via des outils de simulation du climat en comparaison à des données de carottes de glace. Afin de vérifier que les changements du cycle hydrologique des basses latitudes contrôlent les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ et que celui-ci peut être utilisé comme un indicateur quantitatif de ces variations, il est nécessaire de comprendre les facteurs qui entrent en jeux. Pour quantifier les variations passées du $\delta^{18}O_{atm}$, il faut arriver à quantifier les flux d'oxygène associés à la biosphère terrestre. Cela passe notamment par des expériences de modélisation comme celles de Hoffmann et al. [2004] ; Landais et al. [2007a] ; Reutenauer et al. [2015] permettant d'estimer la productivité de la biosphère terrestre ainsi que la composition isotopique de l'eau dans les feuilles. La méthode utilisée jusqu'à présent limite cependant l'interprétation des résultats puisque ces études sont basées sur de la modélisation dite "offline", n'intégrant donc pas les rétroactions entre les différentes composantes du modèle comme un changement de végétation sur le climat. De plus, les calculs des flux d'oxygène et de sa composition isotopique étaient également fait en offline. Suite au développement effectué (présenté dans le chapitre précédent et qui combine le modèle de climat iLOVECLIM, le modèle de végétation CARAIB et l'estimation des flux d'oxygène associés à la photosynthèse et respiration ainsi que des fac-

teurs de fractionnement de l'oxygène) j'ai pu réaliser une estimation du $\delta^{18}O_{atm}$ au cours du pré-industriel et du Dernier Maximum Glaciaire (DMG) il y a 21 ka.

Une seconde partie s'intéressera aux variations millénaires du $\delta^{18}O_{atm}$ lors de la simulation d'un évènement de Heinrich idéalisé dans le modèle, en comparaison à différentes données paléoclimatiques.

## 5.1 Article en préparation : Model-based estimation of atmospheric oxygen isotopic composition between the Last Glacial Maximum and the Pre-Industrial

# Model-based estimation of atmospheric oxygen isotopic composition between the Last Glacial Maximum and the Pre-Industrial

Thomas Extier[1], Didier M. Roche[1,2], Louis François[3], Amaelle Landais[1]

[1] Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, LSCE/IPSL, CEA-CNRS-UVSQ, Université Paris-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette.

[2] Earth and Climate Cluster, Faculty of Earth and Life Sciences, Vrije Universiteit Amsterdam, De Boelelaan 1085, 101 HV Amsterdam.

[3] Unité de Modélisation du Climat et des Cycles Biogéochimiques, UR-SPHERES, Université de Liège, Liège, Belgium.

*Correspondence to:* Thomas Extier (thomas.extier@lsce.ipsl.fr)

## Abstract

The isotopic composition of atmospheric oxygen trapped in ice core, i.e. $\delta^{18}O_{atm}$, is influenced by past variations of the sea level, water cycle and biosphere productivity. Over the last 800 ka, the $\delta^{18}O_{atm}$ measured in EPICA Dome C ice core shows orbital and millennial variations which present similarities with the low latitude hydrological cycle variations observed in the $\delta^{18}O_{calcite}$ of the East Asian speleothems. There is however a lack of quantitative interpretation of the $\delta^{18}O_{atm}$ which depends on the past evolution of oxygen fluxes and associated isotopic fractionation. We present here the first step for a global estimation of $\delta^{18}O_{atm}$ over glacial-interglacial cycles through the implementation of the oxygen isotopes in a global climate model. The strategy is the following: (1) coupling between the climate model iLOVECLIM and the vegetation model CARAIB, (2) computation of the oxygen fluxes associated with terrestrial photosynthesis and respiration processes, (3) estimation of the isotopic composition of the oxygen in leaf water and (4) estimation of the oxygen fractionation during oxygen uptake. Using implementation of CARAIB in iLOVECLIM, results in total modelled carbon stock is reduced by a factor 2 between the pre-industrial and the LGM. Our model, taking only into account the effect of terrestrial biosphere, is also able to explain a $\delta^{18}O_{atm}$ decrease of 1.25 ‰ between the LGM and the pre-industrial, mainly driven by changes in the hydrological cycle. This decrease is also consistent with the ~1 ‰ decrease measured in high resolution ice core record.

## 1 Introduction

The isotopic composition of atmospheric $O_2$, noted hereafter $\delta^{18}O_{atm}$, is a complex tracer driven by biological (photosynthesis and respiration) and hydrological (isotopic composition of water consumed by photosynthesis) processes (Bender et al., 1994). Over the last 800 ka (thousands of years before present), the $\delta^{18}O_{atm}$ variations present high similarities to the precession signal or mid-June 65°N insolation (Jouzel et al., 1996; Petit et al., 1999; Dreyfus et al., 2007; Landais et al., 2010). It also shows rapid millennial variability superimposed to orbital scale variations (Landais et al., 2007a; Severinghaus et al., 2009).

It has been proposed that the $\delta^{18}O_{atm}$ signal measured in ice core results in a change in the ratio of terrestrial to oceanic biosphere productivity: the $\delta^{18}O$ of $O_2$ produced by terrestrial photosynthesis is indeed higher than the $\delta^{18}O$ of $O_2$ produced by oceanic biosphere productivity (Malaizé et al., 1999; Hoffmann et al., 2004). Recent estimate of high fractionation of oxygen during marine respiration however challenged this view (Luz et al., 2011). In parallel, the strong correlation observed between East Asia $\delta^{18}O_{calcite}$ and $\delta^{18}O_{atm}$ records over the last 640 ka suggests that the driver of $\delta^{18}O_{atm}$ variations may better be the low latitude hydrological cycle (Extier et al., 2018): a decrease in $\delta^{18}O$ of meteoric water induced by intense rain (e.g. strong monsoon) will lead to a decrease of $\delta^{18}O$ of $O_2$ produced by photosynthesis. A similar interpretation was suggested for the millennial timescale with a correlation between positive excursion of $\delta^{18}O_{atm}$ and Weak Monsoon Interval (Severinghaus et al., 2009; Landais et al., 2010; Seltzer et al., 2017).

To physically test the different hypotheses and decipher the respective influences on the $\delta^{18}O_{atm}$ and ultimately understand the causes for its millennial and orbital variations, it is expedient to implement all fractionation processes in the oxygen cycle within an Earth system model. It requires the inclusion of a full water cycle and a biosphere model to evaluate oxygen fluxes associated with photosynthesis and respiration. Previous studies already proposed an integrated modelling of $\delta^{18}O_{atm}$ using outputs of General Circulation Models. The first one was proposed by Hoffmann et al. (2004) for the present-day $\delta^{18}O_{atm}$. These authors used outputs of atmospheric, vegetation and ocean productivity models as well as offline calculation of oxygen fluxes and oxygen fractionation to match the measured $\delta^{18}O_{atm}$ for present-day. Landais et al. (2007b) used a similar approach with a more recent vegetation model, added the $\Delta^{17}O$ of $O_2$ fractionation and gave estimates of $\delta^{18}O_{atm}$ and $\Delta^{17}O$ of $O_2$ for both present-day and Last Glacial Maximum (LGM). Reutenauer et al. (2015) extended this study to the millennial variability of the last glacial period during a Heinrich event. In parallel, Blunier et al. (2002, 2012) used similar formulation of oxygen fractionation processes to link the triple isotopic composition of oxygen to biosphere productivity albeit with very large uncertainties on

the reconstruction. All these previous attempts were based on steady state simulation, preventing any assessment of the role of the interaction between climate and vegetation in transient climate evolution. Moreover, in these previous evaluation of the $\delta^{18}O_{atm}$ signal, the calculation of oxygen fluxes and isotopic composition was done offline. While this is not a major problem when running the model at steady state for a given period, it poses severe limitations when studying glacial-interglacial cycle climate variability and its impact on $\delta^{18}O_{atm}$.

We present here the first step towards a global estimation of past variations of the $\delta^{18}O_{atm}$. This approach combines (1) the coupling between the intermediate complexity climate model iLOVECLIM able to run several climatic cycles and the detailed vegetation model CARAIB, (2) an estimation of the oxygen fluxes associated with photosynthesis and respiration processes, (3) a calculation of the isotopic composition of the oxygen in leaf water ($\delta^{18}O_{leaf}$) and (4) an estimation of the oxygen fractionation during oxygen uptake. With this new coupled model we can more precisely quantify past changes in $\delta^{18}O$ of $O_2$ exchanged with terrestrial vegetation over the pre-industrial and the Last Glacial Maximum.

## 2 Method

### 2.1 Main contributions to the $\delta^{18}O_{atm}$ and associated fractionation processes

$\delta^{18}O_{atm}$ is mainly driven by fluxes between atmosphere and biosphere, the incoming atmospheric flux being photosynthesis. It has been shown that photosynthesis produces oxygen with almost the same isotopic composition than the $\delta^{18}O$ of water consumed by the plant (Guy et al., 1993; Eisenstadt et al., 2010) so that $\delta^{18}O$ of oxygen produced by photosynthesis is close to $\delta^{18}O_{leaf}$ (the global isotopic composition of leaf water) for the terrestrial biosphere and to $\delta^{18}O_{mar}$ (the global isotopic composition arising from marine biosphere) in the ocean. While $\delta^{18}O_{mar}$ is not showing spatial and temporal variations larger than a few permil, $\delta^{18}O_{leaf}$ is expected to exhibit much higher variations (Hoffman et al., 2004; Luz and Barkan, 2011). $\delta^{18}O_{leaf}$ is controlled by $\delta^{18}O$ of meteoric water consumed by plants and relative humidity near the surface of the leaf following Craig & Gordon (1965). $\delta^{18}O$ of meteoric water is exhibiting a significant decrease by more than 15 ‰ over vegetated areas from low to high latitudes because of water mass distillation during current climate state (Araguás-Araguás et al., 1996). When entering a glacial climate from an interglacial, the vegetation cover decreases in the high latitudes hence increasing the average $\delta^{18}O$ of meteoric water consumed by plants. In parallel, climatic changes are associated with changes in humidity and a drier atmosphere leads to an increase in $\delta^{18}O_{leaf}$ and hence of $\delta^{18}O$ of $O_2$ produced by photosynthesis (since the oxygen produced has the same isotopic composition than the oxygen consumed). It is thus essential to properly know the spatial and temporal

evolution of $\delta^{18}O$ of meteoric water and of relative humidity to predict the evolution of $\delta^{18}O$ of $O_2$ due to photosynthesis.

Oxygen consumption by the biosphere can be done through several pathways, the main ones under consideration being Mehler reaction, photorespiration, dark respiration in soil and leaves. These three mechanisms are associated with very different fractions of the oxygen respiratory fluxes (i.e. 0.1 for Mehler reaction, 0.3 for photorespiration, 0.44 for respiration in soil and 0.16 for dark respiration in leaves; present-day values from Landais et al., 2007b). The proportion of Mehler reaction in the total oxygen consumption flux is expected to be the same for all plants so that the influence of this oxygen uptake process should not affect much $\delta^{18}O_{atm}$. Conversely, only C3 plants are doing photorespiration and C4 plants are expected to be more important in an environment with less $CO_2$. Thus the distribution of the different plant types will have an important impact on the calculated evolution of $\delta^{18}O_{atm}$ due to oxygen uptake fluxes. Consequently, modelling $\delta^{18}O$ of $O_2$ requires a detailed estimation of the oxygen fluxes considering a significant number of plant functional types (PFT).

In this study, we have decided to start by modelling only the terrestrial contribution to the $\delta^{18}O_{atm}$ for the following reasons. First, as mentioned above, $\delta^{18}O$ of leaf water is exhibiting much larger temporal and spatial variations than the $\delta^{18}O$ of the ocean. The second reason is related to the strong temporal changes in C3 vs C4 ratio with time when $CO_2$ and temperature change over the succession of glacial to interglacial periods (François et al., 1998, 1999). The C3 vs C4 ratio will strongly modify the isotopic composition of oxygen during oxygen uptake by the terrestrial biosphere. On the other hand no major change is expected in the fractionation coefficients associated with oxygen uptake for the marine photosynthesis. Third, the oxygen fluxes exchanged with the terrestrial biosphere are larger than those exchanged with the oceanic biosphere (16.7 vs 7.61 $PmolO_2$/year, Hoffman et al., 2004; Bender et al., 1994). Finally, the link proposed between $\delta^{18}O_{calcite}$ of East-Asian speleothems and $\delta^{18}O_{atm}$ in previous studies (Wang et al., 2008; Severinghaus et al., 2009; Extier et al., 2018) implies a process through the terrestrial biosphere. A change in $\delta^{18}O$ of meteoric water would affect both $\delta^{18}O_{calcite}$ in East Asian region and $\delta^{18}O_{leaf}$ in vegetated areas with strong photosynthetic flux (i.e. at low latitudes) and hence $\delta^{18}O_{atm}$.

## 2.2 Model description

### 2.2.1 iLOVECLIM Earth system model

The intermediate complexity model iLOVECLIM, here in version 1.1.3, is a development branch (code fork) of the LOVECLIM model in version 1.2 described in Goosse et al. (2010). iLOVECLIM does not present major differences in the physics of the atmosphere and ocean

compared to LOVECLIM. However, numerous additional developments have been made like the oceanic carbon cycle (Bouttes et al., 2015), a permafrost model (Kitover et al., 2015), an alternative ice sheet model (Roche et al., 2014), the reinstatement of the original iceberg model (Bügelmayer et al., 2015) and the water isotope cycle development (Roche, 2013; Roche and Caley, 2013). The specificity of the version developed in this work is the possibility to switch-off the terrestrial biosphere component VECODE (Brovkin et al., 1997) and its carbon cycle (Bouttes et al., 2015) in favor of the dynamic vegetation model CARAIB, detailed in the following section, including a hydrological and carbon cycle. The advantages of this vegetation model are twofold. First it is composed of 26 PFTs instead of 2 for VECODE so it can reproduce more precisely the global terrestrial vegetation distribution and productivity, particularly by separating C3 and C4 photosynthetic pathways. Second, we have a daily time step for CARAIB whereas VECODE has yearly time step. CARAIB thus allows to estimate the oxygen fluxes and isotopic composition according to the different vegetation types. The other base components of iLOVECLIM, i.e. the atmosphere and the ocean, have the following characteristics:

ECBilt is the atmospheric component developed at the Royal Dutch Meteorological Institute (KNMI) by Opsteegh et al. (1998). It is a quasi-geostrophic model running on a T21 spectral grid (~5.6° of resolution in latitude and longitude). The atmosphere is subdivided in three vertical layers at 800, 500 and 200 hPa with the humidity contained only on the first layer and representative of the total humidity content of the atmosphere. The temperature is computed on two intermediate layers: 650 and 350 hPa. The model time step is 4 hours.

CLIO is a 3-D oceanic general circulation model based on Navier-Stokes equations and developed by Goosse et al. (1997), Goosse and Fichefet (1999). It has a 3°x3° horizontal resolution, 20 vertical layers and a free surface.

### 2.2.2 CARAIB

The CARAIB model (CARbon Assimilation In the Biosphere) is a global dynamic vegetation model (Warnant et al., 1994; François et al., 1998, 1999; Gérard et al., 1999; Otto et al., 2002; Laurent et al., 2008; Dury et al., 2011) composed of five different modules describing (1) the hydrological budget, (2) the canopy photosynthesis and stomatal regulation, (3) the carbon allocation and plant growth, (4) the heterotrophic respiration and litter/soil carbon dynamics and (5) the plant competition and biogeography.

The *hydrological module* (Hubert et al., 1998; François et al., 2006) is used for average soil water content in the root zone, water content in snow and water fluxes estimation.

The *canopy photosynthesis and stomatal regulation* module is based on a C3 (Farquhar et al., 1980) and C4 (Collatz et al., 1992) photosynthesis model. For each PFT, photosynthesis is calculated for sun and shade leaves (de Pury and Farquhar, 1997). The canopy is divided into 2 vegetation storeys. The overstorey is filled with the tree PFTs, while grass and shrub PFTs are assumed to grow in the understorey. Herbaceous and shrub photosynthesis is thus limited by the amount of light transmitted through the overstorey canopy.

The *carbon allocation and plant growth* module assign the photosynthetic products to the metabolic (leaves) and structural (wood and roots) carbon reservoirs. It also calculates the autotrophic respiration and litter production fluxes.

The *heterotrophic respiration and litter/soil carbon* module evaluates the heterotrophic respiration rates according to the temperature, the soil moisture and the carbon reservoir content (Nemry et al., 1996). It also calculates the time evolution of metabolic and structural litter, as well as soil carbon reservoirs.

The *plant competition and biogeography* module is used to estimate the cover fractions of all PFTs on each grid cell. It describes the establishment, the competition and mortality of PFTs. Mortality produces gaps in the canopy which are filled with seeds of all PFTs that meet predefined climatic criteria for germination (François et al., 2011). The share among PFTs for filling these gaps is in proportion of the PFT net primary productivities.

CARAIB is composed of a given set of 26 PFTs, combining herbaceous and arboreal plant types, which can be shared on the same grid cell. The actual classification is based on Popova et al. (2013) grouping 15 arboreal, 3 herbaceous and 8 shrub PFTs. The different PFTs are characterized by plant life-form (tree, herb and shrub), leaf type (broad- or needle-leaved), phenological patterns (evergreen or deciduous), bioclimatic tolerance (temperate, tropical) and functional features like C3 or C4 photosynthetic pathways. The vegetation cover is updated once a month for herbs and once a year for trees. The model calculates the temporal evolution of two carbon reservoirs in the plant (metabolic and structural biomass carbon) and three in the soil (metabolic and structural litter carbon, soil organic carbon) for each PFTs. The model time step is 1 day for updating all water and carbon reservoirs. Photosynthesis and plant respiration are calculated every 2 hours in order to take into account non-linear effects associated with the variation of photosynthetic/respiration fluxes over the day. The daily input climatic fields needed to run the model (temperature, precipitation, humidity, wind speed and sunshine hours) are provided by the atmospheric component of iLOVECLIM, ECBilt (see Supplement).

## 3 Oxygen cycle and isotope fractionation

### 3.1 Photosynthesis process

The fractionation coefficient between $\delta^{18}O$ of leaf water and $\delta^{18}O$ of oxygen produced by photosynthesis is here taken equal to 1 (no fractionation) according to Guy et al. (1993) despite the fact that a recent study shows a small photosynthetic fractionation in the ocean biosphere (Eisenstadt et al., 2010). The $\delta^{18}O_{leaf}$ is computed from Craig and Gordon's (1965) expression of evaporation applied to leaf transpiration under equilibrium conditions (Dongmann, 1974; Flanagan et al., 1991):

$$\delta^{18}\mathrm{O}_{\mathrm{leaf}} = \mathrm{h}\left(\delta^{18}\mathrm{O}_{vap} + \varepsilon_{eq}\right) + (1-h) \times (\delta^{18}\mathrm{O}_{\mathrm{gw}} + \varepsilon_{eq} - \varepsilon_{kin}) \quad (1)$$

with h the relative humidity at the surface of the leaf during daytime calculated as 85 % of the modeled relative air humidity in the lower layer as suggested by Hoffman et al. (2004). This decrease near the leaves of 15% is applied to take into account the corresponding temperature corrected from daily temperature range. $\delta^{18}O_{vap}$ and $\delta^{18}O_{gw}$ are respectively the modelled $\delta^{18}O$ content of water vapor and in soil water, $\varepsilon_{eq}$ is the $H_2{}^{18}O/H_2{}^{16}O$ isotopic fractionation between liquid and vapor under equilibrium conditions (Majoube, 1971) and $\varepsilon_{kin}$ is the $H_2{}^{18}O/H_2{}^{16}O$ kinetic fractionation coefficient associated with water vapor diffusion in the air. The kinetic fractionation can be expressed in permil, following the formulations given in Farquhar et al. (1989) and Cernusak et al. (2016) first for $^{18}O$ and then for $^{2}H$:

$$\varepsilon_{kin}^{O} = \frac{28r_s+19r_b}{r_s+r_b} \quad (2)$$

$$\varepsilon_{kin}^{H} = \frac{25r_s+17r_b}{r_s+r_b} \quad (3)$$

with $r_s$ and $r_b$ the stomatal and boundary layer resistances (the inverses of the stomatal and boundary layer conductances). The 28 and 19 values in the Equation (2) are fractionation factors for diffusion of water molecules containing $^{18}O$ through the stomata and boundary layer. The 25 and 17 values in the Equation (3) are the same fractionation factors for water molecules containing $^{2}H$ (Merlivat, 1978). Several studies have estimated the range of the $\varepsilon_{kin}$ variations between 20 and 28 ‰ depending on the importance of stomatal or boundary layer resistances (Farquhar et al., 1989; Hoffmann et al., 2004; Reutenauer et al., 2015).

We start from the value of 20 ‰ as in Reutenauer et al. (2015) suggesting that higher values led to too high global $\delta^{18}O_{leaf}$ and hence $\delta^{18}O_{atm}$. The spatial and temporal variations of the humidity near the leaves, $\delta^{18}O_{vap}$ and $\delta^{18}O_{gw}$ are given by ECBilt at daily time step for each grid cells. To calculate the $\delta^{18}O$ of $O_2$ produced by photosynthesis in leaf we multiplied for each

region the local $\delta^{18}O_{leaf}$ by the local oxygen productivity. The daily values are then summed for each regions and normalized by the global terrestrial photosynthetic $O_2$ flux. The final value is designed as $\delta^{18}O_{leaf}$.

### 3.2 Oxygen uptake processes

At steady state, the photosynthesis flux should equal the different fluxes of oxygen uptake which are the Mehler reaction, the photorespiration and the dark respiration in soil and in leaves. The Mehler reaction is associated with a direct photoreduction of $O_2$ and contributes to ~10 % of the oxygen uptake fluxes. Considering that $f_{mehler}$ does not depend on the spatial or temporal vegetation distribution we use the constant value of 0.1 for the proportion of total respiration (Badger et al., 2000). Photorespiration, i.e. the $O_2$ consumption by the plants in the light, produces some carbon dioxide as opposed to the photosynthesis process. The intensity of photorespiration is lower in C4 plants than in C3 plants since C4 plants minimize photorespiration via the decrease of the oxygenation reaction (Von Caemmerer, 2000). The climatic parameters including the $CO_2$ concentration have a direct but complex impact on the fraction of photorespiration. In case of $CO_2$ increase, the fraction associated with photorespiration decreases. But a change in vegetation with substitution of C4 plants for C3 plants, favored with higher $CO_2$ concentration, could lead to an increase in the fraction of photorespiration. A global integration of $f_{photorespiration}$ in the iLOVECLIM model gives a value of 0.20 for pre-industrial and 0.15 for the Last Glacial Maximum (Table 1).

Another respiration process is the dark respiration which consumes $O_2$ with no sunlight required in contrast to Mehler reaction and photorespiration. It could be separated in two terms: the dark respiration in soil and in leaves. Schlesinger and Andrews (2000) report a global estimation of soil (leaves) respiration around 63 % (37 %) of the global GPP. When transferring this estimate from carbon to oxygen fluxes using the different fractions associated with photorespiration and Mehler reaction, an estimation of the fraction for the dark respiration in the soil is obtained with $f_{darksoil}$ = 0.48. $f_{darkleaves}$ is calculated as 1 - $f_{mehler}$ - $f_{photorespiration}$ - $f_{darksoil}$ (i.e. = 1-0.1-0.2-0.48) which gives a value of 0.22. The final ratio $f_{darkleaves}/f_{darksoil}$ expressed in oxygen fluxes is 0.46. For the Last Glacial Maximum there is no estimation on the proportion of soil respiration so we assumed that the ratio $f_{darkleaves}/f_{darksoil}$ remain the same and we use the modeled estimation of $f_{photorespiration}$ to calculate the fraction of dark respiration in soil and in leaves. The LGM values of $f_{darksoil}$ and $f_{darkleaves}$ are then respectively 0.51 and 0.24 (Table 1).

### 3.3 Terrestrial fractionation factor

The global terrestrial isotope fractionation factor associated with the different $O_2$ uptake pathways can be express as followed:

$$^{18}\alpha_{respiration} = \left( {}^{18}\alpha_{photorespiration} \times f_{photorespiration} \right) + \left( {}^{18}\alpha_{mehler} \times f_{mehler} \right) + \left( {}^{18}\alpha_{darksoil} \times f_{darksoil} \right) + \left( {}^{18}\alpha_{darkleaves} \times f_{darkleaves} \right) \quad (4)$$

with $^{18}\alpha$ the different fractionation factors of oxygen isotopes associated with photorespiration, Mehler respiration, soil and leaves dark respiration as well as f the corresponding fractions of the oxygen respiratory fluxes. Estimations of these parameters can be found in Table 1.

The different fractionation factors $^{18}\alpha$ have been estimated by Helman et al. (2005) and are equal to 0.9786 for $^{18}\alpha_{photorespiration}$, 0.9892 for $^{18}\alpha_{mehler}$ and 0.981 for $^{18}\alpha_{darkleaves}$. The $^{18}\alpha_{darksoil}$ value is calculated by giving to each vegetation types simulated with CARAIB a value of soil isotope discrimination by respiration (Angert et al., 2003). We assigned the following values of soil isotope discrimination by respiration to the different PFTs of CARAIB: 10.1 ± 1.5 ‰ for tropical forest, 17.8 ± 1.0 ‰ for temperate forest, 22.4 ± 3.6 ‰ for boreal forest, 17.9 ± 2.5 ‰ for Mediterranean woodland and 15.4 ± 1.6 ‰ for tropical shrubland. The calculated global $^{18}\alpha_{darksoil}$ value is 0.9828 for pre-industrial and 0.9833 for the LGM. For the estimation of the dark respiration in the leaves, we follow the study of Angert et al. (2003) assuming that 10% of the dark respiration is through the AOX (Alternative Oxidase Pathway) and 90% through the COX (Cytochrome Oxidase Pathway). This leads to an overall global $^{18}\alpha_{respiration}$ of 0.9822 and 0.9826 for pre-industrial and Last Glacial Maximum respectively. The LGM $^{18}\varepsilon_{respiration}$ value ($^{18}\alpha_{respiration}$-1 * 1000) is smaller than the pre-industrial one because of the smaller fraction of photorespiration. This is consistent with the values obtained by Landais et al. (2007b) with a lower $^{18}\varepsilon_{respiration}$ for the LGM compared to pre-industrial. The decrease of the fraction associated with the photorespiration during the Last Glacial Maximum could be explained by the increase in C4 plants between the pre-industrial and LGM, considering that C4 plants do not photorespire under normal conditions.

## 4 Results and discussion

### 4.1 Model evaluation between pre-industrial and LGM

#### 4.1.1 Vegetation distribution

In order to easily compare the vegetation distribution simulated with iLOVECLIM between the pre-industrial and the Last Glacial Maximum states, the PFT assemblages are converted into

biomes on the basis of vegetation criteria like the dominant PFT and its cover fraction, the LAI (Leaf Area Index). The LGM climate, associated with the development of permanent ice in the high latitudes of the Northern Hemisphere shows a global aridification resulting in more C4 plants (shrubs, herbs) compared to C3 plants (trees, herbs, steppes) (Figures 1 and 2). In iLOVECLIM, the forest biomes present in the Northern Hemisphere are shifted to the south between the control simulation and the Last Glacial Maximum. Temperate broadleaved deciduous forest and cold/temperate boreal forest are replaced by grassland, tundra and desert areas (Figures 1 and 2). In North America, the temperate forest is totally replaced by permanent ice (the Laurentide ice sheet). In Western Europe, temperate forest is replaced by temperate grassland.

During the LGM the Sahara desert is more developed. In Asia, semi-desert, temperate grassland and shrubland expand and replace temperate open woodland and temperate broadleaves deciduous forest. In Equatorial South America, the extension of the sub-tropical forest and tropical rainforest is reduced and replaced by tropical deciduous forest/woodland savanna (Figures 1 and 2). This is less obvious in the equatorial regions of South Africa and Indonesia where tropical rainforest cover seems to be similar (or a little less developed) in LGM compared to pre-industrial. We have to remind that the location of the tropical forest over South Africa is not correctly reproduced by iLOVECLIM due to a precipitation bias in this area.

However, the global vegetation distribution obtained with iLOVECLIM is in agreement with the one obtained by Henrot et al. (2009) using CARAIB and the Planet Simulator to force the climate. The LGM vegetation cover is less dense than the pre-industrial one and there is an expansion of desert, grassland and tundra.

| | Pre-industrial | | | | LGM | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|
| | **Landais et al., 2007b** | **Blunier et al., 2012** | **This study** | | **Landais et al., 2007b** | **Reutenauer et al., 2015** | **This study** |
| $\delta^{18}O_{leaf}$ | 7.0 ± 1.0 ‰ | 5 – 6.8 ‰ | 6.27 ‰ | | 8.0 ± 1.0 ‰ | 5.164 ± 1.0 ‰ | 7.63 ‰ |
| **Fraction of oxygen respiratory fluxes** | | | | | | | |
| $f_{photorespiration}$ | 0.30 | 0.38 | 0.20 | | 0.15 | 0.28 | 0.15 |
| $f_{mehler}$ | 0.10 [(a)] | 0.10 [(a)] | 0.10 [(a)] | | 0.10 [(a)] | 0.10 [(a)] | 0.10 [(a)] |
| $f_{darksoil}$ | 0.44 | 0.33 | 0.48 | | 0.55 | 0.38 | 0.51 |
| $f_{darkleaves}$ | 0.16 | 0.17 | 0.22 | | 0.20 | 0.23 | 0.24 |
| **Isotope fractionation factors** | | | | | | | |
| $^{18}\varepsilon_{photorespiration}$ | 21.4 ± 1.0 ‰ [(b)] | 21.4 ± 1.0 ‰ [(b)] | 21.4 ± 1.0 ‰ [(b)] | | 21.4 ± 1.0 ‰ [(b)] | 21.4 ± 1.0 ‰ [(b)] | 21.4 ± 1.0 ‰ [(b)] |
| $^{18}\varepsilon_{mehler}$ | 10.8 ± 0.2 ‰ [(b)] | 10.8 ± 0.2 ‰ [(b)] | 10.8 ± 0.2 ‰ [(b)] | | 10.8 ± 0.2 ‰ [(b)] | 10.8 ± 0.2 ‰ [(b)] | 10.8 ± 0.2 ‰ [(b)] |
| $^{18}\varepsilon_{darksoil}$ | 15.6 ± 0.5 ‰ | 15.6 ± 0.5 ‰ [(c)] | 17.2 ‰ | | 16.1 ± 0.5 ‰ | 16.242 ± 0.5 ‰ | 16.7 ‰ |
| $^{18}\varepsilon_{darkleaves}$ | 19 ± 1.0 ‰ | 18 ‰ [(d)] | 19 ± 1.0 ‰ [(c)] | | 19 ± 1.0 ‰ | 19 ± 1.0 ‰ [(d)] | 19 ± 1.0 ‰ [(c)] |
| $^{18}\varepsilon_{respiration}$ | 17.4 ± 1.0 ‰ | 17.998 ‰ | 17.79 ‰ | | 16.94 ± 1.0 ‰ | 17.83 ‰ | 17.36 ‰ |

*Table 1: Estimations of the $\delta^{18}O_{leaf}$ values, fraction of oxygen respiratory fluxes f and isotope fractionation factors $^{18}\varepsilon$ (defined as $^{18}\alpha$-1 * 1000) for pre-industrial conditions and Last Glacial Maximum. The values obtained in this study are compared to past estimations from ice core data (Blunier et al., 2012) and from offline modeling experiments (Landais et al., 2007b; Reutenauer et al., 2015). (a) Badger et al. (2000). (b) Helman et al. (2005). (c) Landais et al. (2007b). (d) Guy et al. (1992, 1993).*

### 4.1.2 Comparison to pollen data

To evaluate the distribution of the global vegetation obtained with iLOVECLIM under pre-industrial and LGM climate conditions, we use the BIOME6000 – Version 4.2 reconstruction (Harrison, 2017) based on the Palaeovegetation Mapping Project (Prentice and Webb, 1998; Prentice et al., 2000; Harrison et al., 2001; Bigelow et al., 2003; Pickett et al., 2004). The pollen assemblages from multiple modern and old sites are used to reconstruct the global biome distribution. The common biomes of BIOME6000 being different from the biomes defined in the CARAIB model, we choose to associate a biome of CARAIB for each biome of BIOME6000 for easier model-data comparison following the classification proposed by Harrison & Prentice (2003) (see Table S1 in Supplement).

The pre-industrial regional BIOME6000 reconstruction is in agreement with the simulated vegetation by iLOVECLIM for several locations: i.e. in the mid-high latitudes of the Northern Hemisphere (Europe and North America) and in the equatorial areas with tropical deciduous forest and equatorial forest (Figures 1 and 2). There are however differences over South-East America or Central and East Asia where the model fails to simulate the reconstructed biomes. In South-East America, the pollen based reconstruction indicates the dominance of warm temperate mixed forest, sub-tropical forest and shrubland whereas the model simulates tropical deciduous forest/woodland savanna and tropical rainforest. In Central Asia, pollen data mostly indicate the presence of shrubland and desert (followed by cold temperate forest in higher latitudes) but the model mainly simulates cold temperate open woodland. There is also some discrepancies over South-East Asia with pollen showing warm temperate mixed forest and temperate broadleaved deciduous forest and the model simulating warm temperate open woodland and temperate broadleaved deciduous forest at different locations. The global integrated signal of the vegetation is thus consistent with the pollen data, even if the model/data agreement is not perfect for some latitudes. For the Last Glacial Maximum, the comparison between the model and the data is good over East Asia and Central Europe. The simulated vegetation does not agree well with the reconstruction over Australia and extreme South Africa (temperate/tropical forest instead of dominant shrubland). The model also fails to reconstruct the observed savanna and open woodland over Western North America as suggested by Harrison and Prentice (2003).

## 4.2 Terrestrial productivity

The total terrestrial carbon stock (soil plus vegetation) is estimated from iLOVECLIM and shows a reduction by a factor of 2 between the control simulation and the LGM: from 2253 to 1190 GtC, hence a reduction of 1063 GtC. This is close to the reduction of 700 and 1600 GtC

suggested from proxy based studies (Adams et al., 1990; Van Campo et al., 1993; Crowley, 1995; Adams and Faure, 1998; Ciais et al., 2012; Peterson et al., 2014; Menviel et al., 2017). Biospheric models forced with General Circulation Models also estimate the reduction between pre-industrial and LGM of 270 to 1106 GtC but with high uncertainties (Prentice et al., 1993; Esser and Lautenschlager, 1994 - omitting the most extreme and probably unrealistic results; Friedlingstein et al., 1995; François et al., 1998, 1999; Kaplan et al., 2002; Otto et al., 2002; Köhler and Fischer, 2004; Henrot et al., 2009).

Pre-industrial and Last Glacial Maximum terrestrial carbon productivity are estimated around 150.5 PgC/y and 85.5 PgC/y respectively using this model. In comparison with past carbon estimations described in Table 2, the pre-industrial and LGM values are within the range of the different estimations. From past modelling estimations, the Last Glacial Maximum carbon and oxygen productivity are around 50 to 80 % of the pre-industrial value. With our model, we obtain low value of 56% (for LGM vs pre-industrial carbon productivity) which can suggest that the model either overestimate the pre-industrial productivity or underestimates the LGM productivity.

| References | Pre-industrial GPP (PgC/y) | LGM GPP (PgC/y) |
|---|---|---|
| Blunier et al., 2002 | 112.9 | 90 |
| Landais et al., 2007b | 160 | 110 |
| Beer et al., 2010 | 123 | |
| Ciais et al., 2012 | 80 | 40 |
| Reutenauer et al., 2015 | 126.1 | 81.2 |
| This study | 150.5 | 85.5 |

*Table 2: Comparison of gross primary productivity estimations from the terrestrial biosphere between the pre-industrial and the Last Glacial Maximum.*

The spatial distribution of the GPP for the control simulation and the LGM shows similarities with the most productive areas located in Indonesia, South-East Africa and South America (Figure 3). These high productivity regions agree well with simulated vegetation, i.e. dominance of tropical rainforest and sub-tropical forest (which are very productive vegetation types). Lower productivity areas are observed for GPP in the North Africa, West Australia and high latitudes of the Northern Hemisphere characterized by desert and more C4 plant type. The main difference between the pre-industrial and the LGM is due to the change in the vegetation distribution at high latitudes. During the LGM the ice sheets are developed over high latitudes of the Northern Hemisphere. Tundra is then the dominant vegetation at lower latitudes over Europe and Asia. This leads to a decrease in the global biosphere productivity

(Figure 3). The equatorial regions are also less productive during the LGM because of the reduction of the equatorial rainforest for the benefit of tropical woodland or savanna.

### 4.3 Isotopic composition of oxygen

#### 4.3.1 $\delta^{18}O_{leaf}$ and sensitivity experiments

Using the approach of Craig and Gordon (1965) described in the section 3, the $\delta^{18}O_{leaf}$ is obtained from the daily humidity near the leaves, temperature and isotopic composition of the vapor and ground water generated by iLOVECLIM. We find a global mean value (weighted by the global terrestrial photosynthetic $O_2$ flux) of 3.20 ‰ for the pre-industrial, which is smaller compared to past estimations from 4.4 to 6.8 ‰ for data based studies (on $\delta^{18}O_{atm}$ for Dole Effect reconstruction in Bender et al., 1994 or on $\Delta^{17}O$ of $O_2$ in Blunier et al., 2012). For model based studies, the estimations are from 6.1 to 7 ‰ (using model of the Dole Effect based on biogeochemical model of the $O_2$ cycle in Hoffmann et al., 2004 or three oxygen isotopes mass balance model for atmospheric oxygen in Landais et al., 2007b). Another study using a Geographic Information System (GIS) approach leads to a $\delta^{18}O_{leaf}$ value of 6.5 ± 2.1 ‰ (West et al., 2008). This difference in modeling $\delta^{18}O_{leaf}$ could be explained by the fact that the humidity simulated in iLOVECLIM reflects the mean humidity of the troposphere whereas previous studies used the value of the first layer of the atmosphere.

For the LGM the simulated $\delta^{18}O_{leaf}$ is equal to 4.55 ‰, taking into account the ~1 ‰ change in isotopic composition of oxygen sea water between the present-day and the LGM (Waelbroeck et al., 2002). This value is also lower than values of 5.164 and 8 ‰ obtained from Reutenauer et al. (2015) and Landais et al. (2007b). The values over both time periods are low compared to other studies, probably caused by to high relative humidity near the leaf or by a kinetic fractionation factor effect in the calculation of $\delta^{18}O_{leaf}$.

Since many parameters do not have fixed values, $\delta^{18}O_{leaf}$ can be increased to be closer to past estimations. We investigate the enhancement of the oxygen isotopic composition of leaf water through sensitivity experiments that test the influence of the two parameters cited above (humidity near the leaves and kinetic fractionation factor). Three scenarios are tested changing only the value of either relative humidity or kinetic fractionation for both time periods. The runs are performed for 1000 years and are initialized from an equilibrium run. The first two scenarios modify the value of the relative humidity near the leaves by a decrease of 10 % and 20 %. The third test changes the value of the kinetic fractionation for water diffusive exchange from 20 ‰ as proposed in Reutenauer et al. (2015) to the extreme 30 ‰ value, considering maximum estimations of 28.5 ‰ and 32 ‰ from Merlivat & Nief (1967) and Cappa et al. (2003). This value is deduced from the ratio of the diffusion coefficient D / D* associated with $H_2{}^{16}O$ (D) and

$H_2{}^{18}O$ (D*), calculated as D / D* - 1, which can induce too high or too low $\delta^{18}O_{leaf}$ values. Other studies from Farquhar et al. (1989), Hoffmann et al. (2004) and Reutenauer et al. (2015) made $\varepsilon_{kin}$ varying in the range of 20 to 28 ‰ depending on the importance of stomatal or boundary layer resistances.

The first sensitivity test shows that a decrease in relative humidity near the leaves of 10 % leads to higher global weighted $\delta^{18}O_{leaf}$ values of 6.27 ‰ and 7.63 ‰ for pre-industrial and LGM, now comparable to past estimations. The relative humidity at the surface of the leaf is obtained from the humidity calculated with ECBilt in the first layer of the atmosphere at 200 hPa. Considering a possible bias in the distribution of the air humidity or in the estimation near the leaves, we suggest the use of a relative smaller relative humidity at the plant site to obtain higher $\delta^{18}O_{leaf}$ values. However, a decrease of the relative humidity of 20 % gives to high $\delta^{18}O_{leaf}$ values since they reach 9.36 ‰ and 10.72 ‰ for the two respective periods (Table 3). The last experiment with higher 30 ‰ value of $\varepsilon_{kin}$ leads to higher $\delta^{18}O_{leaf}$ of 6.35 ‰ and 7.61 ‰ respectively for pre-industrial and LGM (Table 3). These new values are also consistent with the previous estimation of Landais et al. (2007b) showing a 1 ‰ increase of the $\delta^{18}O_{leaf}$ between the present-day and the LGM.

| | Standard humidity and $\varepsilon_{kin}$ | Humidity – 10 % | Humidity – 20 % | $\varepsilon_{kin}$ + 10 ‰ |
|---|---|---|---|---|
| Pre-industrial $\delta^{18}O_{leaf}$ | 3.20 ‰ | 6.27 ‰ | 9.36 ‰ | 6.35 ‰ |
| LGM $\delta^{18}O_{leaf}$ | 4.55 ‰ | 7.63 ‰ | 10.72 ‰ | 7.61 ‰ |

*Table 3: Sensitivity experiments on the calculation of $\delta^{18}O_{leaf}$.*

At global scale, the $\delta^{18}O_{leaf}$ is not uniform since it directly depends on the climate at different latitudes. The smaller $\delta^{18}O_{leaf}$ during the pre-industrial at high latitudes (Figure 4) is mainly caused by the reduction of the ice sheet over the Northern Hemisphere compared to the Last Glacial Maximum, since the plants will consume depleted $\delta^{18}O$ of meteoric water at high latitudes (Figure 5). So the increased oxygen productivity at high latitudes is reflected in a depleted $\delta^{18}O_{leaf}$. During the LGM, the $\delta^{18}O_{leaf}$ increase is particularly visible at low latitudes and can be explained by changes in the relative humidity and isotopic composition of the meteoric water. We explain part of this increase, ~20 %, by the decrease in relative humidity over low latitude areas (e.g. in the Middle East Asia, Figure 6). This decrease in humidity induces kinetic fractionation to dominate over equilibrium fractionation during plant

transpiration. However, the main driver of the $\delta^{18}O_{leaf}$ increase is the increase of the $\delta^{18}O_{vap}$ and $\delta^{18}O_{gw}$ arising from changes in the hydrological cycle affecting the terrestrial biosphere. The contribution of the $\delta^{18}O$ of meteoric water to the $\delta^{18}O_{leaf}$ is estimated to ~80 %. At orbital time scale, the $\delta^{18}O_{leaf}$ variations could then be controlled by changes in the water cycle induced by changes in the climate and in the water vapor content.

### 4.3.2 Changes in $\delta^{18}O_{atm}$

The terrestrial contribution to the $\delta^{18}O_{atm}$, i.e. $\delta^{18}O_{terr}$, depends on the oxygen isotope fractionation associated with photosynthesis and respiration. The $\delta^{18}O_{terr}$ can then be expressed as follows based on Bender et al. (1994), Hoffmann et al. (2004), Landais et al. (2007b) and Reutenauer et al. (2015):

$$\delta^{18}\mathrm{O}_{\mathrm{terr}} = \frac{\delta^{18}\mathrm{O}_{\mathrm{leaf}} + 1}{{}^{18}\alpha_{respiration}} - 1 \quad (5)$$

with $\delta^{18}O_{leaf}$ the global isotopic composition of leaf water weighted by the global oxygen production and ${}^{18}\alpha_{respiration}$ the global terrestrial isotope fractionation factor associated with the different $O_2$ uptake pathways.

Using the iLOVECLIM model we estimate a global value of $\delta^{18}O_{terr}$ increasing from the pre-industrial with 24.51 ‰ to 25.47 ‰ during the LGM. This increase is explain from higher 1.63 ‰ in $\delta^{18}O_{leaf}$, due to changes in the water cycle and from smaller 0.43 ‰ in global terrestrial isotope fractionation factor. The contributions of these two effects on $\delta^{18}O_{terr}$ are estimated to 77 % for the $\delta^{18}O_{leaf}$ change and to 23 % for the ${}^{18}\alpha_{respiration}$ change, which reflect the dominant role of $\delta^{18}O_{leaf}$ (linked to changes in the water cycle at low latitudes).

The $\delta^{18}O_{atm}$ can then be expressed as oxygen exchanges between the terrestrial and marine biosphere and the stratosphere following the formulation given in Bender et al. (1994):

$$\delta^{18}\mathrm{O}_{\mathrm{atm}} = \frac{(F_{terr}\times\delta^{18}\mathrm{O}_{\mathrm{terr}})+(F_{mar}\times\delta^{18}\mathrm{O}_{\mathrm{mar}})}{(F_{terr}+F_{mar})} - {}^{18}\epsilon_{strat} \quad (6)$$

where $F_{terr}$ and $F_{mar}$ are the $O_2$ fluxes produced by terrestrial and marine biosphere respectively, $\delta^{18}O_{terr}$ and $\delta^{18}O_{mar}$ are the isotopic composition associated with the land alone and ocean respectively, and ${}^{18}\epsilon_{strat}$ is the depletion of $\delta^{18}O_{atm}$ by stratospheric photochemistry estimated to 0.4 by Bender et al. (1994), which is negligible compared to the effect of photosynthesis and respiration on the $\delta^{18}O_{atm}$.

In this study we decided to only estimate the oxygen flux and isotopic composition resulting from the terrestrial biosphere following the reasons given in the first section. We however need estimates of the oxygen production and isotopic composition for the ocean realm to provide a final estimate of $\delta^{18}O_{atm}$. We use the Luz and Barkan (2011), Luz et al. (2014) present day $\delta^{18}O_{mar}$ estimations of 23.53 ± 2.0 ‰ and 24.3 ± 2.0 ‰. For the LGM, we use the Reutenauer et al. (2015) value of 25.3 ± 2.0 ‰. The marine oxygen production estimation during these two time periods are taken from Bender et al. (1994) and Reutenauer et al. (2015). This leads to a global $\delta^{18}O_{atm}$ value, integrating changes in vegetation, of 23.74 ± 0.5 ‰ for the pre-industrial and 24.99 ± 0.5 ‰ for the Last Glacial Maximum. This difference observed in $\delta^{18}O_{atm}$ is dominated, as explain above, by changes in the relative humidity near the leaf and isotopic composition of meteoric water regulating the $\delta^{18}O_{terr}$. The change in global terrestrial isotope fractionation factor associated with $O_2$ uptake pathways only have a small contribution the final value. The $\delta^{18}O_{mar}$ does not play a major role in the $\delta^{18}O_{atm}$ variations since the fractionation coefficients associated with oxygen uptake for the oceanic biosphere is not expected to change during this time period. The model estimates a $\delta^{18}O_{atm}$ thus decrease from 1.11 ‰ to -0.14 ‰ between the Last Glacial Maximum and the pre-industrial (Figure 7). Part of this change during these two periods is explain by the change of the sea water isotopic composition, the other being related to the low latitude hydrological cycle and to the terrestrial biosphere productivity. In comparison to high resolution Antarctic ice core measurements where the $\delta^{18}O_{atm}$ shows a decrease of 1 ‰ between the LGM and the pre-industrial (Severinghaus et al., 2009), iLOVECLIM is able to reproduce a decrease of similar amplitude.

## 5 Conclusions

In this study we have presented a global coupled model to quantify the $\delta^{18}O_{leaf}$ variations associated with the terrestrial biosphere as a first step toward $\delta^{18}O_{atm}$ estimation. We used the climate model iLOVECLIM together with the detailed vegetation model CARAIB to precisely reproduce the changes in vegetation distribution and production by the terrestrial biosphere for the pre-industrial and the Last Glacial Maximum. In addition, we incorporate a new component for atmospheric oxygen isotopes simulation to quantify changes in oxygen fluxes and oxygen isotopic composition of leaf water.

We found a global biosphere productivity estimate of 2253 GtC for the pre-industrial and 1190 GtC for the Last Glacial Maximum which is consistent with past estimations describing a reduction up to a factor 2 of the total carbon stock between the two periods. We also provide an estimation of the $\delta^{18}O_{leaf}$ and of the isotopic fractionation factors during oxygen uptake associated with the terrestrial biosphere during the pre-industrial and the LGM. The $\delta^{18}O_{leaf}$ decrease of 1.36 ‰ from the LGM to the pre-industrial is then directly related to higher relative

humidity at low latitudes photosynthesis site and depleted $\delta^{18}O$ of meteoric water reflecting changes in the water cycle. This leads to coherent $\delta^{18}O_{atm}$ variations at orbital time scale with a decrease of 1.25 ‰ between the Last Glacial Maximum and the pre-industrial as observed in ice cores.

Further studies using this model for transient simulation on several glacial-interglacial cycles or over rapid transitions are the logical next step to catch the orbital or millennial scale variations of the $\delta^{18}O_{atm}$ as observed in ice core records, originating from changes in water cycle transmitted via photosynthesis by the terrestrial vegetation. Future development could also include the estimation of changes in oxygen production associated with the marine biosphere to close the $\delta^{18}O_{atm}$ budget.

## References


Adams, J. M., Faure, H., Faure-Denard, L., McGlade, J. M., and Woodward, F. I.: Increases in the terrestrial carbon storage from the last glacial maximum to the present, Nature 348, 711–714, 1990.

Adams, J. and Faure, H.: A new estimate of changing carbon storage on land since the last glacial maximum, based on global land ecosystem reconstruction, Global Planet. Change 16, 3–24, 1998.

Angert, A., Barkan, E., Barnett, B., Brugnoli, E., Davidson, E. A., Fessenden, J., Maneepong, S., Panapitukkul, N., Randerson, J. T., Savage, K., Yakir, D., and Luz, B.: Contribution of soil respiration in tropical, temperate, and boreal forests to the $^{18}O$ enrichment of atmospheric $O_2$, Global Biogeochem. Cy., 17, 1089, doi:10.1029/2003GB002056, 2003.

Araguás- Araguás, L., Danesi, P., Froehlich, K., Rozanski, K.: Global monitoring of the isotopic composition of precipitation, Journal of radioanalytical and nuclear chemistry 205, 189-200, 1996.

Badger, M. R., von Caemmerer, S., Ruuska, S., and Nakano, H.: Electron flow to oxygen in higher plants and algae: Rates and control of direct photoreduction (Mehler reaction) and rubisco oxygenase, Philos. Trans. R. Soc., Ser. B, 355, 1433–1445, 2000.

Beer, C., Reichstein, M., Tomelleri, E., Ciais, P., Jung, M., Bonan, G. B., Bondeau, A., Cescatti, A., Lasslop, G., Lindroth, A., Lomas, M., Luyssaert, S., Margolis, H., Oleson, K. W., Roupsard, O., Veenendaal, E., Viovy, N., Williams, C., Woodward, F. I., and Papale, D.: Terrestrial gross carbon dioxide uptake: global distribution and covariation with climate, Science, 329, 834–838, 2010.

Bender, M. L., Sowers, T., and Labeyrie, L.: The Dole Effect and its variations during the last 130,000 years as measured in the Vostok Ice Core, Global Biogeochem. Cy., 8, 363–376, doi:10.1029/94GB00724, 1994.

Bigelow, N. H., Brubaker, L. B., Edwards, M. E., Harrison, S. P., Prentice, I. C., Anderson, P. M., Andreev, A. A., Bartlein, P. J., Christensen, T. R., Cramer, W., Kaplan, J. O., Lozhkin, A. V., Matveyeva, N. V., Murray, D. V., McGuire, A. D., Razzhivin, V. Y., Ritchie, J. C., Smith, B., Walker, D. A., Gajewski, K., Wolf, V., Holmqvist, B. H., Igarashi, Y., Kremenetskii, K., Paus, A., Pisaric, M. F. J., and Vokova, V. S.: Climate change and Arctic ecosystems I. Vegetation changes north of 55°N between the last glacial maximum, mid-Holocene and present. Journal of Geophysical Research, 108(D19), 8170, 2003.

Blunier, T., Barnett, B., Bender, M. L., and Hendricks, M. B.: Biological oxygen productivity during the last 60,000 years from triple oxygen isotope measurements, Global Biogeochem. Cy., 16, 3-1–3-13, doi:10.1029/2001GB001460, 2002.

Blunier, T., Bender, M. L., Barnett, B., and von Fischer, J. C.: Planetary fertility during the past 400 ka based on the triple isotope composition of $O_2$ in trapped gases from the Vostok ice core, Clim. Past, 8, 1509–1526, doi:10.5194/cp-8-1509-2012, 2012.

Bouttes, N., Roche, D. M., Mariotti, V., and Bopp, L.: Including an ocean carbon cycle model into iLOVECLIM (v1.0), Geosci. Model Dev., 8, 1563-157, 2015.

Brovkin, V., Ganopolski, A., and Svirezhev, Y.: A continuous climate-vegetation classification for use in climate-biosphere studies, Ecol. Model., 101, 251–261, 1997.

Bügelmayer, M., Roche, D. M., and Renssen, H.: Representing icebergs in the iLOVECLIM model (version 1.0) – a sensitivity study, Geosci. Model Dev., 8, 2139–2151, https://doi.org/10.5194/gmd-8-2139-2015, 2015.

Cappa, C., Hendricks, M., DePaulo, D., Cohen, R.: Isotopic fractionation of water during evaporation. Journal of Geophysical Research 108, 4525, 2003.

Cernusak, L., Barbour, M., Arndt, S., Cheesman, A., English, N., Field, T., Helliker, B., Holloway-Phillips, M., Holtum, J., Kahmen, A., McInerney, F., Munksgaard, N., Simonin, K., Song, X., Stuart-Williams, H., West, J., Farquhar, G.: Stable isotopes in leaf water of terrestrial plants. Plant, Cell & Environment 39:1087–1102, 2016.

Ciais, P., Tagliabue, A., Cuntz, M., Bopp, L., Scholze, M., Hoffmann, G., Lourantou, A., Harrison, S. P., Prentice, I. C., Kelley, D. I., Koven, C., and Piao, S. L.: Large inert carbon pool in the terrestrial biosphere during the Last Glacial Maximum, Nat. Geosci., 5, 74–79, doi:10.1038/ngeo1324, 2012.

595 Collatz, G. J., Ribas-Carbo, M., and Berry, J. A.: A coupled photosynthesis — stomatal conductance model for leaves of C4 plants, Australian Journal of Plant Physiology 19, 519–538, 1992.

Craig, H. and Gordon, L.: Deuterium and oxygen 18 variations in the ocean and the marine atmosphere, in: Stable Isotopes in Oceanographic Studies and Paleotemperatures, edited by:
600 Tongiorgi, E., 26–30 July 1965, Spoleto, Italy, 9–130, 1965.

Crowley, T. J.: Ice age terrestrial carbon changes revisited, Global Biogeochem. Cycles 9 (3), 377–389, 1995.

de Pury, D. G. and Farquhar, G. D.: Simple scaling of photosynthesis from leaves to canopies without the errors of big-leaf models, Plant Cell Environ.,20(5), 537–557, 1997.

605 Dongmann, G.: The contribution of land photosynthesis to the stationary enrichment of $^{18}O$ in the atmosphere, Radiat. Environ. Bioph., 11, 219–225, doi:10.1007/BF01323191, 1974.

Dreyfus, G. B., Parrenin, F., Lemieux-Dudon, B., Durand, G., Masson-Delmotte, V., Jouzel, J., Barnola, J.-M., Panno, L., Spahni, R., Tisserand, A., Siegenthaler, U., and Leuenberger, M.: Anomalous flow below 2700 m in the EPICA Dome C ice core detected using $\delta^{18}O_{atm}$ of
610 atmospheric oxygen measurements, Climate of the Past, 3(2), 341–353, 2007.

Dury, M., Hambuckers, A., Warnant, P., Henrot, A.-J., Favre, E., Ouberdous, M., and François, L.: Response of the European forests to climate change: a modelling approach for the 21st century, iForest. 4, 82–99, 2011.

Eisenstadt, D., Barkan, E., Luz, B., and Kaplan, A.: Enrichment of oxygen heavy isotopes
615 during photosynthesis in phytoplankton, Photosynth. Res., 103, 97–103, doi:10.1007/s11120-009-9518-z, 2010.

Esser, G. and Lautenschlager, M.: Estimating the change of carbon in the terrestrial biosphere from 18,000 BP to present using a carbon cycle model, Environ. Pollut. 83, 45–53, 1994.

Extier, T., Landais, A., Bréant, C., Prié, F., Bazin, L., Prié, Dreyfus, G., Roche, D. M., and
620 Leuenberger, M.: On the use of $\delta^{18}O_{atm}$ for ice core dating, Quat. Sci. Rev. 185, 244–257, https://doi.org/10.1016/j.quascirev.2018.02.008, 2018.

Farquhar, G. D., von Caemmerer, S., and Berry, J. A.: A biochemical model of photosynthetic $CO_2$ assimilation in leaves of C3 species, Planta 149, 78–90, 1980.

Farquhar, G. D., Hubick, K., Condon, A., and Richards, R.: Carbon isotope fractionation and
625 plant water-use efficiency, in: Stable Isotopes in Ecological Research, Springer, 21–40, 1989.

Flanagan, L. B., Comstock, J. P., and Ehleringer, J. R.: Comparison of modeled and observed environmental influences on the stable oxygen and hydrogen isotope composition of leaf water in Phaseolus vulgaris L., Plant Physiol., 96, 588–596, 1991.

François, L. M., Delire, C., Warnant, P., Munhoven, G.: Modelling the glacial – interglacial changes in the continental biosphere, Global Planet. Change 16–17 (1–4), 37–52, 1998.

François, L. M., Goddéris, Y., Warnant, P., Ramstein, G., de Noblet, N., and Lorenz, S.: Carbon stocks and isotopic budgets of the terrestrial biosphere at mid-Holocene and last glacial maximum times, Chem. Geol. 159 (1–4), 163–189, 1999.

François, L. M., Ghislain, L., Otto, D., and Micheels, A.: Late Miocene vegetation reconstruction with the CARAIB model, Palaeogeogr. Palaeoclimatol. Palaeoecol. 238, 302–320, 2006.

François, L., Utescher, T., Favre, E., Henrot, A.-J., Warnant, P., Micheels, A., Erdei, B., Suc, J.-P., Cheddadi, R., and Mosbrugger, V.: Modelling Late Miocene vegetation in Europe: Results of the CARAIB model and comparison with palaeovegetation data, Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology, 304(3-4): 359–378, 2011.

Friedlingstein, P., Prentice, K. C., Fung, I., John, J., and Brasseur, G.: Carbon–biosphere–climate interactions in the last glacial maximum climate, J. Geophys. Res. 100 (D4), 7203–7221, 1995.

Gérard, J.-C., Nemry, B., François, L., Warnant, P.: The internal change in atmospheric $CO_2$: contribution of subtropical ecosystems? Geophys. Res. Lett. 26 (2), 243–246, 1999

Goosse, H., Campin, J.-M., Fichefet, T., and Deleersnijder, E.: Sensitivity of a global ice-ocean model to the Bering Strait throughflow, Clim. Dynam., 13, 349–358, 1997.

Goosse, H. and Fichefet, T.: Importance of ice-ocean interactions for the global ocean circulation: A model study, J. Geophys. Res., 104, 23337–23355, doi:10.1029/1999JC900215, 1999.

Goosse, H., Brovkin, V., Fichefet, T., Haarsma, R., Huybrechts, P., Jongma, J., Mouchet, A., Selten, F., Barriat, P.-Y., Campin, J.- M., Deleersnijder, E., Driesschaert, E., Goelzer, H., Janssens, I., Loutre, M.-F., Morales Maqueda, M. A., Opsteegh, T., Mathieu, P.-P., Munhoven, G., Pettersson, E. J., Renssen, H., Roche, D. M., Schaeffer, M., Tartinville, B., Timmermann, A., and Weber, S. L.: Description of the Earth system model of intermediate complexity LOVECLIM version 1.2, Geosci. Model Dev., 3, 603–633, doi:10.5194/gmd-3-603-2010, 2010.

Guy, R. D., Berry, J. A., Fogel, M. L., Turpin, D. H., and Weger, H. G.: Fractionation of the stable isotopes of oxygen during respiration by plants - the basis of a new technique to estimate

partitioning to the alternative path, in: Molecular, biochemical and physiological aspects of plant respiration, edited by: Lambers, H. and van der Plas, L. H. W., SPB Academic Publishing, The Hague, The Netherlands, 443–453, 1992.

Guy, R. D., Fogel, M. L., and Berry, J. A.: Photosynthetic fractionation of the stable isotopes of oxygen and carbon, Plant. Physiol., 101, 37–48, 1993.

Harrison, S. P., Yu, G., Takahara, H., and Prentice, I. C.: Palaeovegetation - Diversity of temperate plants in east Asia, Nature 413, 129-130, 2001.

Harrison, S. P., and Prentice, C. I., Climate and $CO_2$ controls on global vegetation distribution at the last glacial maximum: analysis based on palaeovegetation data, biome modelling and paleoclimate simulations, Global Change Biology 9, 983-1004, 2003.

Harrison, S. P.: BIOME 6000 DB classified plotfile version 1. University of Reading. Dataset. http://dx.doi.org/10.17864/1947.99, 2017.

Helman, Y., Barkan, E., Eisenstadt, D., Luz, B., and Kaplan, A.: Fractionation of the three stable oxygen isotopes by oxygen-producing and oxygen-consuming reactions in photosynthetic organisms, Plant Physiol., 138, 2292–2298, doi:10.1104/pp.105.063768, 2005.

Henrot, A.-J., François, L., Brewer, S., and Munhoven, G.: Impacts of land surface properties and atmospheric $CO_2$ on the Last Glacial Maximum climate: a factor separation analysis, Clim. Past, 5, 183–202, 2009.

Hoffmann, G., Cuntz, M., Weber, C., Ciais, P., Friedlingstein, P., Heimann, M., Jouzel, J., Kaduk, J., Maier-Reimer, E., Seibt, U., and Six, K.: A model of the Earth's Dole effect, Global Biogeochem. Cy., 18, GB1008, doi:10.1029/2003GB002059, 2004.

Hubert, B., François, L., Warnant, P., and Strivay, D.: Stochastic generation of meteorological variables and effects on global models of water and carbon cycles in vegetation and soils, J. Hydrol. 212-213 (1–4), 318–334, 1998.

Jouzel, J., Waelbroeck, C., Malaizé, B., Bender, M., Petit, J.R., Stievenard, M., Barkov, N.I., Barnola, J.M., King, T., Kotlyakov, V.M., Lipenkov, V., Lorius, C., Raynaud, D., and Sowers, T.: Climatic interpretation of the recently extended Vostok ice records, Clim. Dynam. 12, 513-521, 1996.

Kaplan, J. O., Prentice, I. C., Knorr, W., and Valdes, P. J.: Modeling the dynamics of terrestrial carbon storage since the Last Glacial Maximum, Geophys. Res. Lett., 29, 2074, doi:10.1029/2002GL015230, 2002.

690 Kitover, D. C., van Balen, R., Roche, D. M., Vandenberghe, J., and Renssen, H.: Advancement toward coupling of the VAMPER permafrost model within the Earth system model iLOVECLIM (version 1.0): description and validation, Geosci. Model Dev., 8, 1445–1460, https://doi.org/10.5194/gmd-8-1445-2015, 2015.

Köhler, P. and Fischer, H.: Simulating changes in the terrestrial biosphere during the last
695 glacial/interglacial transition, Global Planet. Change, 43, 33–55, 2004.

Landais, A., Masson-Delmotte, V., Nebout, N. C., Jouzel, J., Blunier, T., Leuenberger, M., Dahl-Jensen, D., and Johnsen, S.: Millenial scale variations of the isotopic composition of atmospheric oxygen over marine isotopic stage 4, Earth Planet. Sc. Lett., 258, 101–113, doi:10.1016/j.epsl.2007.03.027, 2007a.

700 Landais, A., Lathiere, J., Barkan, E., and Luz, B.: Reconsidering the change in global biosphere productivity between the Last Glacial Maximum and present day from the triple oxygen isotopic composition of air trapped in ice cores, Global Biogeochem. Cy., 21, GB1025, doi:10.1029/2006GB002739, 2007b.

Landais, A., Dreyfus, G., Capron, E., Masson-Delmotte, V., Sanchez-Goñi, M.F., Desprat, S.,
705 Hoffmann, G., Jouzel, J., Leuenberger, M., and Johnsen, S.: What drives the millennial and orbital variations of $\delta^{18}O_{atm}$? Quat. Sci. Rev. 29, 235-246, 2010.

Laurent, J.-M., François, L., Bar-Hen, A., Bel, L., and Cheddadi, R.: European Bioclimatic Affinity Groups: data-model comparisons, Global Planet. Change, 61, 28–40, 2008.

Luz, B. and Barkan, E.: The isotopic composition of atmospheric oxygen, Global Biogeochem.
710 Cy., 25, GB3001, doi:10.1029/2010GB003883, 2011.

Luz, B., Barkan, E., and Severinghaus, J.: 5.14 – The stable isotopic composition of atmospheric $O_2$, in: Treatise on Geochemistry, edited by: Holland, H. D. and Turekian, K. K., Elsevier, Oxford, 2nd edn., 363–383, doi:10.1016/B978-0-08-095975-7.00419-8, 2014.

Majoube, M.: Fractionnement en oxygene-18 et en deutérium entre l'eau et sa vapeur, J. Chim.
715 Phys, 68, 1423–1436, 1971.

Malaizé, B., Paillard, P., Jouzel, J., Raynaud, D.: The Dole effect over the last two glacial-interglacial cycles, J. Geophys. Res., 104(D12), 14, 199–14, 208, doi:10.1029/1999JD900116, 1999.

Menviel, L., Yu, J., Joos, F., Mouchet, A., Meissner, K. J., and England, M. H.: Poorly ventilated
720 deep ocean at the Last Glacial Maximum inferred from carbon isotopes: A data-model comparison study, Paleoceanography, 32, 2–17, 2017.

Merlivat, L. and Nief, G.: Fractionnement isotopique lors des changements d'état solide-vapeur et liquide-vapeur de l'eau à des températures inférieures à 0 °C. Tellus, 1, 122–127, 1967.

Merlivat, L.: Molecular diffusivities of $H_2{}^{16}O$, $HD^{16}O$, and $H_2{}^{18}O$ in gases, J. Chem. Phys., 69, 2864–2871, doi:10.1063/1.436884,1978.

Nemry, B., François, L., Warnant, P., Robinet, F., and Gérard, J.-C.: The seasonality of the $CO_2$ exchange between the atmosphere and the land biosphere: a study with a global mechanistic vegetation model, Journal of Geophysical Research 101, 7111–7125, 1996

Opsteegh, J. D., Haarsma, R. J., Selten, F. M., and Kattenberg, A.: ECBILT: a dynamic alternative to mixed boundary conditions in ocean models, Tellus A, 50, 348–367, https://doi.org/10.1034/j.1600-0870.1998.t01-1-00007.x, 1998.

Otto, D., Rasse, D., Kaplan, J., Warnant, P., and François, L.: Biospheric carbon stocks reconstructed at the Last Glacial Maximum: comparison between general circulation models using prescribed and computed sea surface temperatures, Global Planet. Change, 33, 117–138, 2002.

Peterson, C. D., Lisiecki, L. E., and Stern, J. V.: Deglacial whole-ocean $\delta^{13}C$ change estimated from 480 benthic foraminiferal records, Paleoceanography, 29, 549–563, 2014.

Petit, J.-R., Jouzel, J., Raynaud, D., Barkov, N.I., Barnola, J.-M., Basile, I., Bender, M.L., Chappellaz, J., Davis, M., Delaygue, G., Delmotte, M., Kotlyakov, V.M., Lorius, C., Pepin, L., Ritz, C., Saltzman, E., and Stievenard, M.: Climate and atmospheric history of the past 420,000 years from the Vostok ice core, Antarctica, Nature 399, 429-436, 1999.

Pickett, E. J., Harrison, S. P., Hope, G. , Harle, K. , Dodson, J. R., Peter Kershaw, A. , Colin Prentice, I. , Backhouse, J. , Colhoun, E. A., D'Costa, D. , Flenley, J. , Grindrod, J. , Haberle, S. , Hassell, C. , Kenyon, C. , Macphail, M. , Martin, H. , Martin, A. H., McKenzie, M. , Newsome, J. C., Penny, D. , Powell, J. , Ian Raine, J. , Southern, W. , Stevenson, J. , Sutra, J. , Thomas, I. , Kaars, S. and Ward, J.: Pollen-based reconstructions of biome distributions for Australia, Southeast Asia and the Pacific (SEAPAC region) at 0, 6000 and 18,000 14C yr BP, Journal of Biogeography, 31: 1381-1444. doi:10.1111/j.1365-2699.2004.01001.x, 2004.

Popova, S., Utescher, T., Gromyko, D., Mosbrugger, V., Herzog, E., and François, L.: Vegetation change in Siberia and the Northeast of Russia during the Cenozoic cooling: a study based on diversity of plant functional types. PALAIOS 28, 418–432, 2013.

Prentice, I. C., Sykes, M. T., Lautenschlager, M., Harrison, S. P., Denissenko, O., and Bartlein, P.: Modelling global vegetation patterns and terrestrial carbon storage at the last glacial maximum, Global Ecol. Biogeogr. Lett. 3, 67–76, 1993.

Prentice, I. C., and Webb III, T.: BIOME 6000: reconstructing global mid-Holocene vegetation patterns from palaeoecological records. Journal of Biogeography 25, 997-1005, 1998.

Prentice, I. C., Jolly, D., and BIOME 6000 Participants: Mid-Holocene and glacial-maximum vegetation geography of the northern continents and Africa, Journal of Biogeography 27, 507-519, 2000.

Reutenauer, C., Landais, A., Blunier, T., Breant, C., Kageyama, M., Woillez, M.-N., Risi, C., Mariotti, V., and Braconnot, P.: Quantifying molecular oxygen isotope variations during a Heinrich stadial, Clim. Past 11, 1527-1551, 2015.

Roche, D. M.: $\delta^{18}O$ water isotope in the iLOVECLIM model (version 1.0) – Part 1: Implementation and verification, Geosci. Model Dev., 6, 1481–1491, doi:10.5194/gmd-6-1481-2013, 2013.

Roche, D. M. and Caley, T.: $\delta^{18}O$ water isotope in the iLOVECLIM model (version 1.0) – Part 2: Evaluation of model results against observed $\delta^{18}O$ in water samples, Geosci. Model Dev., 6, 1493–1504, https://doi.org/10.5194/gmd-6-1493-2013, 2013.

Roche, D. M., Dumas, C., Bügelmayer, M., Charbit, S., and Ritz, C.: Adding a dynamical cryosphere to iLOVECLIM (version 1.0): coupling with the GRISLI ice-sheet model, Geosci. Model Dev., 7, 1377–1394, doi:10.5194/gmd-7-1377-2014, 2014.

Schlesinger, W. H., and Andrews, J. A.: Soil respiration and the global carbon cycle, Biogeochemistry, 48, 7–20, 2000.

Seltzer, A.M., Buizert, C., Baggenstos, D., Brook, E.J., Ahn, J., Yang, J.-W., and Severinghaus, J. P.: Does $\delta^{18}O$ of $O_2$ record meridional shifts in tropical rainfall? Clim. Past 13, 1323-1338, 2017.

Severinghaus, J. P., Beaudette, R., Headly, M. A., Taylor, K., and Brook, E. J.: Oxygen-18 of $O_2$ records the impact of abrupt climate change on the terrestrial biosphere, Science 324, 1431-1434, 2009.

Van Campo, E., Guiot, J., and Peng, C.: A data-based re-appraisal of the terrestrial carbon budget at the last glacial maximum, Global Planet. Change 8, 189–201, 1993

Von Caemmerer, S.: Biochemical Models of Leaf Photosynthesis, 2, Csiro publishing, 528–528, 2000.

Waelbroeck, C., Labeyrie, L., Michel, E., Duplessy, J., McManus, J., Lambeck, K., Balbon, E., and Labracherie, M.: Sea level and deep water temperature changes derived from benthic

foraminifera isotopic records, Quaternary Sci. Rev., 21, 295–305, doi:10.1016/S0277-3791(01)00101-9, 2002.

Wang, Y.J., Cheng, H., Edwards, R.L., Kong, X., Shao, X., Chen, S., Wu, J., Jiang, X., Wang, X., An, Z.: Millennial and orbital-scale changes in the East Asian monsoon over the past 224,000 years. Nature 451, 1090–1093, 2008.

Warnant, P., François, L. M., Strivay, D., and Gérard, J.-C.: CARAIB: A global model of terrestrial biological productivity, Global Biogeochem. Cy., 8, 255–270, 1994.

West, J. B., Sobek, A., and Ehleringer, J. R.: A simplified GIS approach to modeling global leaf water isoscapes. PLoS ONE, 3(6):e2447, 2008.

FIGURE 1 – Model-data comparison of the biome distribution based on the dominant PFT simulated by iLOVECLIM for the pre-industrial. The superimposed circles are the data from the BIOME6000 Version 4.2 reconstruction. The biome classification of BIOME6000 have been adapted to match the biomes of CARAIB (see Appendix B - Table B1).

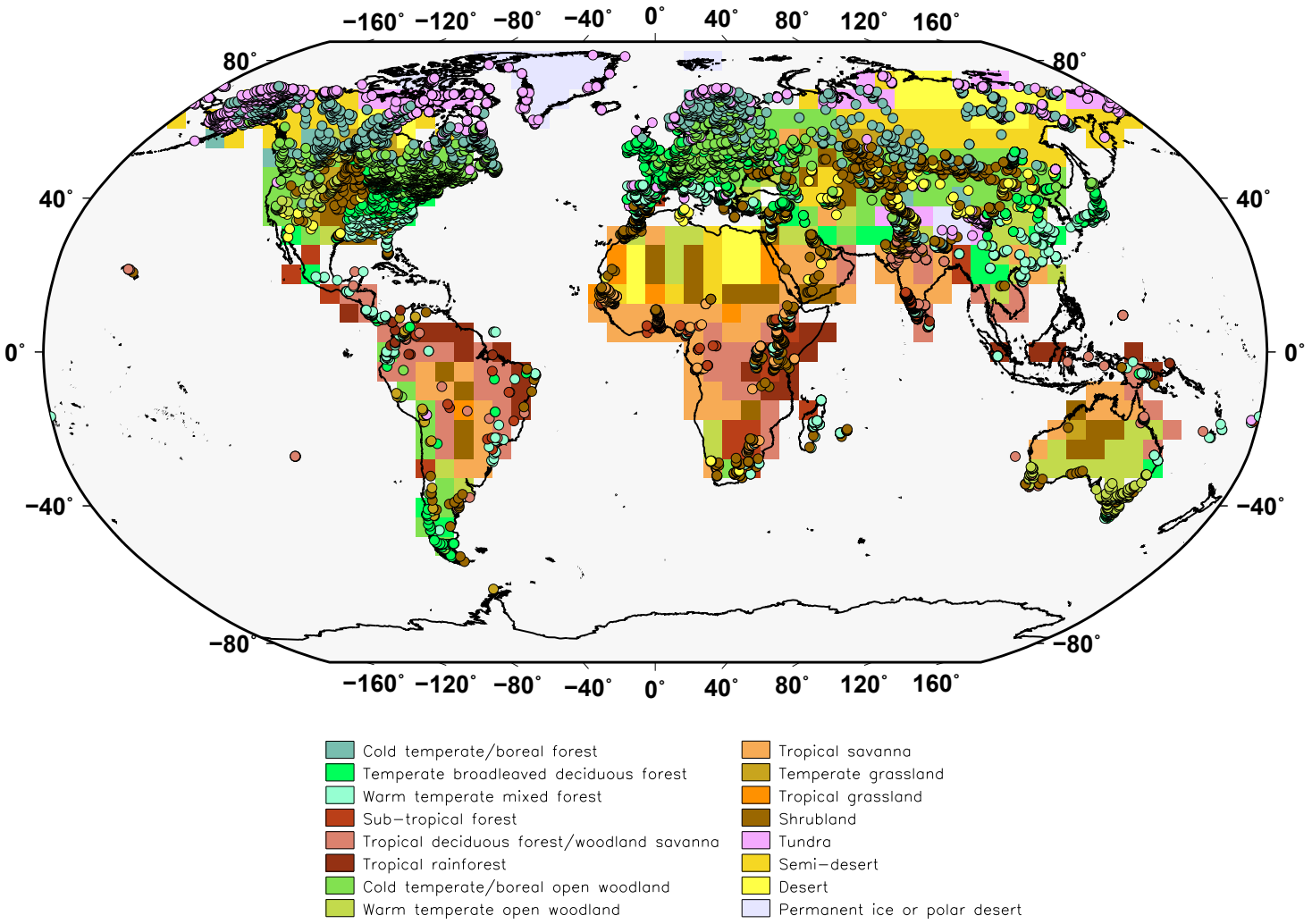


FIGURE 2 – Model-data comparison of the biome distribution based on the dominant PFT simulated by iLOVECLIM for the Last Glacial Maximum. The superimposed circles are the data from the BIOME6000 Version 4.2 reconstruction. The biome classification of BIOME6000 have been adapted to match the biomes of CARAIB (see Appendix B - Table B1).

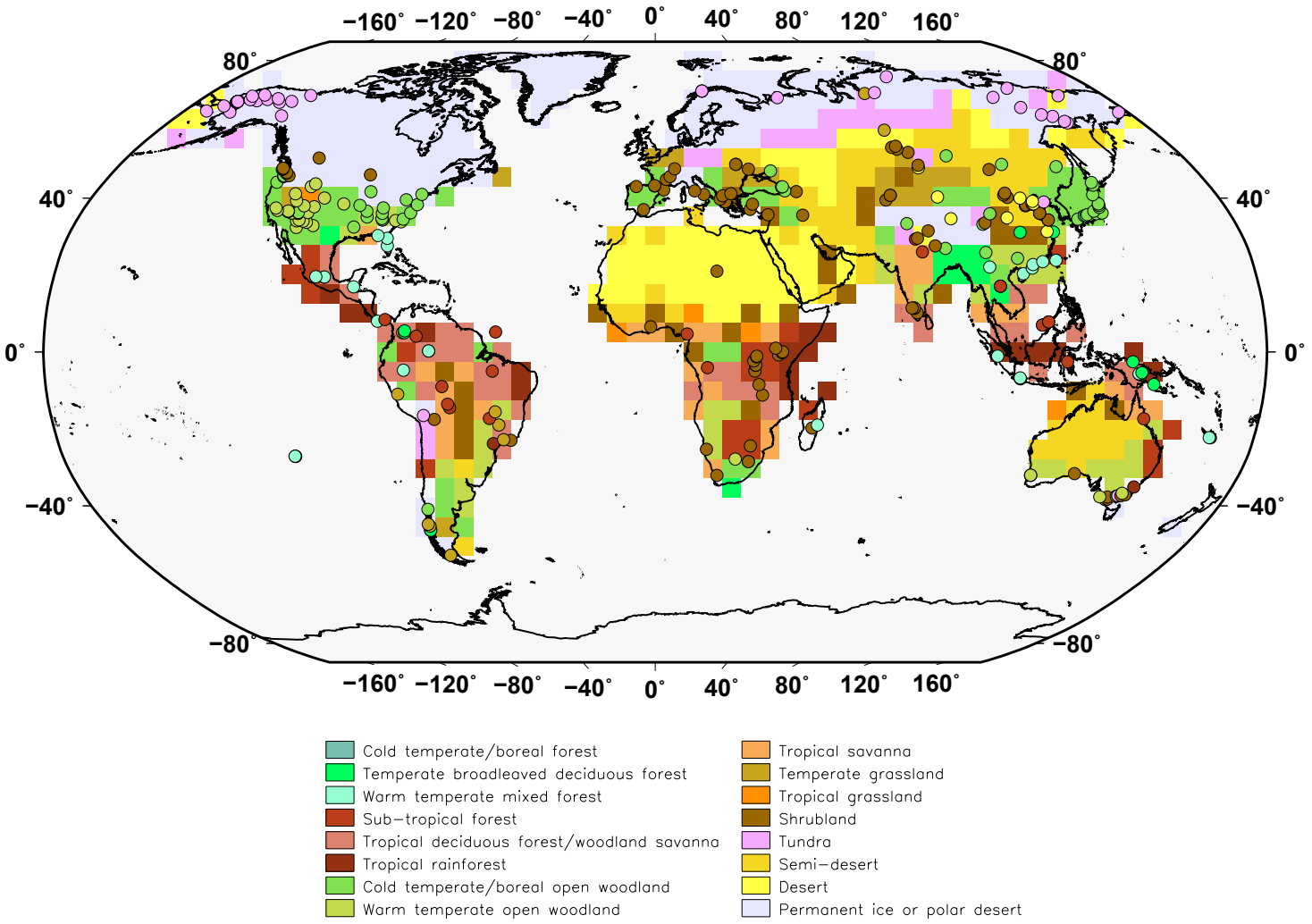


FIGURE 3 – Estimation of the carbon productivity in gC/m²/y during the pre-industrial (top) and during the Last Glacial Maximum (bottom).

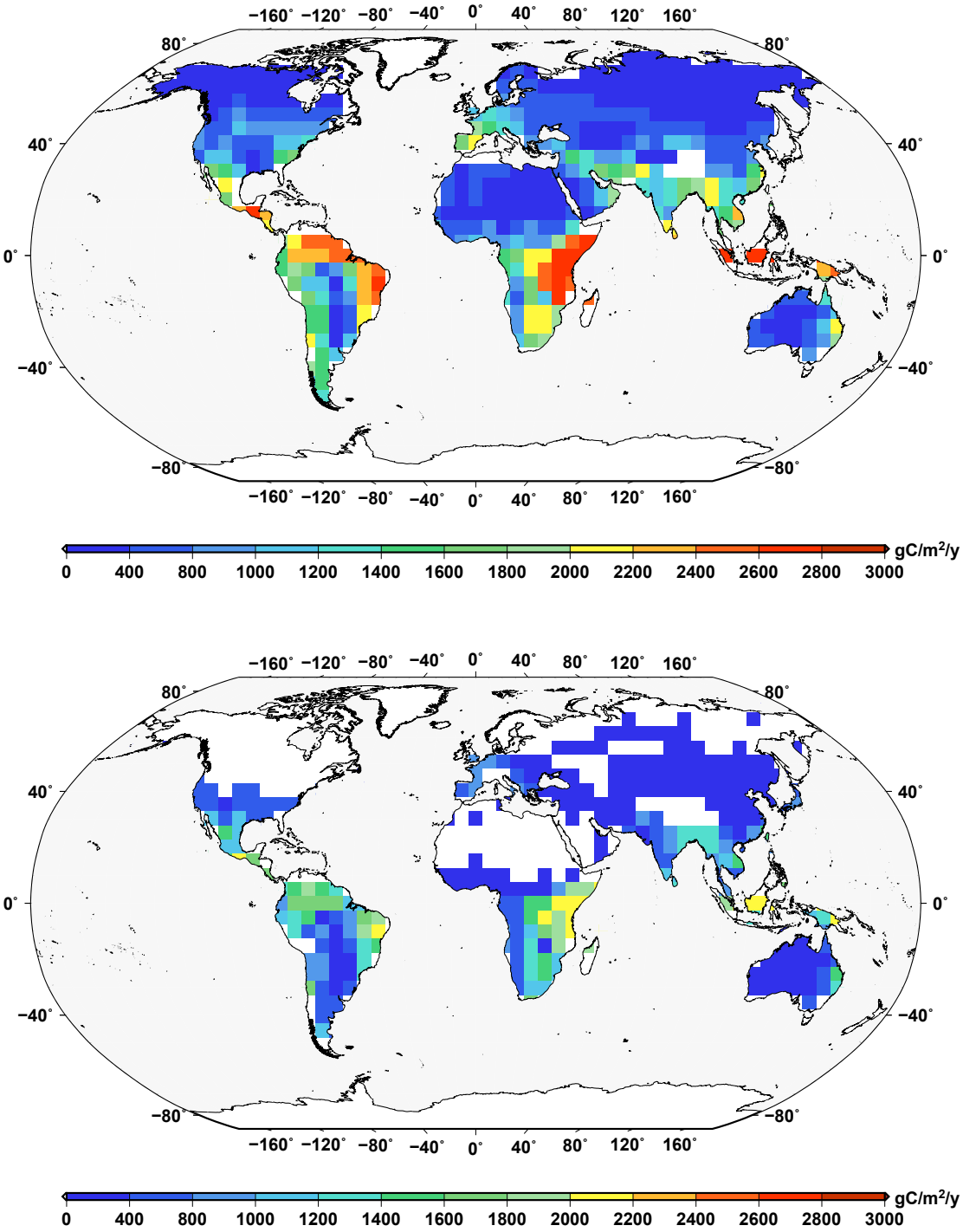


FIGURE 4 – Annual-mean distribution of the $\delta^{18}O_{leaf}$ for the pre-industrial (top) and for the LGM (bottom).

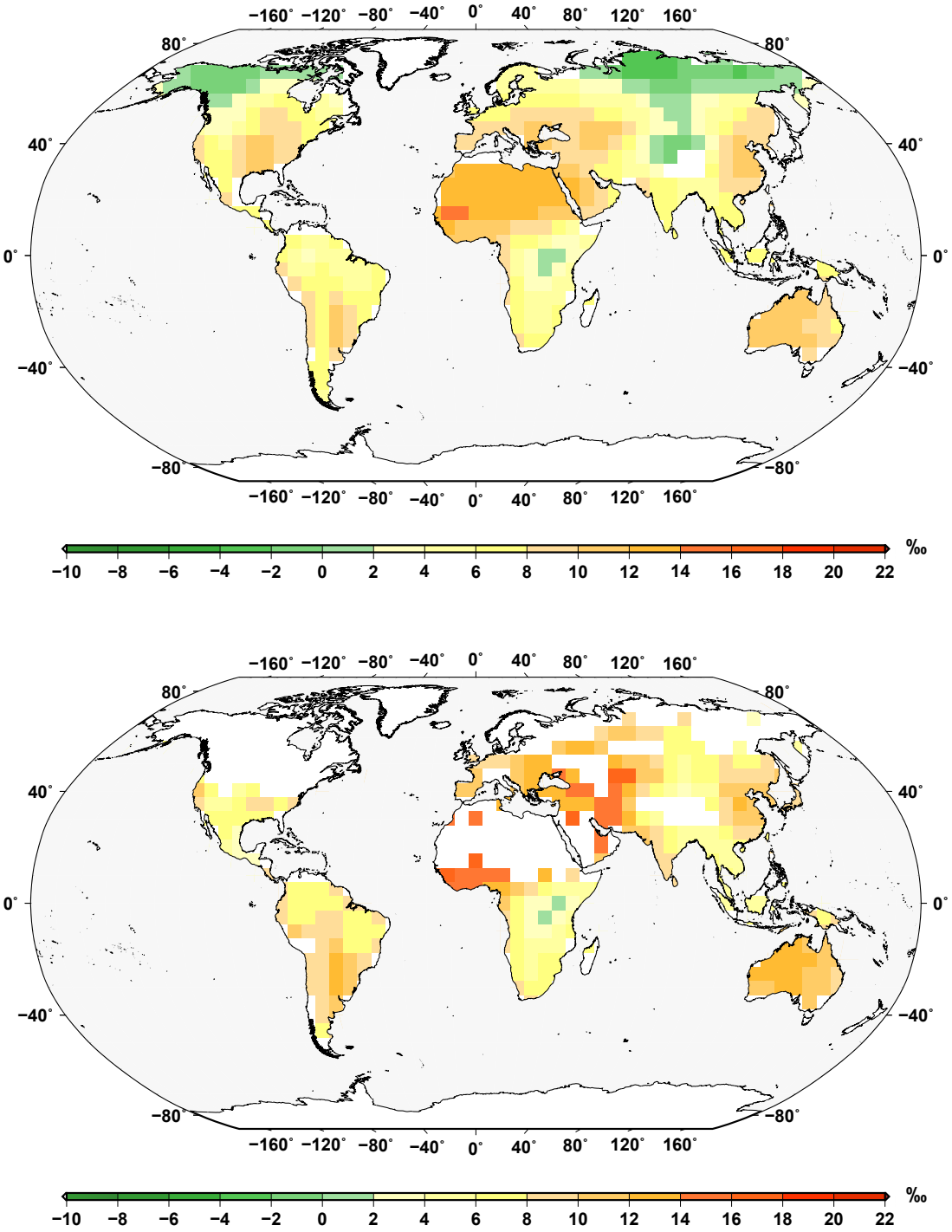


FIGURE 5 – Annual-mean $\delta^{18}$O of vapor (left pannels) and $\delta^{18}$O of groundwater (right pannels) during the control simulation (top) and during the LGM (bottom).

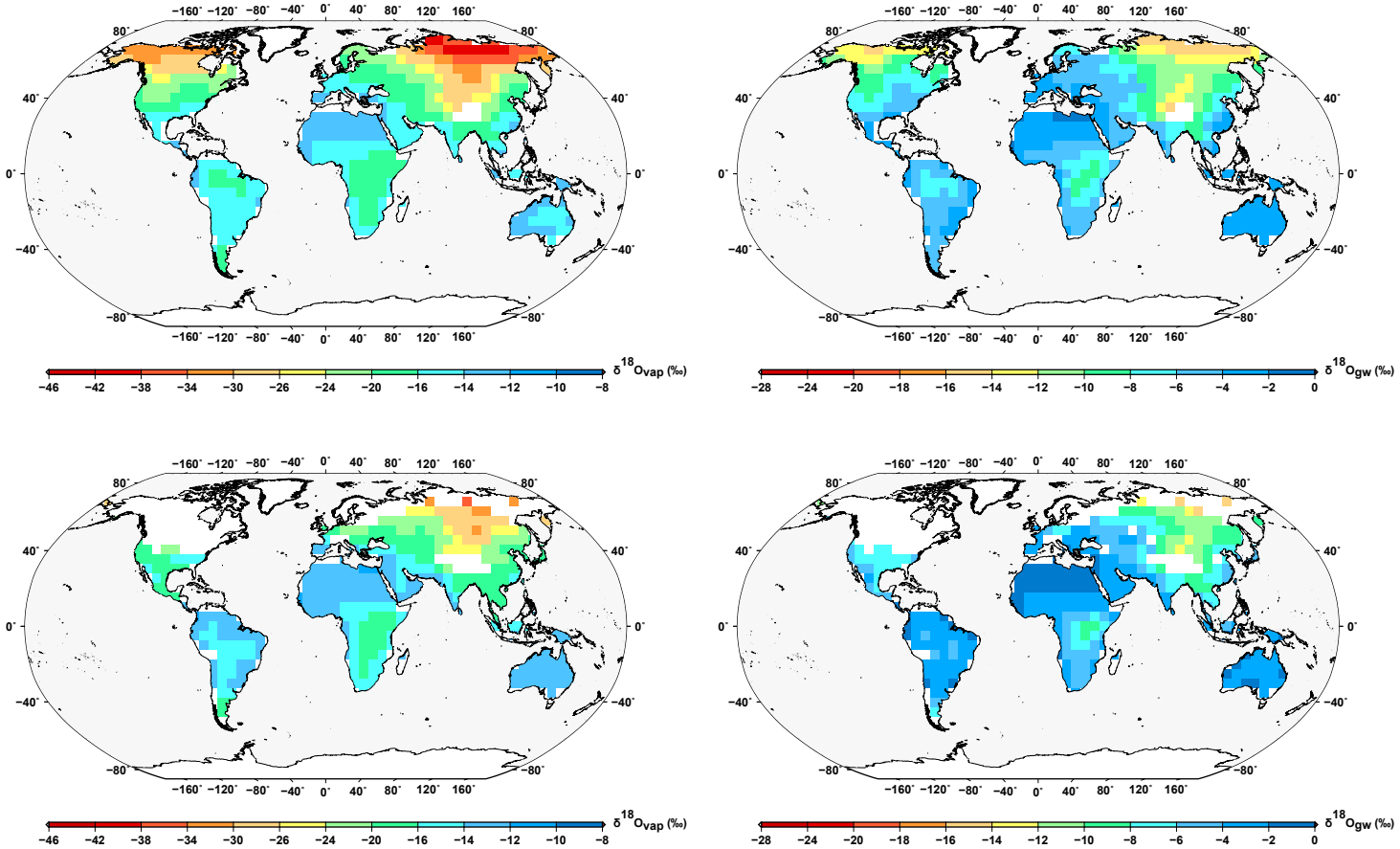


FIGURE 6 – Annual-mean anomaly of the relative humidity near the surface of the leaf between the Last Glacial Maximum and the pre-industrial.

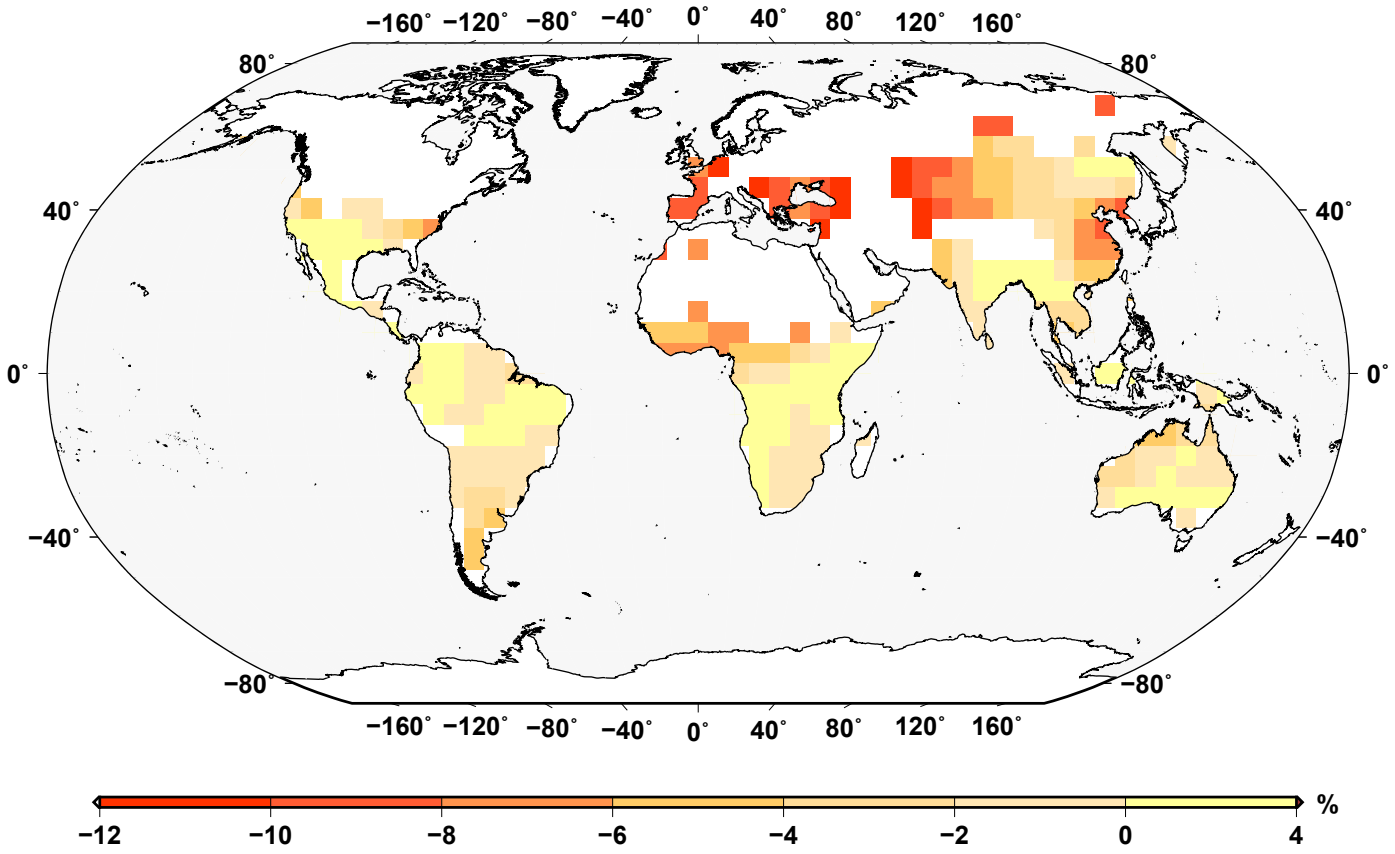
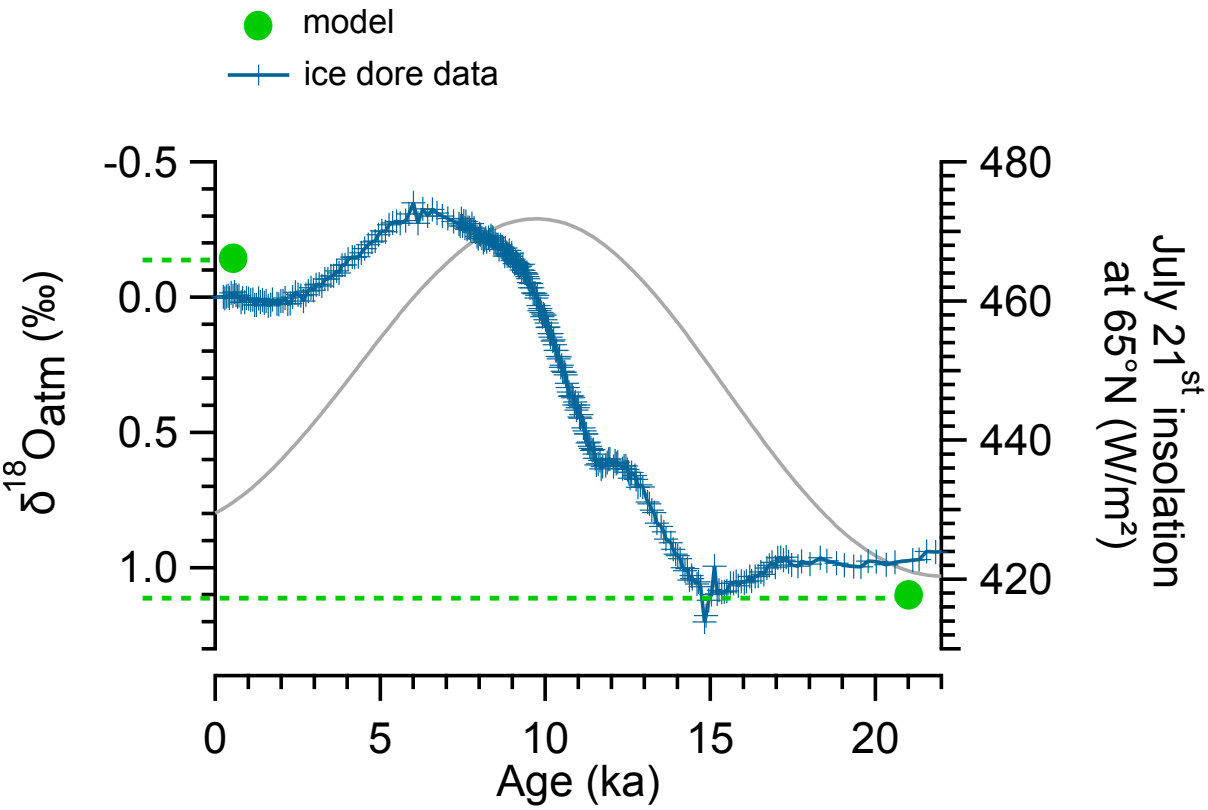


FIGURE 7 – Model-data comparison of the $\delta^{18}O_{atm}$ since the Last Glacial Maximum. The ice core data are represented in blue (Severinghaus et al., 2009) and the simulated $\delta^{18}O_{atm}$ using the iLOVECLIM model are represented with the green dots. The July 21$^{st}$ insolation at 65°N is shown in grey (Laskar et al., 2004).



*Supplement of*

**Model-based estimation of atmospheric oxygen isotopic composition between the Last Glacial Maximum and the Pre-Industrial**

Thomas Extier[1], Didier M. Roche[1,2], Louis François[3], Amaelle Landais[1]

[1] Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, LSCE/IPSL, CEA-CNRS-UVSQ, Université Paris-Saclay, 91191 Gif-sur-Yvette.

[2] Earth and Climate Cluster, Faculty of Earth and Life Sciences, Vrije Universiteit Amsterdam, De Boelelaan 1085, 101 HV Amsterdam.

[3] Unité de Modélisation du Climat et des Cycles Biogéochimiques, UR-SPHERES, Université de Liège, Liège, Belgium.

*Correspondence to:* Thomas Extier (thomas.extier@lsce.ipsl.fr)

## 1. Details on the coupling between the model iLOVECLIM and CARAIB

In order to estimate the distribution of the vegetation, the evolution of the carbon pools and carbon fluxes with CARAIB, several climatic variables are required as input fields: mean temperature, diurnal temperature amplitude, precipitation, air relative humidity, wind speed and percentage of sunshine hours. Most of the time, these variables are taken from meteorological databases (e.g. from the Climatic Research Unit) or can be outputs from GCM simulations as monthly values. They are then interpolated to daily values using a weather stochastic generator embedded in CARAIB.

In this study, we use ECBilt to provide these variables on a daily timescale. But the climatic variables cannot be directly used since the number of days in CARAIB is 365 whereas it is 360 in ECBilt. We use a random number generator to duplicate 5 days within the year in ECBilt (the days picked being different from one year to another to avoid a systematic bias). The climatic parameters are then transmitted on a 5.6° resolution grid of latitude and longitude. The percentage of sunshine hours is not directly calculated in the atmosphere model so the value is derived using the cloudiness field. The diurnal temperature amplitude (maximum – minimum) is also not calculated by the model so we use the mean daily amplitude temperature obtained between 1961 and 2012 from the CRU. The atmospheric $CO_2$ concentration is fixed to 280 ppm for the pre-industrial and to 185 ppm for the Last Glacial Maximum.

iLOVECLIM includes a vegetation and a separated land surface models. The simple vegetation model VECODE has been replaced by the detailed model CARAIB but we kept the original land surface model. It allows in particular the computation of evapotranspiration, soil humidity, river runoff… The albedo and maximum soil humidity content are estimated from the proportion of herbaceous, trees and desertic vegetation type. CARAIB calculates the fraction of each PFT for each pixel so we can obtain the herbaceous cover fraction by grouping the PFTs 1 to 11 and the tree cover fraction by grouping the PFTs 12 to 26. The desertic cover fraction is obtained using the difference between the total pixel cover and the herbaceous and tree cover fractions. CARAIB does not include an ice mask so we use, similarly to the other module in iLOVECLIM, the ice-sheet simulation of Ganopolski and Calov (2011).

From these climatic variables and other environmental parameters, the change in PFT distribution and carbon/oxygen fluxes can be calculated in equilibrium with the climate on the same 5.6° resolution. Even if climatic data do exist upper the Antarctic continent, we choose to not represent it due to the absence of vegetation at the timescale considered.

## 2. Description of the biomes correspondences between pollen data and CARAIB model

| BIOME6000 Common biomes | Equivalencies in CARAIB Biomes |
|---|---|
| Cold deciduous forest | Cold temperate/boreal forest |
| Cold evergreen needleleaf forest | Cold temperate/boreal forest |
| Cool mixed forest | Cold temperate/boreal open woodland |
| Cool temperate evergreen needleleaf and mixed forest | Cold temperate/boreal open woodland |
| Cool evergreen needleleaf forest | Cold temperate/boreal open woodland |
| Desert | Desert |
| Temperate xerophytic shrubland | Shrubland |
| Temperate xerophytic shrubland + temperate xerophytic shrubland | Shrubland |
| Tropical xerophytic shrubland + temperate xerophytic shrubland + temperate grassland + tropical grassland | Shrubland |
| Temperate grassland + temperate xerophytic shrubland | Temperate grassland |

| | |
|---|---|
| Temperate deciduous broadleaf forest | Temperate broadleaf deciduous forest |
| Temperate evergreen needleleaf forest | Temperate broadleaf deciduous forest |
| Temperate evergreen needleleaf open woodland | Warm temperate open woodland |
| Temperate sclerophyll woodland and shrubland | Warm temperate open woodland |
| Tropical deciduous broadleaf forest and woodland | Tropical deciduous forest/woodland savanna |
| Tropical evergreen broadleaf forest | Tropical rainforest |
| Tropical savanna | Tropical savanna |
| Tropical semi-evergreen broadleaf forest | Sub-tropical forest |
| Graminoïd and forb tundra | Tundra |
| Low and high shrub tundra | Tundra |
| Erect dwarf shrub tundra | Tundra |
| Cushion forb tundra + Erect dwarf shrub tundra + Graminoïd and forb tundra + Low and high shrub tundra + Prostrate dwarf shrub tundra | Tundra |
| Warm-temperate evergreen broadleaf and mixed forest | Warm temperate mixed forest |

*Table S1: Description of the BIOME6000 Version 4.2 common biomes (Harrison, 2017) and their equivalencies in the CARAIB model.*

**References**

Ganopolski, A. and Calov, R.: The role of orbital forcing, carbon dioxide and regolith in 100 kyr glacial cycles, Clim. Past, 7, 1415-1425, doi:10.5194/cp-7-1415-2011, 2011.

Harrison, S. P.: BIOME 6000 DB classified plotfile version 1. University of Reading. Dataset. http://dx.doi.org/10.17864/1947.99, 2017.

## 5.2 Etude de la composition isotopique de l'oxygène au cours d'un évènement de Heinrich

Comme présenté en introduction, de nombreuses données issues de données des carottes sédimentaires témoignent de changements climatiques rapides causés par des apports importants en eau douce dans l'océan Atlantique Nord, provenant de débâcles massives d'icebergs et caractérisés par une concentration importante d'IRD dans les carottes sédimentaires [Heinrich, 1988] ; [Broecker et al., 1990]. Des études de modélisation témoignent également de changements dans l'océan Atlantique Nord et dans la circulation thermohaline méridionale Atlantique, pour des périodes passées. La migration de la Zone de Convergence Intertropicale a comme conséquence de modifier la position des zones de précipitations des basses latitudes, liées à la mousson asiatique [Wang et al., 2008] ; [Jiang et al., 2010] ; [Cheng et al., 2009] ou africaine [Tjallingii et al., 2008], et donc de changer la composition isotopique de l'eau météorique. Ainsi l'eau utilisée, soit par la végétation soit par les formations calcaires (spéléothèmes) aura une composition isotopique différente qui se reflètera dans la composition isotopique de l'oxygène des feuilles ou de la calcite.

Bien que l'interprétation du $\delta^{18}O_{atm}$ soit complexe, les études de Landais et al. [2007b] ; Severinghaus et al. [2009] ; Reutenauer et al. [2015] ; Extier et al. [2018] ont mis en évidence que le $\delta^{18}O_{atm}$ présente des variations millénaires liées à des évènements abrupts. On observe une augmentation de la valeur du $\delta^{18}O_{atm}$ lors des évènements de Heinrich, de la même manière que l'augmentation du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes des basses latitudes. Cela passe par une modification de la contribution des isotopes de l'eau des basses et moyennes latitudes à la production d'$O_2$ via la photosynthèse de la biosphère terrestre, à la suite du déplacement de la Zone de Convergence Intertropicale. En lien avec ces changements dans l'hémisphère Nord via les téléconnections atmosphériques et océaniques et le mécanisme de bascule bipolaire, une augmentation de la température antarctique est observée lors des évènements de Heinrich [Stocker and Johnsen, 2003] ; [EPICA Community Members, 2006] ; [Pedro et al., 2018]. Ces évènements de Heinrich traduisent donc une réorganisation du cycle hydrologique des basses latitudes et de l'activité de la mousson et modifient le climat à l'échelle globale.

### 5.2.1 Simulation d'un évènement de Heinrich

D'après les études précédentes comme celle de Reutenauer et al. [2015], les variations millénaires du $\delta^{18}O_{atm}$ semblent contrôlées par un déplacement vers le sud de la Zone de Convergence Intertropicale induisant une modification du cycle hydrologique de basses latitudes. Afin de tester cette hypothèse, plusieurs expériences de simulation d'évènements de Heinrich ont été réalisées en repartant d'une simulation à l'équilibre pour le Dernier Maximum Glaciaire obtenue avec le modèle iLOVECLIM et en ajoutant une certaine quantité d'eau douce dans l'océan Atlantique Nord. D'après l'étude de Roche et al. [2010], les zones d'ajout d'eau douce suivantes ont été testées : la marge de la calotte Fennoscandienne (entre 60 et 70°N), la mer du Labrador et l'embouchure du chenal de la Manche. Le flux d'eau douce ajouté est de 0,2 Sv (1 Sv = $10^6$ $m^3/s$) pendant 500 ans afin d'arriver à réduire complètement la formation d'eaux profondes dans l'Atlantique Nord. Dans le cadre de cette expérience, seule la simulation au niveau de la marge de la calotte Fennoscandienne a été retenue du fait de sa proximité aux zones de formation d'eaux profondes lors du Dernier Maximum Glaciaire dans les mers Nordiques et au Sud de l'Islande (Figure 5.1).

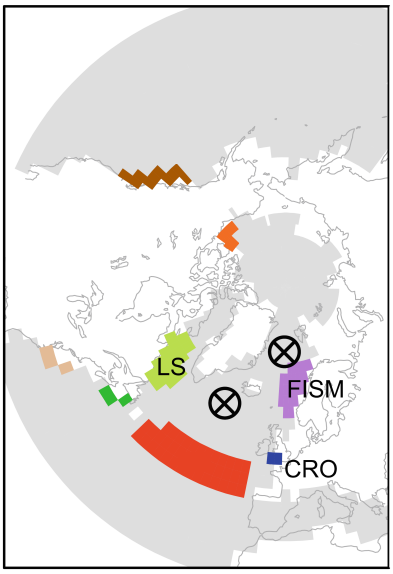



FIGURE 5.1 – Localisation des zones d'ajout d'eau douce dans le cadre d'une simulation de Heinrich (adapté de Roche et al. [2010]). FISM = marge de la calotte Fennoscandienne, LS = mer du Labrador, CRO = embouchure du chenal de la Manche. Les deux cercles noirs barrés montrent les positions approximatives des zones de formation d'eaux profondes il y a 21 ka dans le modèle iLOVECLIM.

L'ajout de cette eau douce a comme conséquence de réduire la formation d'eaux profondes et donc de diminuer la circulation thermohaline nord-atlantique (mers du Groenland, de Norvège et d'Islande). La valeur d'environ 17 Sv calculée au début de la simulation correspond à la valeur moyenne de l'AMOC au Dernier Maximum Glaciaire. Celle-ci diminue ensuite progressivement avec l'ajout d'eau douce jusqu'à atteindre zéro au bout de 350 ans (Figure 5.2). La circulation de l'Atlantique Nord reste ensuite nulle jusqu'à la fin de la simulation.

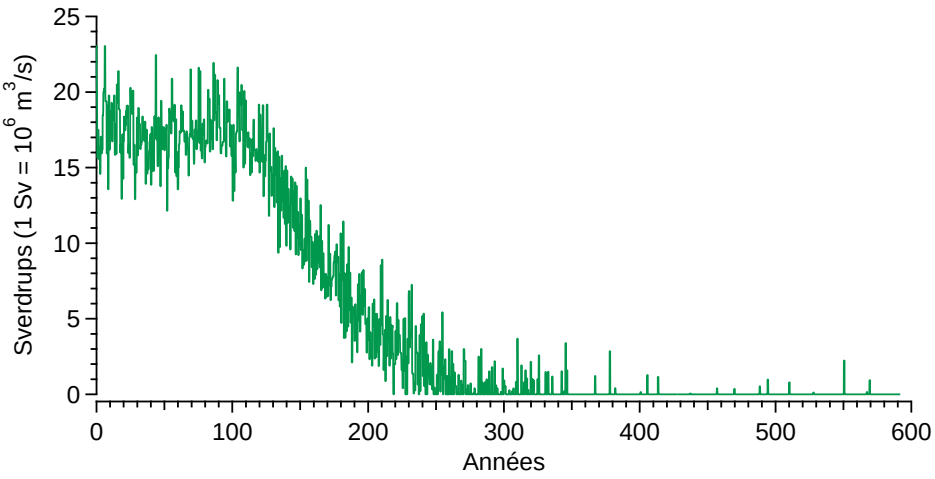



FIGURE 5.2 – Evolution de la circulation thermohaline dans l'Atlantique Nord lors du Dernier Maximum Glaciaire (au début de la simulation) et à la suite d'un ajout en eau douce de 0,2 Sv au niveau de la marge de la calotte Fennoscandienne entre 100 et 600 ans.

Ce flux d'eau douce ajouté dans l'hémisphère Nord a également comme conséquence de diminuer la salinité moyenne des océans. La valeur moyenne au début de la simulation est de 34,70 ‰, puis diminue progressivement avec l'ajout en eau douce dans l'océan Atlantique Nord pour arriver à une valeur moyenne de 34,62 ‰ au bout de 600 ans (Figure 5.3). Cette baisse de salinité a pour conséquence de favoriser le gel des eaux de surface des océans. L'ajout d'un flux d'eau douce à la surface des océans a également comme effet de favoriser la stratification des masses d'eau en isolant les masses d'eau supérieures de celles plus profondes. L'action combinée avec la baisse de salinité tend à refroidir les eaux de surface et à produire de la glace de mer. La température de surface moyenne du globe est d'environ 11,8°C pendant le Dernier Maximum Glaciaire (soit au début de la simulation), en comparaison aux 16,2°C simulés pour le pré-industriel. La température est ensuite plus faible d'environ 1°C lors de l'évènement de Heinrich (avec des valeurs variant entre -0,6 et -1,3°C) (Figure 5.3).

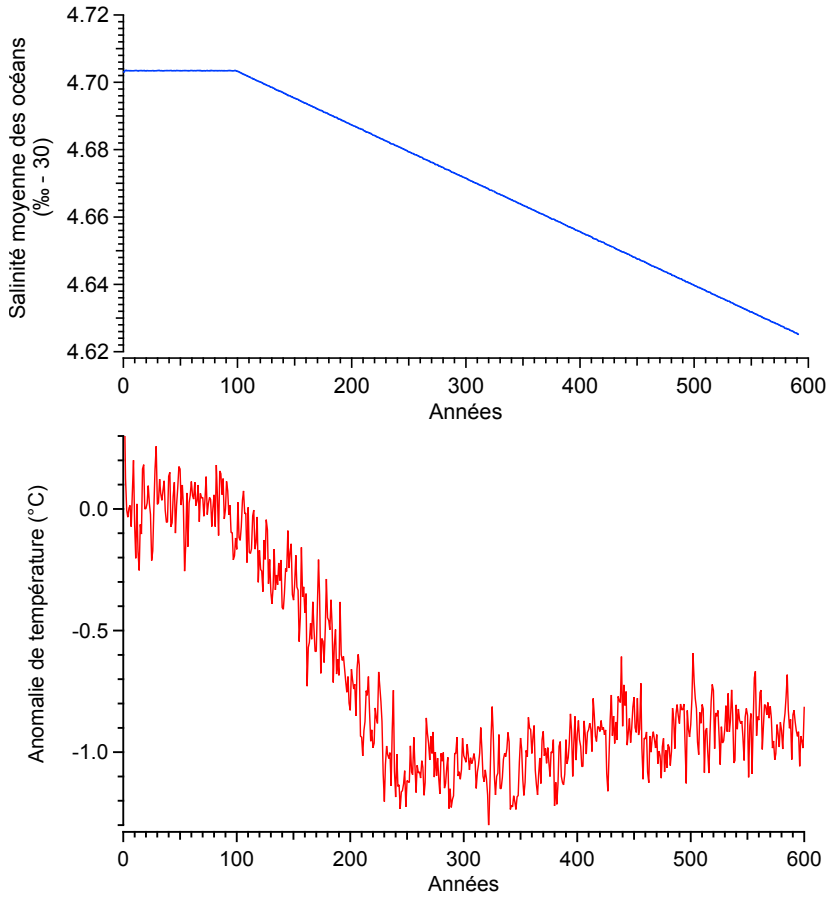



FIGURE 5.3 – Evolution de la salinité moyenne des océans et de l'anomalie de température moyenne par rapport au Dernier Maximum Glaciaire suite d'un ajout en eau douce de 0,2 Sv au niveau de la marge de la calotte Fennoscandienne entre 100 et 600 ans.

### 5.2.2 Evolution de la productivité et de la composition isotopique de l'oxygène

Les variations de la composition isotopique de l'eau dans les feuilles sont directement influencées par les modifications de l'humidité relative au niveau de la surface de la feuille et de la composition isotopique de l'eau météorique comme expliqué dans le Chapitre 1. Cette composition isotopique de l'eau météorique est utilisée pour calculer la composition isotopique de l'eau dans le sol et de l'eau dans la vapeur en considérant un fractionnement isotopique à l'équilibre. Dans le cas d'une modification de la distribution des précipitations et donc du $\delta^{18}O_{météorique}$, le $\delta^{18}O_{vapeur}$ et le $\delta^{18}O_{eaudusol}$ varient également. Les variations du $\delta^{18}O_{météorique}$, $\delta^{18}O_{vapeur}$ et $\delta^{18}O_{eaudusol}$ sont parallèles au premier ordre.

Entre le Dernier Maximum Glaciaire et un évènement de Heinrich, la valeur globale d'humidité, pondérée par les flux d'oxygène pour rendre compte des changements entre les zones les plus productives et les moins productives, augmente légèrement de 59,24 à 59,35 %. Cela se traduit localement par des zones légèrement plus humides en Afrique du Sud, en Australie, sur l'Est de l'Asie et une partie de l'Amérique du Nord et du Sud (Figure 5.4). Des zones plus sèches sont observées en Europe, Asie Centrale et du Sud, Afrique du Nord et nord de l'Amérique du Sud.

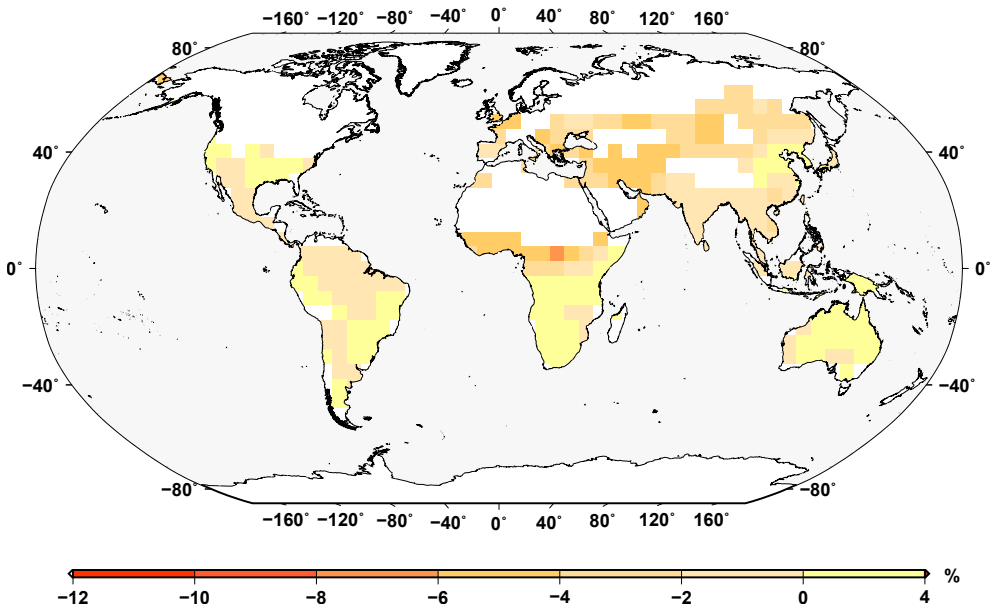



FIGURE 5.4 – Carte des anomalies d'humidité au niveau de la feuille entre un évènement de Heinrich et le Dernier Maximum Glaciaire.

La simulation réalisée avec le modèle iLOVECLIM montre également qu'au cours d'un évènement de Heinrich le $\delta^{18}O_{vapeur}$ est modifié. La valeur globale (aussi pondérée par les flux d'oxygène) augmente légèrement de -15,22 ‰ à -15,18 ‰ avec des changements principalement aux moyennes et hautes latitudes de l'hémisphère Nord. De faibles augmentations sont aussi observées en Amérique du Sud, Afrique du Sud, Indonésie et Nord de l'Australie (Figure 5.5). La composition isotopique de l'eau du sol varie aussi avec une moyenne globale de -4,29 ‰ pendant le Dernier Maximum Glaciaire puis de -4,34 ‰ pendant l'évènement de Heinrich, principalement à cause d'un appauvrissement du $\delta^{18}O_{eaudusol}$ aux basses latitudes de l'hémisphère Nord et Sud (Figure 5.6).

La modification de la composition isotopique de la vapeur d'eau et de l'eau du sol impacte par

la suite la composition isotopique de l'eau dans les feuilles (utilisée pendant la photosynthèse), qui est en partie dûe à ces deux contributions.

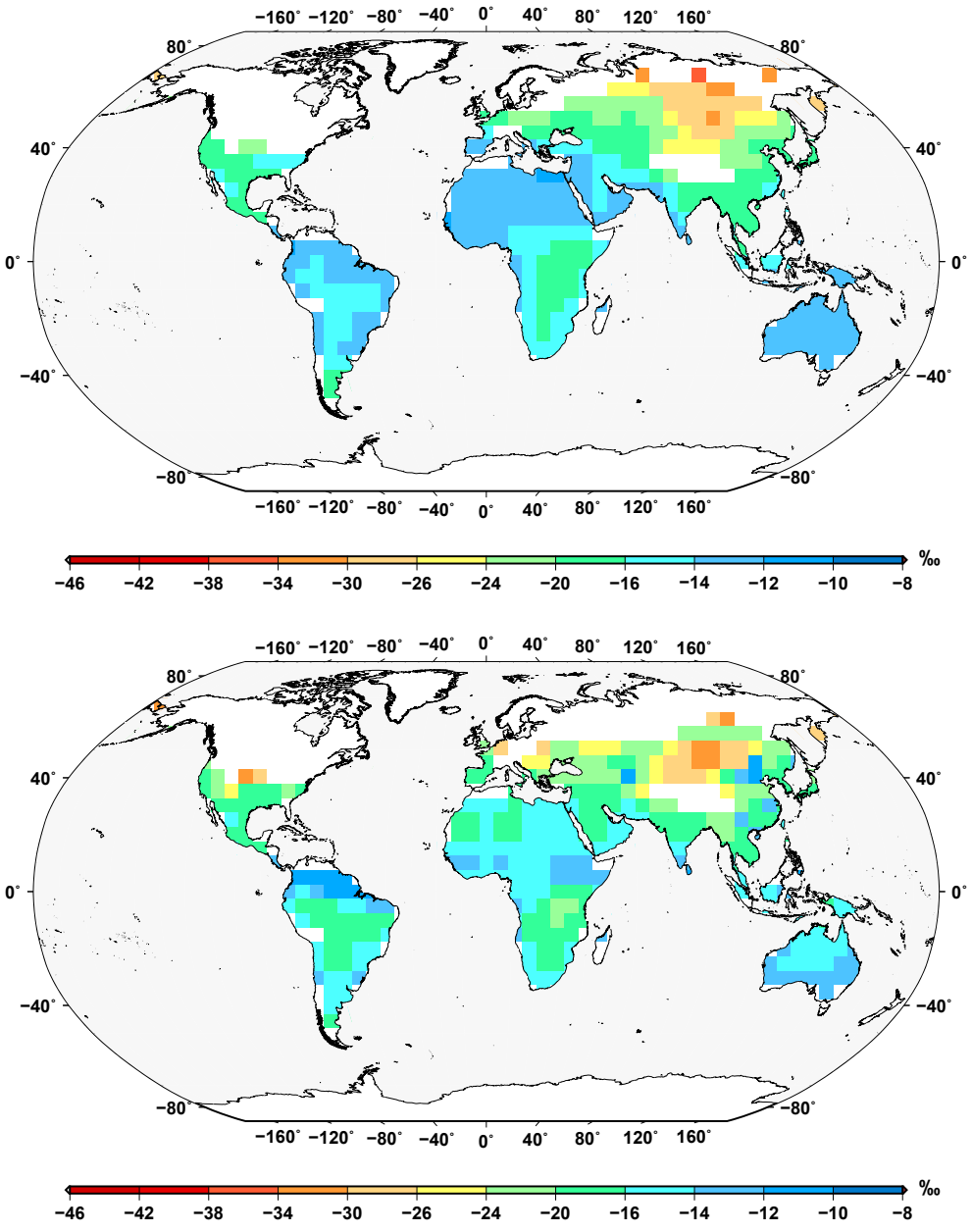



FIGURE 5.5 – Distribution du $\delta^{18}O_{vapeur}$ entre le Dernier Maximum Glaciaire (carte du haut) et un évènement de Heinrich (carte du bas).

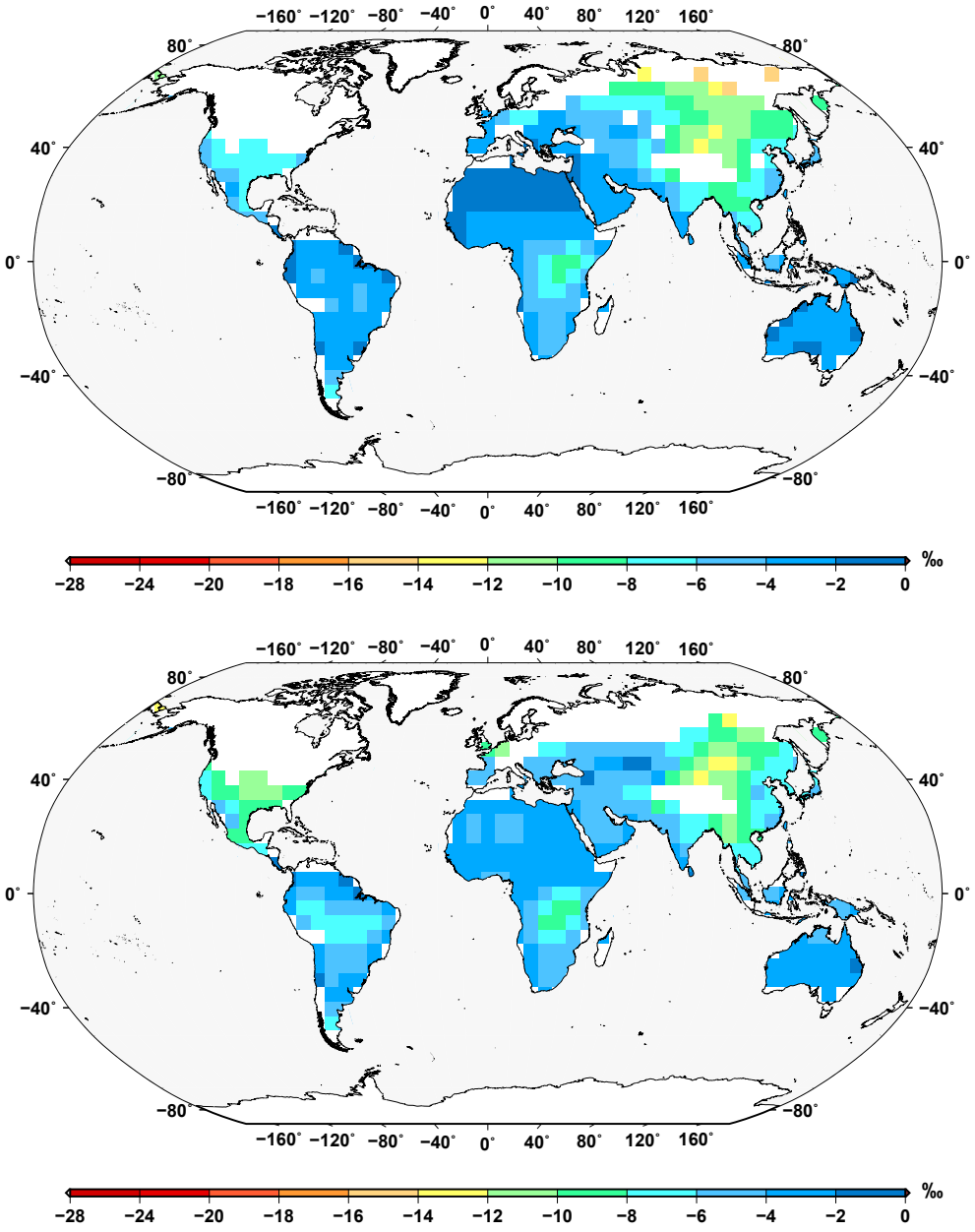



FIGURE 5.6 – Distribution du $\delta^{18}O_{eaudusol}$ entre le Dernier Maximum Glaciaire (carte du haut) et un évènement de Heinrich (carte du bas).

La composition isotopique de l'oxygène dans les feuilles simulée par le modèle iLOVECLIM varie donc à la suite de cet ajout d'eau douce. La valeur globale moyenne du $\delta^{18}O_{feuille}$ est pondérée par le flux de production d'$O_2$ de la biosphère terrestre. Le $\delta^{18}O_{feuille}$ est aussi corrigé des changements dans la composition isotopique de l'oxygène de l'eau de mer, prise comme identique à celle du Dernier Maximum Glaciaire et ne variant pas au cours de l'évènement

de Heinrich [Waelbroeck et al., 2002]. La valeur globale du $\delta^{18}O_{feuille}$ calculée pendant le Dernier Maximum Glaciaire est ainsi de 7,63 ‰ et augmente jusqu'à 7,84 ‰ lors du maximum de l'évènement de Heinrich. Cette augmentation du $\delta^{18}O_{feuille}$ est contrôlée à environ 21 % par les changements de composition isotopique de l'eau météorique. A l'échelle locale, les principales modifications ont lieu aux moyennes latitudes de l'hémisphère Nord et Sud, en lien avec les changements d'humidité au niveau de la surface de la feuille, du $\delta^{18}O_{vapeur}$ et du $\delta^{18}O_{eaudusol}$. Au niveau de l'Amérique du Sud et de l'Asie centrale, la valeur du $\delta^{18}O_{feuille}$ a tendance à augmenter (Figure 5.7) suite à la diminution de l'humidité et à l'appauvrissement du $\delta^{18}O_{vapeur}$. Au contraire sur l'ouest de l'Amérique du Nord, l'Afrique du Sud et l'Australie, le $\delta^{18}O_{feuille}$ diminue légèrement avec la hausse de l'humidité au niveau de la feuille.

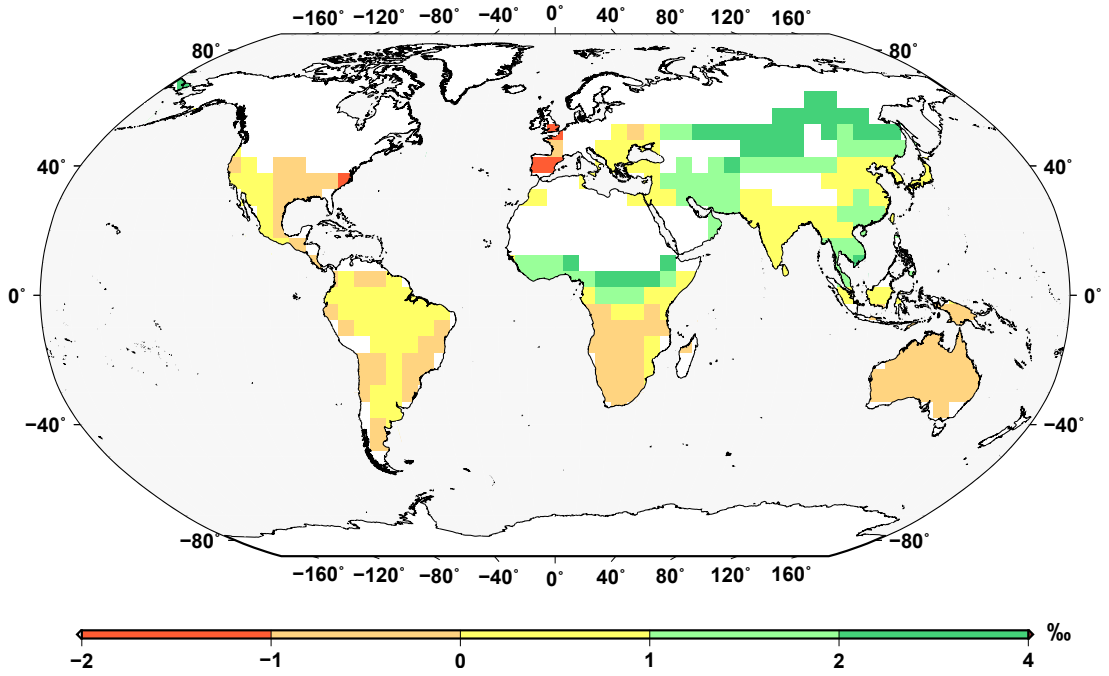



FIGURE 5.7 – Anomalies du $\delta^{18}O_{feuille}$ entre un évènement de Heinrich et le Dernier Maximum Glaciaire.

Comme présenté dans le Chapitre 1, la contribution terrestre au $\delta^{18}O_{atm}$ dépend de la composition isotopique de l'eau dans les feuilles. L'oxygène consommé est associé aux processus de photorespiration, de respiration de Mehler et de respiration dans le noir des feuilles et dans le sol. Pour rappel, le $\delta^{18}O_{terr}$ peut être exprimé de la façon suivante d'après les études de Bender

et al. [1994] ; Hoffmann et al. [2004] ; Reutenauer et al. [2015] :

$$\delta^{18}O_{terr} = \frac{\delta^{18}O_{feuille} + 1}{^{18}\alpha_{respiration}} - 1 \tag{5.1}$$

avec $\delta^{18}O_{feuille}$ la composition isotopique moyenne globale de l'eau dans les feuilles pondérée par la production d'oxygène et $^{18}\alpha_{respiration}$ le coefficient global de fractionnement isotopique associé aux différents processus de respiration.

La valeur moyenne du $\delta^{18}O_{terr}$ obtenue pour la simulation à l'équilibre du Dernier Maximum Glaciaire est de 25,47 ‰. En comparaison, celle obtenue lors d'un évènement de Heinrich est de 25,58 ‰, soit une augmentation de 0,11 ‰ liée aux modifications du $\delta^{18}O_{feuille}$ et du facteur de fractionnement isotopique $^{18}\alpha_{respiration}$ associé aux différents processus de respiration. Cette augmentation est expliquée à 67 % pour l'augmentation du $\delta^{18}O_{feuille}$ qui joue donc un rôle dominant dans les changements rapides du $\delta^{18}O_{terr}$ via la modification du cycle hydrologique. La valeur de l'enrichissement isotopique lors des processus de respiration $^{18}\varepsilon_{respiration}$ (calculée pour rappel comme $^{18}\alpha_{respiration}$-1 * 1000) diminue légèrement de 0,06 ‰ entre le DMG et un évènement de Heinrich et contribue à 33 % de la valeur finale du $\delta^{18}O_{terr}$. Cette diminution du $^{18}\varepsilon_{respiration}$ peut être expliquée par la diminution du facteur de fractionnement associé à la photorespiration $f_{photorespiration}$. Ce facteur dépend de la température au niveau de la feuille et du type de plantes. Ainsi une baisse de la température et une augmentation de la fraction des plantes en C4 par rapport aux plantes en C3 peuvent expliquer cette baisse du $f_{photorespiration}$. Le changement de $^{18}\varepsilon_{respiration}$ peut également être lié à une plus faible valeur de fractionnement isotopique associé à la respiration dans les sols.

Si l'on compare la production d'oxygène par la biosphère terrestre entre l'évènement de Heinrich et le Dernier Maximum Glaciaire, on observe une diminution de la production dans les zones tropicales et des basses latitudes (Asie centrale, Amérique du Sud, Afrique du Sud et Indonésie - Figure 5.8) pendant l'évènement de Heinrich. A l'échelle globale, la $GPPO_2$ terrestre diminue de 337,9 à 314,04 $PgO_2$/an, ce qui est supérieure à la baisse de 376,6 à 365,1 $PgO_2$/an estimée précedemment par Reutenauer et al. [2015].

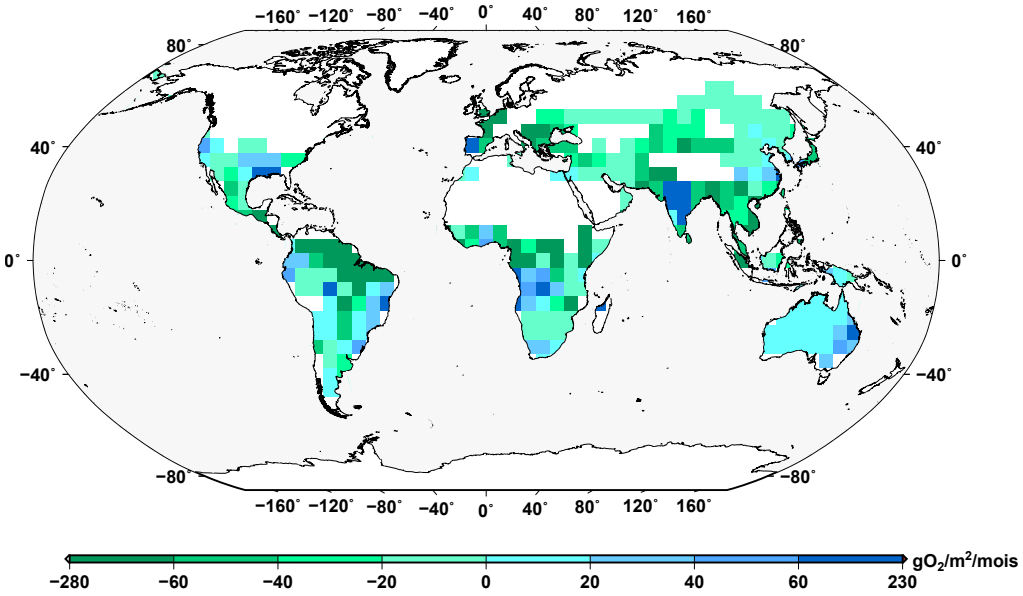



FIGURE 5.8 – Carte des anomalies de distribution de la $GPPO_2$ entre un évènement de Heinrich et le Dernier Maximum Glaciaire.

A partir des résultats précédents, il est possible de calculer la valeur moyenne du $\delta^{18}O_{atm}$ en fonction des échanges d'oxygène entre la biosphère terrestre et marine et la stratosphère d'après Bender et al. [1994] comme présenté dans le Chapitre 1 :

$$\delta^{18}O_{atm} = \frac{(F_{terr} * \delta^{18}O_{terr}) + (F_{mar} * \delta^{18}O_{mar})}{F_{terr} + F_{mar}} - {}^{18}\varepsilon_{stratosphère} \tag{5.2}$$

avec $F_{terr}$ et $F_{mar}$ les flux d'oxygène associés à la biosphère terrestre et marine, $\delta^{18}O_{terr}$ et $\delta^{18}O_{mar}$ les compositions isotopiques dans le domaine terrestre et marin, et ${}^{18}\varepsilon_{stratosphère}$ l'enrichissement isotopique dans la stratosphère correspondant à l'appauvrissement du $\delta^{18}O_{atm}$ par les réactions photochimiques. Sa valeur est fixée constante à 0,4 ‰ [Bender et al., 1994] ce qui est négligeable par rapport à l'effet de la photosynthèse et de la respiration sur le $\delta^{18}O_{atm}$.

Les processus biologiques associés à la biosphère marine n'étant pas pris en compte dans cette version d'iLOVECLIM, il n'est pas possible d'obtenir les estimations de production d'oxygène par la biosphère marine ou de $\delta^{18}O_{mar}$. Les valeurs sont donc prises à partir d'estimations pré-

cédentes dans l'étude de Reutenauer et al. [2015], avec le $\delta^{18}O_{mar}$ pris égal à 25,3 ‰ et la production de la biosphère marine égale à 325 $PgO_2$/an pour le Dernier Maximum Glaciaire comme pour un évènement de Heinrich.

A partir de ces estimations et des valeurs calculées par le modèle il est possible de calculer une valeur moyenne du $\delta^{18}O_{atm}$ de 1,11 ‰ au Dernier Maximum Glaciaire et de 1,16 ‰ pendant le maximum de l'évènement de Heinrich. Cette augmentation du $\delta^{18}O_{atm}$ de 0,05 $\pm$ 0,02 ‰ est légèrement inférieure à celle de 0,07 ‰ obtenue par Reutenauer et al. [2015] et causée essentiellement par une modification du cycle hydrologique des basses latitudes. Le $\delta^{18}O_{atm}$ est impacté par le changement du $\delta^{18}O_{feuille}$ suite au changement du $\delta^{18}O_{météorique}$, sans effet du $\delta^{18}O_{eaudemer}$ sur ses variations. La comparaison aux données mesurées dans les carottes de glace est développée dans la partie suivante.

Le modèle iLOVECLIM est donc capable de reproduire les changements de distribution de la composition isotopique de l'oxygène lors d'un évènement de Heinrich simulé par l'ajout d'eau douce dans l'Atlantique Nord. Ces changements du $\delta^{18}O_{atm}$ sont principalement liés à un changement de la composition isotopique de l'eau météorique suite au déplacement vers le Sud de la Zone de Convergence Intertropicale, avec au deuxième ordre une baisse relative de l'humidité au niveau de la surface des feuilles.

### 5.2.3 Séquence des évènements pendant l'évènement de Heinrich 1

L'objectif de cette section est de déterminer si les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes des basses latitudes sont contrôlées par les mêmes processus à l'échelle millénaire. Pour cela le modèle couplé présenté précédemment est utilisé pour vérifier si le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta^{18}O_{calcite}$ varient de manière synchrone suite à une décharge d'eau douce imposée dans l'Atlantique Nord pour simuler un évènement de Heinrich.

#### 5.2.3.1 Description dans les données

En utilisant les données mesurées dans des carottes sédimentaires de l'Atlantique Nord comme le pourcentage d'IRD (au site ODP980 à 55°N et 14°W [McManus et al., 1999]) , il

est possible de déterminer l'occurrence des évènements de Heinrich. L'évènement de Heinrich 1 est caractérisé par la récurrence de deux débâcles majeures d'icebergs, marquées par deux pics dans le pourcentage d'IRD (Figure 5.9). La période associée à cet évènement de Heinrich peut se décomposer en trois phases successives avec (1) l'épisode de débâcle d'icebergs vers ∼17-16 ka, (2) une phase de réchauffement pendant le Bølling-Allerød (de ∼14,7 à 12,9 ka) et (3) une phase froide pendant le Younger Dryas (de ∼12,9 à 11,7 ka). Ces phases coïncident avec des variations rapides de la circulation méridionale Atlantique (AMOC) comme pendant l'évènement de Heinrich avec un ralentissement de l'AMOC pouvant être causé par un ajout important en eau douce provenant de la Laurentide [Álvarez-Solas et al., 2011] ou de la calotte Fennoscandienne [Toucanne et al., 2010] ; [Stanford et al., 2011] ; [Hodell et al., 2017]. Cette première phase de débâcle d'icebergs caractéristique de l'évènement de Heinrich peut aussi être subdivisée en deux : la première caractérisée par une période dite "sèche" sur l'Amérique du Nord avec un faible niveau des lacs entre 17,5 et 16,1 ka, suivie par une période dite "humide" en Amérique du Nord avec un niveau élevé des lacs entre 16,1 et 14,7 ka [Broecker and Putnam, 2012]. Cela n'est cependant pas vrai partout puisque les spéléothèmes est-asiatiques témoignent d'une période de forte activité de la mousson asiatique entre 17,5 et 16,1 ka suivie d'une période de plus faible mousson.

Durant la première phase entre 17,5 et 16,1 ka, un pic d'IRD est observé dans l'Atlantique Nord. Les variations de la concentration en $CH_4$ mesurées à WAIS Divide peuvent être corrélées aux variations du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques au cours de la dernière période glaciaire comme observé par Wang et al. [2001] ; Cheng et al. [2006]. Ces variations du $CH_4$ reflètent des changements dans la biosphère terrestre (principalement les zones humides) et dans le cycle hydrologique [Brook et al., 2000]. Pendant cette première phase, la concentration en méthane augmente de 50 ppbv (Figure 5.9) reflétant une production des zones tropicales humides plus importante [Rhodes et al., 2015]. Pendant cet intervalle de temps, les valeurs du $\delta^{18}O_{calcite}$ restent quasi-stables et avec une composition isotopique appauvrie, témoignant d'une activité de la mousson importante. Le $\delta^{18}O_{glace}$ mesuré à NGRIP reste lui aussi stable sur cette période, avec seulement des changements de faible amplitude (Figure 5.9), ce qui est cohérent avec les valeurs constantes de d-excess et de $\delta^{15}N$ mesurées dans la même carotte et utilisées comme indicateur de la température groenlandaise [Buizert et al., 2014].

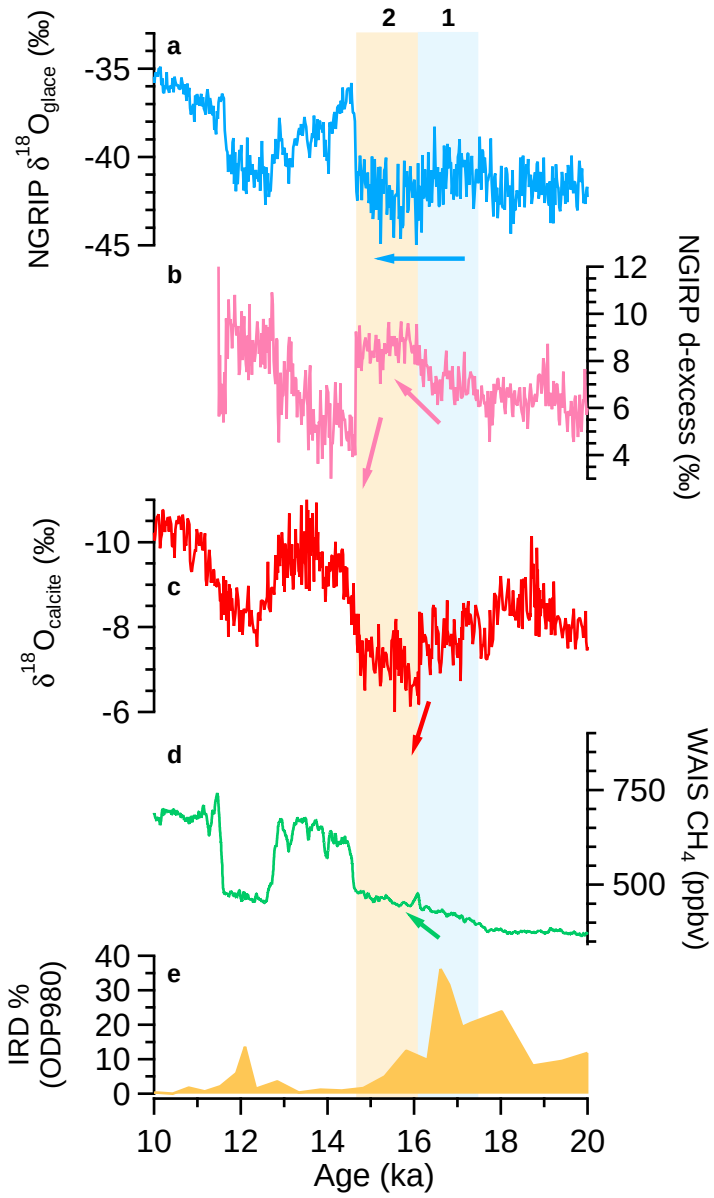



FIGURE 5.9 – Séquence des évènements entre 10 et 20 ka. Différents proxies hautes et basses latitudes sont représentés. (a) L'enregistrement du $\delta^{18}O_{glace}$ de NGRIP [NorthGRIP Community Members, 2004], (b) le d-excess à NGRIP [Landais et al., 2018], (c) la valeur du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques [Cheng et al., 2016], (d) la concentration en méthane à WAIS Divide [Rhodes et al., 2015] et (e) le pourcentage en IRD au site ODP980 [McManus et al., 1999] utilisé comme indicateur des évènements de Heinrich dans l'Atlantique Nord. Les bandes oranges et bleues représentent les deux phases de l'évènement de Heinrich 1.

Cette première phase est donc caractérisée par un apport en eau douce induisant une diminution de la circulation thermohaline Atlantique et une modification du transport de chaleur par les océans. La concentration en méthane augmente suite à une production plus importante des

zones humides, la mousson asiatique est importante et la température Antarctique augmente. La période entre 16,1 et 14,7 ka n'est pas détaillée puisque le seul changement significatif observé est le réchauffement abrupt du début du Bølling-Allerød vers 14,7 ka avec l'augmentation du $\delta^{18}O_{glace}$ au Groenland et la diminution du d-excess (Figure 5.9). De même, le méthane à WAIS Divide et le $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques varient de manière importante à partir de 14,7 ka.

#### 5.2.3.2 Comparaison modèle-données

Les données des différents enregistrements peuvent ensuite être comparés à la simulation réalisée avec le modèle couplé afin de reproduire un évènement de Heinrich similaire à l'évènement de Heinrich 1 il y a 16,1 ka. Les valeurs de production d'oxygène par la biosphère et de composition isotopique de l'oxygène simulées avec le modèle pendant le maximum de l'évènement de Heinrich sont détaillées dans le Tableau 5.1 en comparaison avec les valeurs obtenues au Dernier Maximum Glaciaire.

A la suite de la première phase entre 17,5 et 16,1 ka décrite précédemment dans les données, la période autour de 16,1 ka est marquée par un déplacement vers le Sud du front polaire de l'hémisphère Nord et de la Zone de Convergence Intertropicale, entraînant une modification des zones de précipitation aux basses latitudes. Il en résulte une diminution de l'activité de la mousson est-asiatique comme le témoigne le $\delta^{18}O_{calcite}$ avec une augmentation rapide et abrupte d'environ 2 ‰. Parallèlement, le $\delta^{18}O_{atm}$ mesuré à Siple Dome (permettant une meilleure résolution que l'enregistrement de Dome C sur cette période) présente un augmentation d'environ 0,21 ‰ témoignant d'un changement dans le cycle hydrologique des basses latitudes. Cette augmentation s'explique par la modification de la composition isotopique de l'eau de pluie utilisée par la biosphère terrestre lors de la photosynthèse qui traduit une réorganisation du climat et du cycle hydrologique des basses latitudes.

| | Dernier Maximum Glaciaire | Evènement de Heinrich |
|---|---|---|
| $GPPO_2$ | 337,90 $PgO_2$/an | 314,04 $PgO_2$/an |
| $\delta^{18}O_{vapeur}$ | -15,22 ‰ | -15,18 ‰ |
| $\delta^{18}O_{eaudusol}$ | -4,29 ‰ | -4,34 ‰ |
| $\delta^{18}O_{feuille}$ | 7,63 ‰ | 7,84 ‰ |
| $\delta^{18}O_{terr}$ | 25,47 ‰ | 25,58 ‰ |
| $\delta^{18}O_{atm}$ | 1,11 ‰ | 1,16 ‰ |
| ${}^{18}\varepsilon_{respiration}$ | 17,36 ‰ | 17,30 ‰ |

TABLE 5.1 – Tableau de comparaison des valeurs simulées entre le Dernier Maximum Glaciaire et le maximum d'un évènement de Heinrich.

Toutefois, la plus faible augmentation du $\delta^{18}O_{atm}$ comparativement au $\delta^{18}O_{calcite}$ et l'absence d'effet de seuil s'explique par le fait que le $\delta^{18}O_{atm}$ est un signal global reflétant les changements de productivité de la biosphère et de l'hydrologie dans l'hémisphère Nord et Sud.

Les données du $\delta^{18}O_{atm}$ des carottes de glace peuvent ensuite être comparées avec le $\delta^{18}O_{atm}$ calculé par le modèle. Suite à la décharge d'eau douce dans le modèle, le $\delta^{18}O_{atm}$ simulé présente une augmentation de 0,05 ‰ si l'on compare le maximum de l'évènement de Heinrich avec le Dernier Maximum Glaciaire. Une différence avec le début de la simulation est observée, pouvant être expliquée par le fait que celle-ci n'est pas totalement à l'équilibre. En comparaison avec les données de la carotte de Siple Dome, l'augmentation est de 0,21 ‰ pendant l'évènement de Heinrich 1. Un décalage d'environ 1 ka est de plus observé entre les données et le modèle, pouvant être expliqué par l'incertitude de $\pm$ 2 ka pour la chronologie de Siple Dome sur cette période, construite à partir de la synchronisation du méthane et du $\delta^{18}O_{atm}$ avec la carotte groenlandaise de GISP2 [Brook et al., 2005].

Cette tendance générale d'augmentation du $\delta^{18}O_{atm}$ dans un contexte de début d'augmentation de l'insolation de l'hémisphère Nord s'explique par la présence de cet évènement de Heinrich venant perturber le début de la déglaciation.

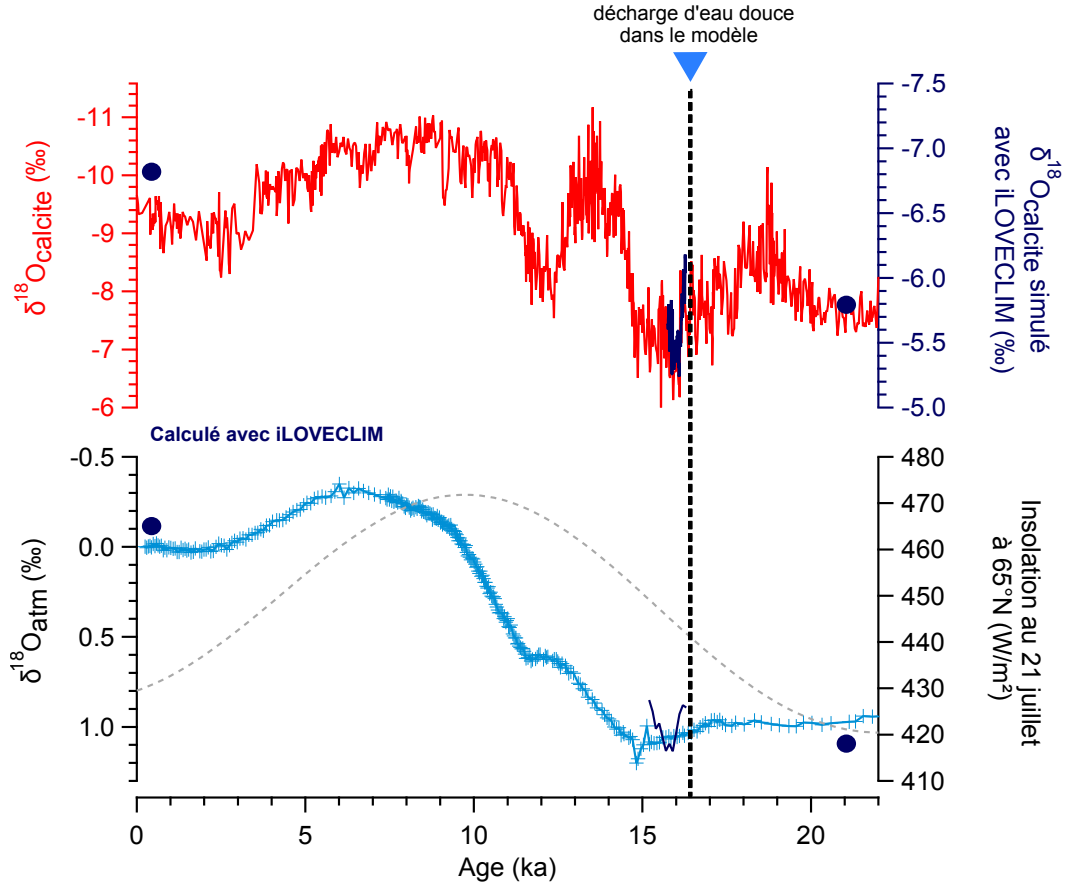



FIGURE 5.10 – Comparaison modèle-données des isotopes de l'oxygène. Sont représentés sur le haut de la figure le $\delta^{18}O_{calcite}$ mesuré dans les spéléothèmes est-asiatiques (en rouge) [Cheng et al., 2016] avec le $\delta^{18}O_{calcite}$ calculé par iLOVECLIM (bleu foncé), et sur le bas de la figure le $\delta^{18}O_{atm}$ mesuré dans la carotte de Siple Dome (en bleu clair) [Severinghaus et al., 2009] et calculé par le modèle (en bleu foncé), avec l'insolation au 21 juillet à 65°N (en gris) [Laskar et al., 2004]. Les ronds en bleu foncé sont les valeurs moyennes calculées par le modèle pour les simulations à l'équilibre du pré-industriel et du Dernier Maximum Glaciaire. Le triangle bleu représente le moment où la décharge en eau douce est ajouté dans le modèle, comme analogue à l'évènement de Heinrich 1.

La valeur du $\delta^{18}O_{atm}$ peut aussi être comparée à celle du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes asiatiques calculée par iLOVECLIM dans la zone sud-asiatique entre 17°N-33°N de latitude et 87°E-116°E de longitude (choisie en suivant l'étude de Caley et al. [2014]). Le $\delta^{18}O_{calcite}$ est calculé

à partir des valeurs moyennes du $\delta^{18}$O des précipitations et de la température obtenus par le modèle dans cette zone, en utilisant l'équation de Kim and O'Neil [1997] pour le facteur de fractionnement isotopique entre la calcite et l'eau et l'équation de Coplen et al. [1983] pour la conversion de l'échelle SMOW (Standard Mean Ocean Water) à l'échelle VPDB (Vienna Pee Dee Belemnite) :

$$\delta^{18}O_{calcite} = 0,97002 * [\delta^{18}O_{précipitationcorrigé} + 18,03 * (1000 * T^{-1}) - 32,42] - 29,98 \quad (5.3)$$

avec $\delta^{18}O_{précipitationcorrigé}$ la composition isotopique de l'eau de pluie corrigée de la composition isotopique de l'eau de mer et T la température moyenne atmosphérique à 2 mètres en Kelvin (choisie ici en étant conscient du décalage possible par rapport à la température dans la grotte).

Le $\delta^{18}O_{calcite}$ calculé dans le modèle présente une augmentation d'environ 0,9 ‰ à la suite d'une décharge en eau douce dans l'Atlantique Nord (Figure 5.10). Cette augmentation se retrouve dans le $\delta^{18}O_{calcite}$ mesuré dans les spéléothèmes est-asiatiques avec 2,1 ‰ d'augmentation autour de 16,1 ka à la suite de l'évènement de Heinrich 1. En comparaison avec l'évolution du $\delta^{18}O_{atm}$ aussi calculé dans le modèle, le $\delta^{18}O_{calcite}$ présente une augmentation synchrone à celle du $\delta^{18}O_{atm}$, puisque tous deux sont impactés par une redistribution des précipitations aux basses latitudes à la suite du déplacement de la Zone de Convergence Intertropicale vers le Sud après un apport en eau douce important dans l'Atlantique Nord.

L'augmentation abrupte de la concentration en méthane de plus de 40 ppbv observée dans les données de carottes de glace vers 16,1 ka peut aussi être comparée à la distribution des zones de végétation les plus productives simulées par le modèle à cette période. Les variations de production de carbone par la biosphère terrestre (Figure 5.11) montrent que les zones tropicales en Afrique du Sud, en Inde, en Indonésie et sur une portion de l'Amérique du Sud voient leur production augmenter à la suite d'un apport en eau douce dans l'Atlantique Nord. Les zones tropicales des basses latitudes étant les plus productives, elles vont contribuer à la hausse du méthane que l'on observe dans les carottes de glace pendant l'évènement de Heinrich 1.

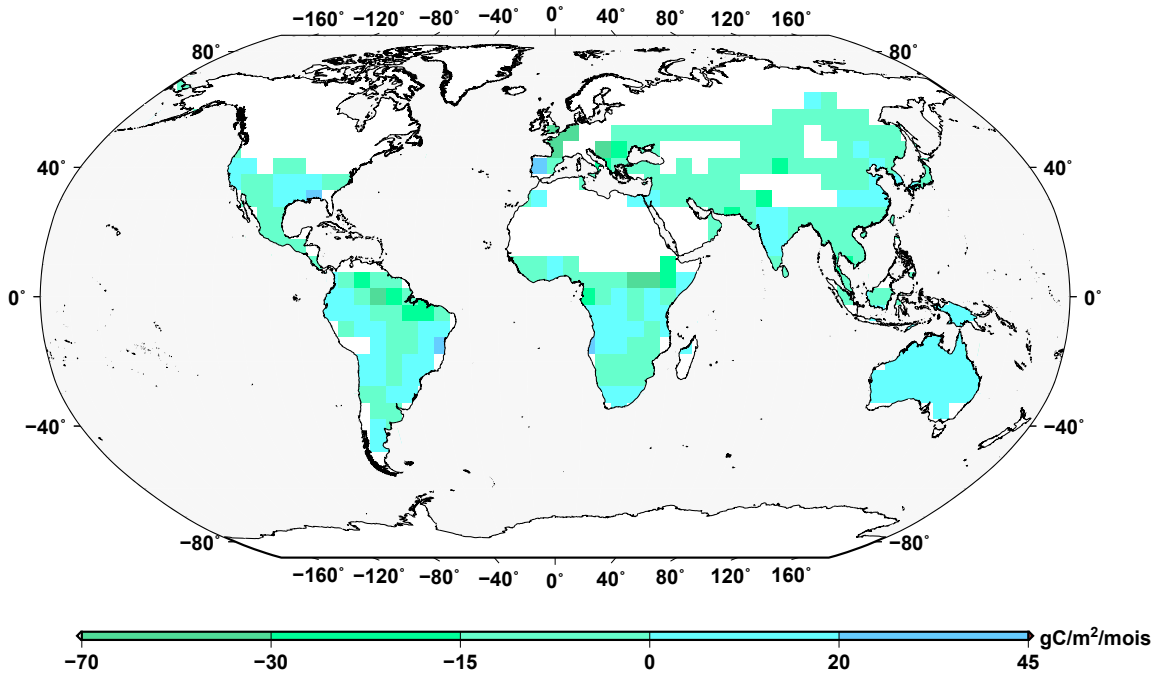



FIGURE 5.11 – Différence de GPP entre un évènement de Heinrich et le Dernier Maximum Glaciaire

## 5.3 Conclusions

L'utilisation d'un modèle couplé incluant les isotopes de l'oxygène permet de reproduire les changements de végétation, de productivité de la biosphère terrestre ainsi que de la composition isotopique de l'oxygène pour le pré-industriel et le Dernier Maximum Glaciaire. La productivité globale de la biosphère a été estimée à 2253 GtC pour le pré-industriel et de 1190 GtC pour le Dernier Maximum Glaciaire, soit une diminution d'un facteur deux entre les deux périodes. Cela s'explique notamment par le changement de distribution de la végétation avec le développement de larges calottes de glace aux hautes latitudes de l'hémisphère Nord et par le remplacement de plantes en C3 par des plantes en C4 au cours du DMG, provoquant une diminution de la production de carbone associée à la photosynthèse. Le modèle permet également de simuler les changements d'humidité relative au niveau des feuilles et les changements de composition isotopique de l'eau de pluie afin d'obtenir une première estimation de la contribution terrestre $\delta^{18}O_{terr}$ au $\delta^{18}O_{atm}$. Entre le pré-industriel et le Dernier Maximum Glaciaire, le $\delta^{18}O_{feuille}$ augmente de 1,36 ‰ en accord avec une diminution de l'humidité au niveau de la

feuille et une modification du $\delta^{18}O$ de l'eau météorique. Le $\delta^{18}O_{atm}$ a ensuite pu être calculé à -0,14 ‰ et 1,11 ‰ pour le pré-industriel et le DMG respectivement. La différence de 1,25 ‰ entre les deux périodes est cohérente avec les estimations obtenues à partir des mesures haute résolution dans les carottes de glace de $\sim$1 ‰.

De plus, lors de l'ajout d'eau douce dans l'Atlantique Nord pour simuler un évènement de Heinrich, le $\delta^{18}O_{atm}$ calculé avec iLOVECLIM augmente à la suite de l'augmentation du $\delta^{18}O_{terr}$. Cela s'explique par le déplacement vers le Sud du front polaire de l'hémisphère Nord et de la Zone de Convergence Intertropicale entraînant une modification de la composition isotopique de l'eau consommée par les plantes lors de la photosynthèse.
Le $\delta^{18}O_{calcite}$ mesuré dans les spéléothèmes est-asiatiques partage les mêmes variations rapides que le $\delta^{18}O_{atm}$ des carotte de glace puisqu'il présente également une nette augmentation autour de 16,1 ka. Cette augmentation se retrouve aussi dans le $\delta^{18}O_{calcite}$ et le $\delta^{18}O_{atm}$ simulés par le modèle lors d'un évènement de Heinrich idéalisé, ici comparé à la séquence des évènements vers 16,1 ka. Les variations synchrones de ces deux proxies confirment donc qu'ils répondent tous deux à des variations abruptes et rapides du cycle hydrologique des basses latitudes.

iLOVECLIM est donc capable de reproduire la composition isotopique de l'oxygène atmosphérique au pré-industriel, au Dernier Maximum Glaciaire et lors d'un évènement de Heinrich idéalisé. Il faut toutefois souligner qu'une des composantes du $\delta^{18}O_{atm}$, le $\delta^{18}O_{mar}$, n'est pas simulé par le modèle (et donc pris à partir d'autres estimations). L'ajout des processus associés à la biosphère marine dans ce modèle feront l'objet d'un développement futur.
La simulation du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes asiatiques sur plusieurs cycles glaciaires-interglaciaires pourrait par la suite être utile pour étudier leur variation en lien avec les changements d'insolation. Cela permettrait notamment de déterminer si les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ sont synchrones et dominées par les modifications du cycle hydrologique des basses latitudes à l'échelle orbitale.

# Chapitre 6

# Etude des variations du $\delta^{18}O_{atm}$ au cours du stade isotopique 5

## 6.1 Définition du dernier interglaciaire

Le stade isotopique 5 ou MIS5 (Marine Isotopic Stage) a été défini par Emiliani [1955] entre ∼130 et ∼73,5 ka sur la base de mesures isotopiques réalisées sur des foraminifères provenant de plusieurs carottes sédimentaires de l'océan Atlantique et Pacifique. Puis, à partir de l'étude des variations du $\delta^{18}O_{benthique}$ dans ces enregistrements marins, Shackleton [1969] a divisé le stade isotopique 5 en plusieurs sous-stades allant de 5e à 5a (Figure 6.1).

Le MIS5e, aussi appelé Eemien, a été défini sur la base d'un minimum du $\delta^{18}O_{benthique}$ mesuré dans les carottes sédimentaires marines. Il s'étend d'environ 128 à 118 ka et correspond à une période où le niveau marin était entre 4 et 6 mètres plus élevé qu'à l'actuel [Waelbroeck et al., 2002] ; [Thompson and Goldstein, 2005] ; [Kopp et al., 2009]. La reconstitution de la température antarctique par Jouzel et al. [2007] fondée sur les isotopes de l'eau dans la glace suggère des températures supérieures d'environ 3°C (avec un maximum de plus de 4°C au début du stade 5e) par rapport au pré-industriel. L'Eemien est également caractérisé par une dominance de végétation de type arborée (forêt) sur l'Europe entre deux périodes plus froides avec une végétation plus ouverte [Turner and West, 1968] ; [Shackleton et al., 2003].
Les autres périodes du MIS5d au MIS5a sont caractérisées par une baisse progressive de la

concentration en $CO_2$, du niveau marin et des températures antarctiques. Cette tendance générale est entrecoupée de périodes avec une concentration en $CO_2$ et une température un peu plus élevée, en lien avec un minimum de précession. Ces variations sont également observées dans l'enregistrement du $\delta^{18}O$ de la glace obtenu à NGRIP au Groenland, avec des changements rapides dans la composition isotopique associés à des évènements millénaires de type Dansgaard-Oeschger.

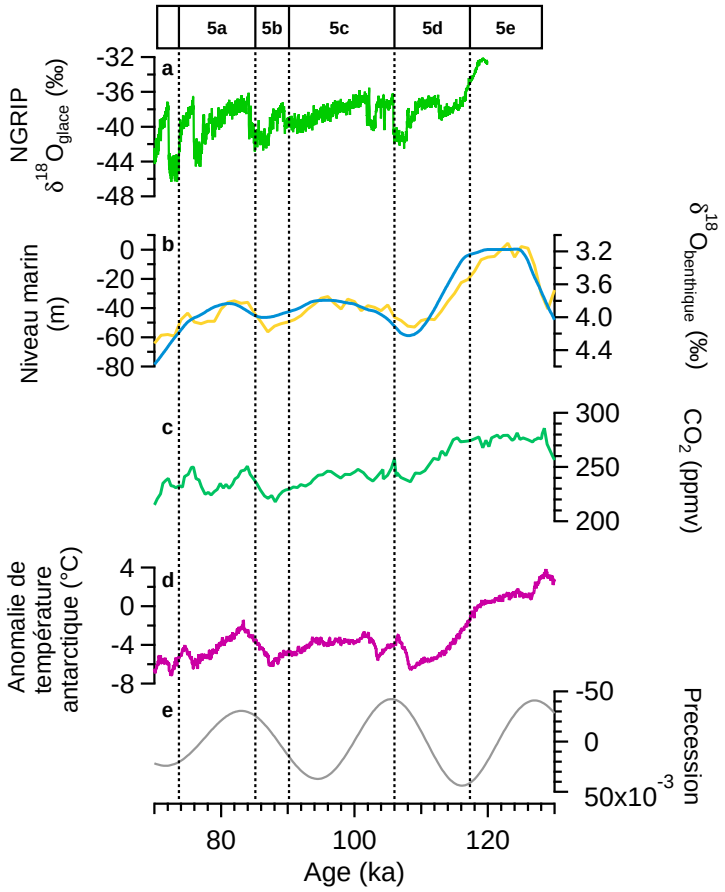



FIGURE 6.1 – Détails des sous-stades du stade isotopique 5. (a) NGRIP $\delta^{18}O_{glace}$ sur AICC2012 [NorthGRIP Community Members, 2004], (b) niveau marin par rapport à l'actuel en bleu [Bintanja et al., 2005] et courbe LR04 du $\delta^{18}O_{benthique}$ en jaune [Lisiecki and Raymo, 2005], (c) concentration en $CO_2$ sur AICC2012 (excepté pour les données de Law Dome, WAIS et Siple Dome) [Bereiter et al., 2015], (d) anomalie de température antarctique sur EDC3 [Jouzel et al., 2007] et (e) précession [Laskar et al., 2004].

L'objectif de ce chapitre est d'arriver à reproduire les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ à l'échelle de plusieurs milliers d'années et d'en étudier les causalités. Les hypothèses faites précédemment lors de la construction de la nouvelle chronologie des carottes de glace vont ici être testées via l'uti-

lisation du modèle iLOVECLIM. Il avait en effet été supposé, à partir des observations faites dans les archives paléoclimatiques, que le décalage entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation au 21 juillet à 65°N n'était pas constant sur l'ensemble des 800 ka mais variait au cours du temps, avec une valeur maximale de décalage de 5 ka uniquement lors des terminaisons glaciaires-interglaciaires en lien avec les évènements de Heinrich. Une deuxième hypothèse avait été faite quant à la similitude des variations du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques sur plusieurs cycles climatiques et lors d'évènements rapides, en lien avec des modifications du cycle hydrologique des basses latitudes.
La période 130-100 ka comprenant le maximum de l'interglaciaire suivi d'un refroidissement progressif du climat sera ici étudiée afin de tester ces hypothèses et de faire le lien avec la nouvelle chronologie des carottes de NGRIP et de Dome C développée pour cette période dans le Chapitre 3.

## 6.2 Séquence des évènements entre la fin de la Terminaison 2 et le stade 5c

Les enregistrements de $\delta^{18}O_{glace}$ à NGRIP et de $\delta^{18}O_{atm}$ à Dome C sont présentés dans cette section sur la nouvelle chronologie développée dans le Chapitre 3. Pour rappel, celle-ci se base sur l'alignement $\delta^{18}O_{atm}$ avec le $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques et permet grâce à une réduction des incertitudes une meilleure comparaison de la séquence de évènements entre les archives.
La Terminaison 2 (entre 136-130 ka) est caractérisée par des enregistrements de type glaciaire : fort pourcentage d'IRD dans l'océan Atlantique Nord témoignant d'évènements de débâcle d'icebergs et faible activité de la mousson asiatique (maximum de $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques). A la suite de cette déglaciation, le maximum interglaciaire du stade 5e il y a 125 ka est marqué par de faibles valeurs du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$, avec une activité importante de la mousson asiatique (Figure 6.2), en lien avec un maximum d'insolation de l'hémisphère Nord. De plus, le $\delta^{18}O_{atm}$ montre un meilleur accord avec l'insolation au 21 juillet à 65°N puisque cette chronologie ne prend pas en compte le décalage constant de 5 ka entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation comme pour l'échelle d'âge AICC2012. Un léger décalage persiste toutefois sur la fin de la Terminaison 2, en lien avec l'influence des évènements de Heinrich sur le $\delta^{18}O_{atm}$

comme montré dans le Chapitre précédent.

Le stade 5d est marqué par une baisse de la température antarctique (diminution du $\delta$D) et groenlandaise (diminution du $\delta^{18}O_{glace}$), par une diminution de 60 m du niveau marin ainsi que par une augmentation de la composition isotopique de l'oxygène atmosphérique en parallèle de celle du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques (Figure 6.2). Cette période de faible insolation de l'hémisphère Nord et de valeur élevée du $\delta^{18}O_{calcite}$ témoigne d'une activité réduite de la mousson asiatique.

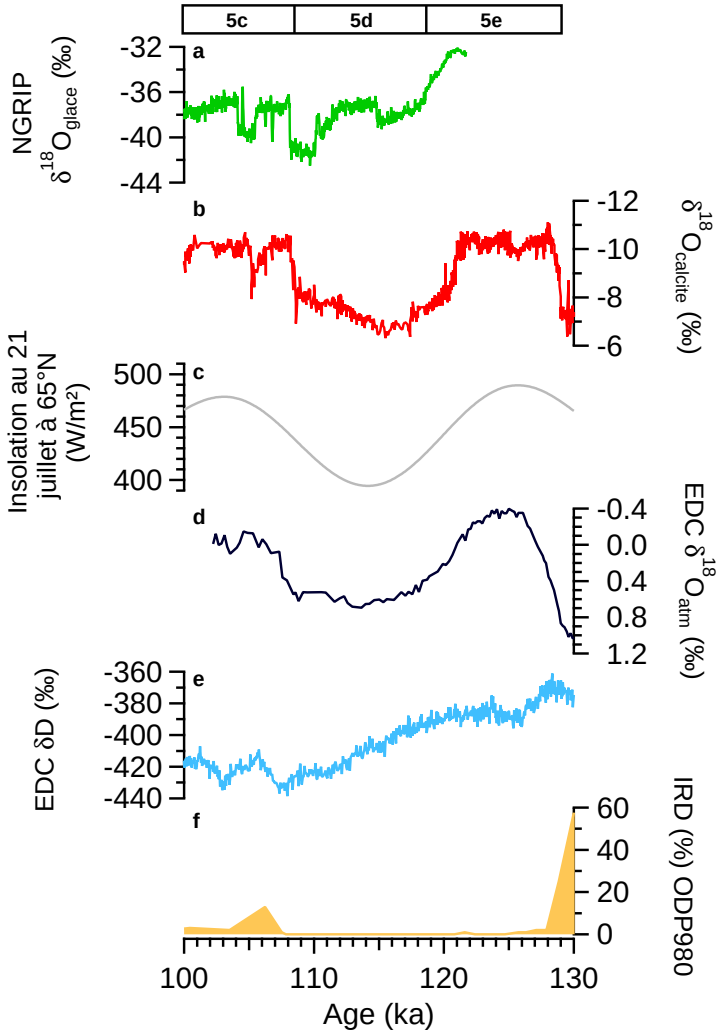



FIGURE 6.2 – Evolution de proxies hautes et basses latitudes entre 130 et 100 ka. Sont représentés (a) le $\delta^{18}O_{glace}$ à NGRIP [NorthGRIP Community Members, 2004] sur la nouvelle chronologie [Extier et al., 2018], (b) les variations du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques [Cheng et al., 2016], (c) l'insolation au 21 juillet à 65°N [Laskar et al., 2004], (d) le $\delta^{18}O_{atm}$ [Landais et al., 2013] ; [Bazin et al., 2016] sur la nouvelle chronologie [Extier et al., 2018], (e) le $\delta$D à Dome C [Jouzel et al., 2007] et (f) le pourcentage d'IRD au site ODP980 [McManus et al., 1999].

Par la suite, la diminution du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ vers des valeurs plus négatives commence à la fin du stade 5d. Ces valeurs restent ensuite quasiment stables pendant le début du stade 5c avec une mousson plus importante, excepté à la suite de l'évènement de Heinrich enregistré à 106 ka dans l'océan Atlantique Nord où le $\delta^{18}O_{calcite}$ présente une augmentation rapide indiquant une baisse de l'activité de la mousson asiatique (Figure 6.2). De la même manière, le $\delta^{18}O_{atm}$ sur la nouvelle chronologie présente une légère augmentation à la suite de cet évènement de Heinrich. La température antarctique quant à elle augmente, en lien avec la baisse de la température au Groenland et le mécanisme de bascule bipolaire via des modifications du transfert de chaleur par l'océan et l'atmosphère.

En complément de toutes ces mesures hautes et basses latitudes qui soulignent un lien entre les variations du climat, du cycle hydrologique des basses latitudes et de la composition isotopique de l'oxygène atmosphérique et de la calcite à l'échelle orbitale et millénaire, le modèle iLOVECLIM peut être utilisé pour tester les différentes hypothèses faites dans les chapitres précédents sur la validité du décalage entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation à 65°N et sur la synchronicité des variations du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques.

## 6.3 Paramètres climatiques de la simulation

La simulation du dernier interglaciaire entre 130-100 ka est réalisée avec le modèle couplé présenté dans le Chapitre 4 afin d'étudier les variations de productivité d'oxygène et du $\delta^{18}O_{atm}$ en lien avec les changements du climat et de la végétation simulés au cours de cette période. Le modèle est initialisé à partir d'une simulation à l'équilibre à 130 ka et les forçages climatiques et orbitaux sont accélérés d'un facteur 10.

La température moyenne globale simulée par le modèle au cours de cette période est représentée en anomalie par rapport à la température moyenne globale au pré-industriel calculée à 16,2°C. Le maximum est observé au cours du stade 5e avec une température supérieure de 0,5 °C par rapport au pré-industriel, qui suit la déglaciation de la Terminaison 2 (Figure 6.3). La température diminue ensuite progressivement pendant le stade 5d (119-110 ka) jusqu'à une valeur similaire de celle au pré-industriel puis inférieure d'environ 1°C. Enfin la température augmente de nouveau légèrement au début du stade 5c (107-100 ka) avec une différence entre

-0,6 et -0,7°C par rapport au pré-industriel. En parallèle, l'anomalie de température antarctique obtenue à partir du modèle et de mesures dans les carottes de glace présente une tendance similaire à celle de la température globale simulée. Cependant, la gamme d'amplitude est plus importante dans les données que dans le modèle avec de +4°C à -6,5°C par rapport à la valeur pré-industrielle. Cette différence d'amplitude s'explique notamment par le fait que le modèle n'est pas capable de reproduire les températures antarctiques du fait de la complexité des mécanismes sur le continent. De plus, la variation rapide de température observée en Antarctique vers 106 ka ne se retrouve pas dans la température simulée par le modèle car celui-ci n'est pas capable de simuler des variations abruptes de type évènement de Heinrich sans forçage imposé. Ces variations de température se font en lien avec les changements d'insolation de l'hémisphère Nord (maximale pendant le stade 5e et minimale pendant le stade 5d) et de concentration en $CO_2$ (autour de 270 ppm pendant le stade 5e et diminuant progressivement jusqu'à 230 ppm il y a 100 ka) (Figure 6.3).

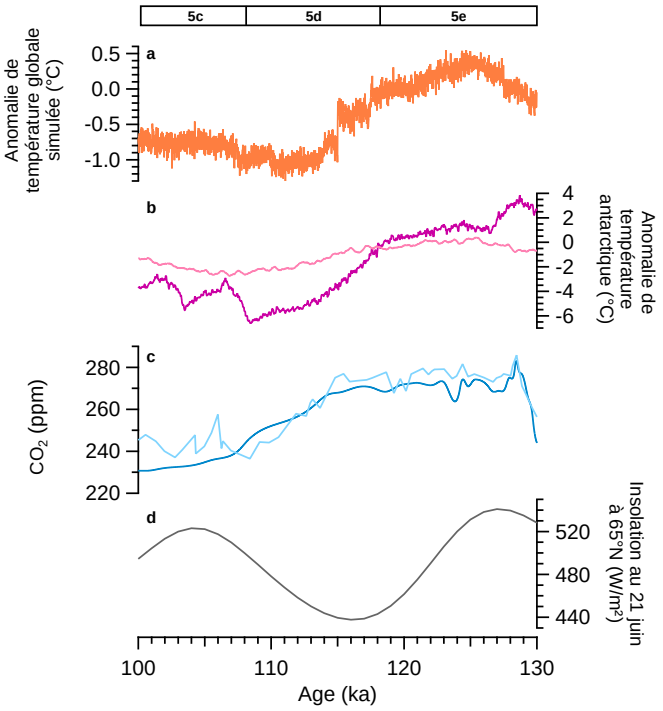



FIGURE 6.3 – Evolution entre 130 et 100 ka de (a) l'anomalie de température moyenne du globe par rapport au pré-industriel simulée par iLOVECLIM, (b) l'anomalie de température antarctique par rapport au pré-industriel obtenue à partir des mesures dans les carottes de glace (en violet) [Jouzel et al., 2007] et simulée dans le modèle (en rose), (c) la concentration en $CO_2$ utilisée dans le modèle (en bleu foncé) et mesurée dans plusieurs carottes antarctique (en bleu clair) [Bereiter et al., 2015] et (d) l'insolation au 21 juin à 65°N utilisée dans le modèle [Berger, 1978].

## 6.4 Simulation transitoire de la végétation et de la composition isotopique de l'oxygène

### 6.4.1 Evolution de la productivité de la biosphère terrestre

#### 6.4.1.1 Résultats du modèle

La distribution de la végétation et la production de carbone et d'oxygène ont été simulées avec le modèle couplé sur la période 130-100 ka. Je présente par la suite des aperçus pris tous les 5000 ans afin d'avoir une image représentative des changements à long terme au cours de cette période (Figures 6.4 et 6.5). La simulation commence à la fin de la Terminaison 2 il y a 130 ka. On retrouve donc sur l'Amérique du Nord une calotte de glace encore présente et sur l'Europe du Nord une majorité de zones désertiques et avec une végétation composée d'arbustes. Les PFTs tempérés sont présents à plus basses latitudes et la forêt équatoriale/tropicale en Amérique du Sud, Afrique du Sud et Indonésie est peu développée au profit de la savane ouverte. Compte tenu de la faible distribution de végétation très productive aux basses latitudes et de l'absence de végétation aux hautes latitudes, la production de carbone et d'oxygène est faible pendant cette période (Tableau 6.1). Il y a 120 ka le climat est plus chaud et humide (maximum interglaciaire) et la végétation change. On observe une diminution des déserts des hautes latitudes au profit de zones semi-désertiques, de prairies ouvertes et de zones arbustives. Il y a également une végétation tempérée plus développée sur l'Europe, l'Asie et l'Amérique du Nord. Aux basses latitudes, la forêt tropicale et subtropicale est plus développée qu'il y a 130 ka, notamment sur l'Amérique du Sud et le Sud de l'Asie. Ces modifications conduisent à une augmentation de la production de carbone et d'oxygène avec un maximum de 170,75 PgC/an et 731,09 $PgO_2$/an (toujours il y a 120 ka). A partir de 115 ka, le climat commence à se refroidir ce qui se traduit par un retour progressif de la tundra et des zones désertiques aux hautes latitudes avant le développement important de zones englacées sur l'Amérique du Nord et sur l'Europe du Nord il y a 110 ka. On retrouve également plus d'espèces arbustives et de prairies, notamment sur l'Europe. Entre 105 et 100 ka le climat simulé est relativement stable (les variations rapides et abruptes du climat ne sont ici pas intégrées dans cette simulation) ce qui se traduit par une végétation composée de forêts tempérées, de régions boisées, et avec des arbustes aux moyennes

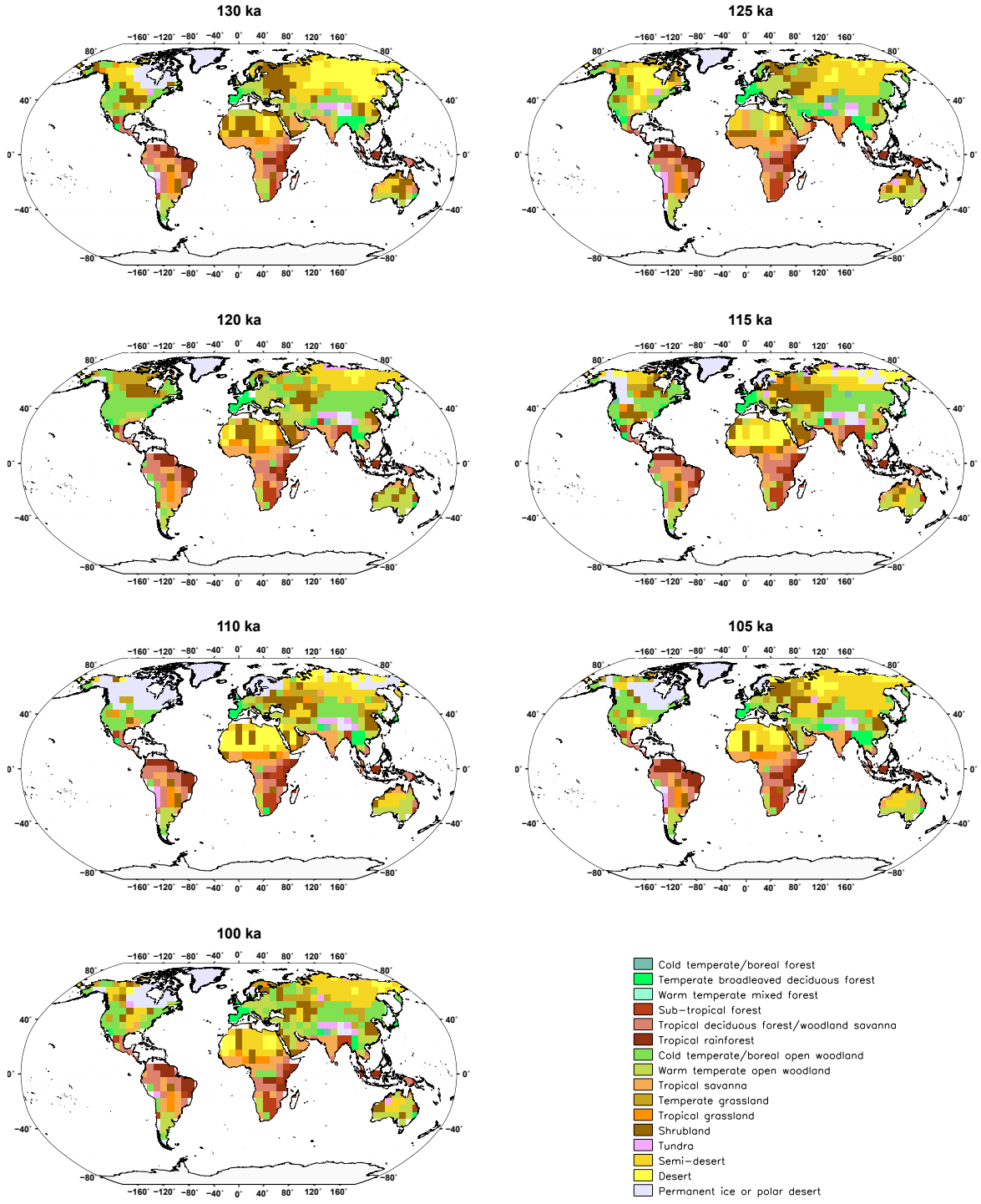



FIGURE 6.4 – Distribution de la végétation simulée entre 130 et 100 ka avec une représentation tous les 5000 ans des biomes dominants (basés sur les PFTs).

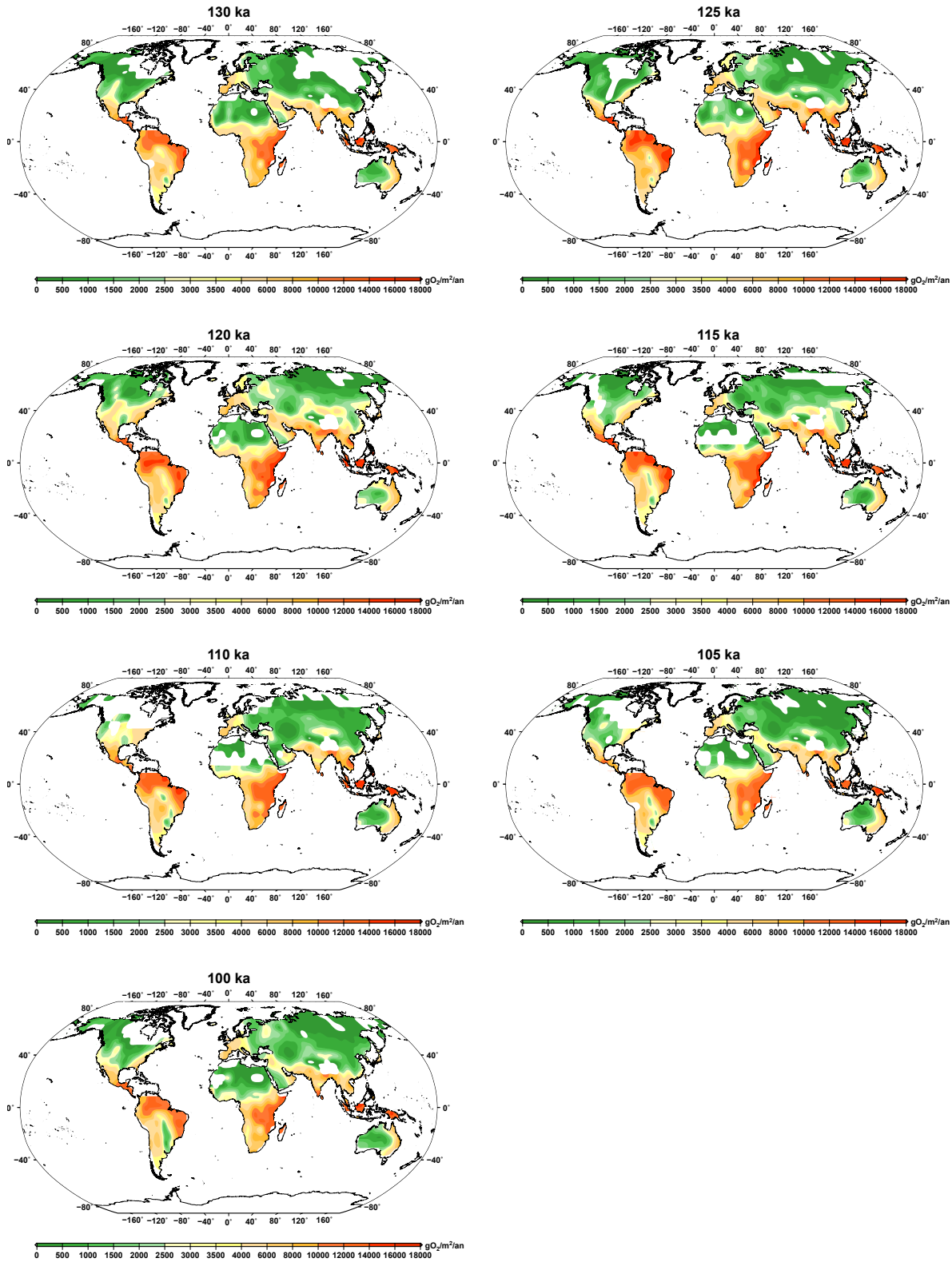



FIGURE 6.5 – Evolution de la production globale en dioxygène par photosynthèse au cours du MIS5 avec un détail tous les 5000 ans. Les résultats présentés ont été interpolés graphiquement à partir de la résolution initiale de 5,6° du modèle en utilisant une interpolation bicubique.

latitudes de l'hémisphère Nord il y a 105 ka. L'Amérique du Nord est quant à elle en partie recouverte de glace et l'Europe du Nord-Est est largement recouverte de zones désertiques à semi-désertiques. Dans les régions équatoriales, les forêts tropicales humides et sub-tropicales dominent. La végétation il y a 100 ka est similaire de celle il y a 105 ka ce qui explique que la production globale de carbone et d'oxygène soient relativement stable au cours de cette période (Tableau 6.1).

| Age (ka) | $\delta^{18}O_{feuille}$ (‰) | GPP (PgC/an) | $GPPO_2$ ($PgO_2$/an) |
|---|---|---|---|
| 130 | 7.30 | 138,66 | 671,16 |
| 125 | 7,39 | 164,80 | 728,01 |
| 120 | 7,38 | 170,75 | 731,09 |
| 115 | 7,40 | 156,04 | 666,36 |
| 110 | 7,48 | 141,70 | 585 |
| 105 | 7,43 | 135,88 | 580,11 |
| 100 | 7,67 | 135,46 | 580,95 |

TABLE 6.1 – Tableau de la production en carbone et oxygène de la biosphère terrestre et de la composition isotopique de l'eau dans les feuilles au cours du stade isotopique 5.

La composition isotopique de l'eau dans les feuilles a été calculée sur la période 130-100 ka en lien avec les changements climatiques et du cycle hydrologique. La valeur globale est pondérée par les flux de production d'$O_2$ et prend en compte les changements du $\delta^{18}O_{eaudemer}$ de Waelbroeck et al. [2002] au cours de cette période. Il y a 130 ka, la valeur globale du $\delta^{18}O_{feuille}$ est de 7,30 ‰ puis de 7,38 ‰ pendant le maximum interglaciaire il y a 120 ka. Pendant la suite du stade 5 entre 115 et 100 ka, marqué par un refroidissement progressif et par une diminution de la production globale de la biosphère terrestre en carbone et oxygène, le $\delta^{18}O_{feuille}$ augmente (Tableau 6.1). Ce changement se reflète aux moyennes latitudes par l'augmentation du $\delta^{18}O_{feuille}$ sur l'Europe centrale et l'Amérique du Nord (Figure 6.6), induit par une diminution

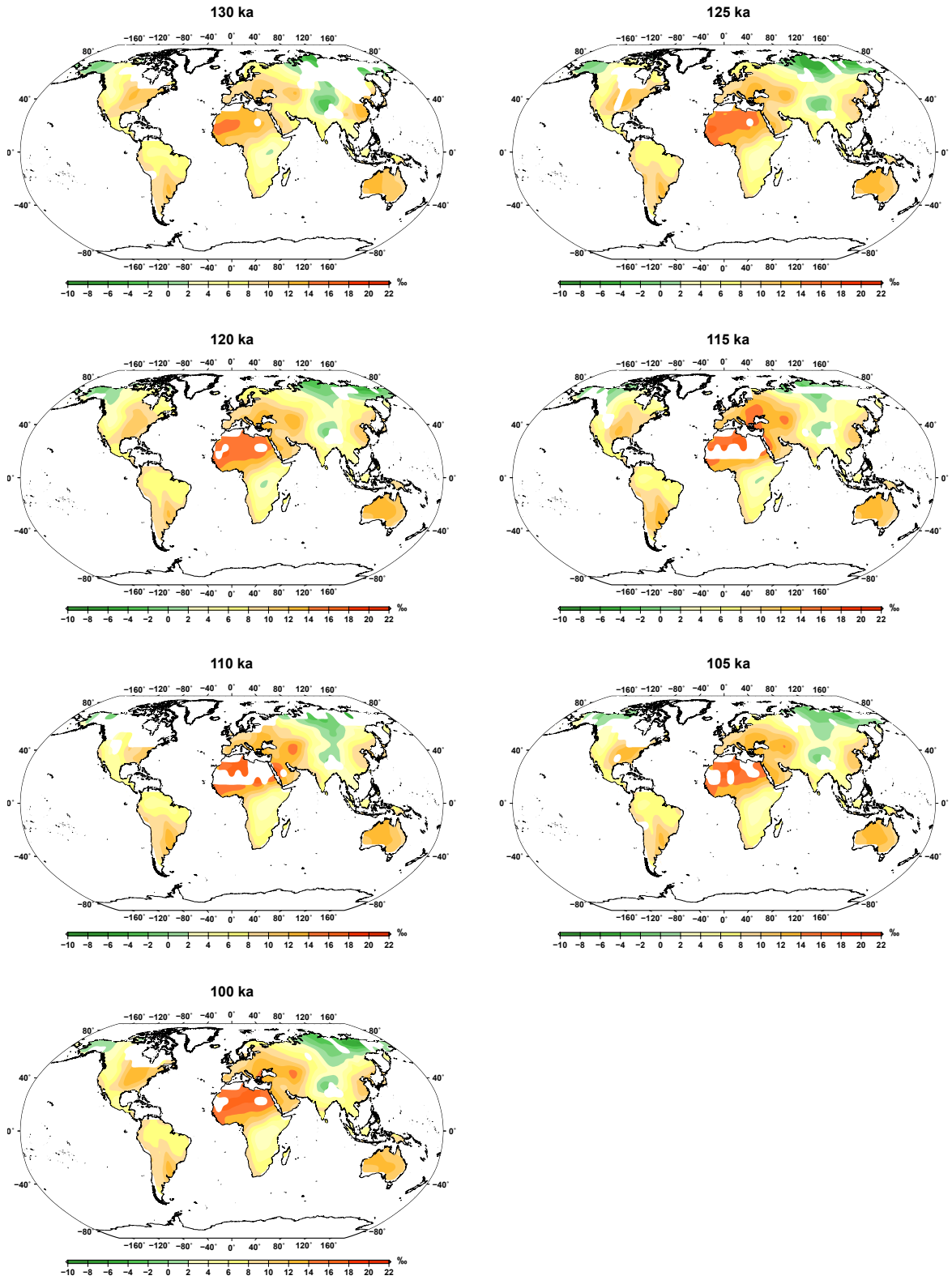



FIGURE 6.6 – Evolution de la composition isotopique de l'eau dans les feuilles entre 130 et 100 ka avec une représentation de la distribution globale tous les 5000 ans. Les résultats présentés ont été interpolés graphiquement à partir de la résolution initiale de 5,6° du modèle en utilisant une interpolation bicubique.

de l'humidité au niveau de la feuille suite à un climat plus sec. Aux plus hautes latitudes, des calottes de glace se mettent en place sur l'Amérique du Nord et l'Europe du Nord. Ces calottes sont à l'origine d'un enrichissement dans la composition isotopique de l'eau météorique qui se traduit par une augmentation du $\delta^{18}O_{feuille}$.

#### 6.4.1.2 Comparaison avec les données

La productivité de la biosphère terrestre simulée par le modèle entre 130-100 ka peut également être comparée à une estimation de la productivité globale de la biosphère basée sur des mesures antarctiques de $\Delta^{17}O$ de $O_2$ (voir Annexe 3 - Article de Brandon et al., en revue dans Nature Communications).

Bien que le modèle soit seulement capable d'estimer les variations de productivité de la biosphère terrestre, les variations simulées entre 130 et 100 ka sont similaires à celles de la biosphère globale reconstruites à partir des carottes de glace (Figure 6.7). Le début du dernier interglaciaire est marqué par une période maximale de productivité globale et en particulier de la biosphère terrestre, caractéristique des périodes chaudes. La contribution de la biosphère terrestre par rapport à la biosphère marine semble plus importante au vu de la courbe de productivité globale. En comparaison au pré-industriel, la productivité pendant cette période est légèrement plus importante. Pendant la suite du stade 5 à partir de 115 ka, la productivité de la biosphère terrestre simulée par le modèle couplé diminue de la même manière que ce qui est observé dans les carottes de glace pour la productivité de la biosphère totale. Cette diminution s'explique notamment par le développement de calotte de glace sur l'hémisphère Nord (Figure 6.4) et donc par une diminution des surfaces libres pour la végétation.
Ces variations de productivité de la biosphère se font en lien avec la concentration en $CO_2$ atmosphérique puisque la productivité de la biosphère est associée à des flux de $CO_2$ via la photosynthèse et la respiration. En effet, le maximum de $CO_2$ pendant l'interglaciaire est associé à un maximum de productivité et inversement autour de 100 ka.

Le modèle est donc capable de reproduire des changements cohérents de dynamique de la végétation et de distribution de la biosphère terrestre sur plusieurs dizaines de milliers d'années en comparaison à des mesures dans les carottes de glace. La forte ressemblance entre la produc-

tivité terrestre simulée par le modèle et la productivité globale estimée à partir des carottes de glace au cours de cette période suggère que les changements de productivité sont dominés par la biosphère terrestre. Toutefois, afin de valider cette hypothèse il faudrait estimer la productivité marine en complément de la biosphère terrestre à partir du modèle couplé.

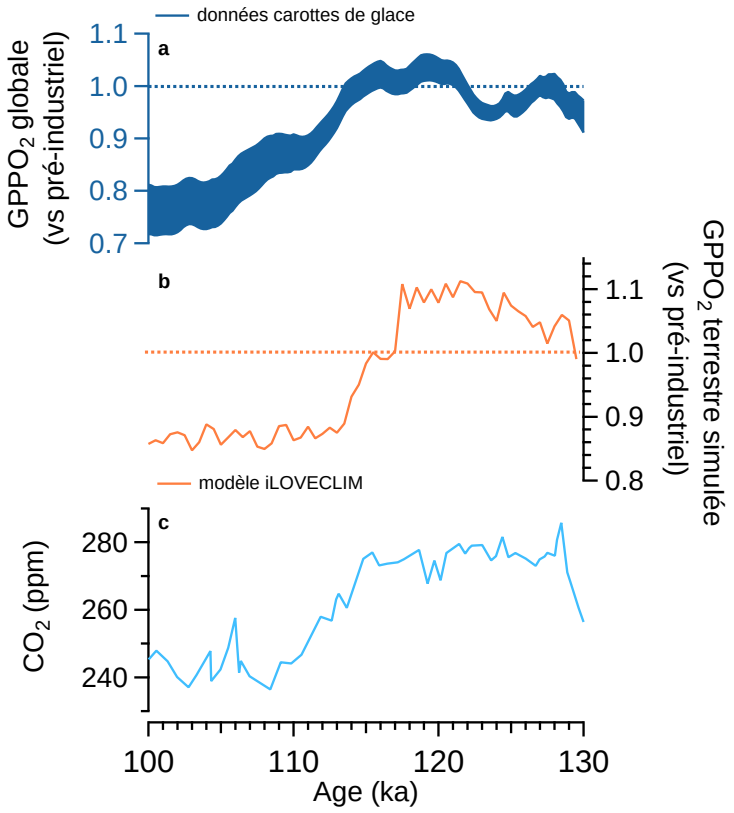



FIGURE 6.7 – Comparaison de la productivité de la biosphère entre le modèle et les données sur la période 130-100 ka. (a) Rapport entre la productivité globale de la biosphère au temps considéré et celle au pré-industriel, obtenu à partir des mesures de $\Delta^{17}O$ de $O_2$ dans les carottes de glace (Annexe 3, Brandon et al., en revue dans Nature Communications), (b) rapport entre la productivité en oxygène par la biosphère terrestre au temps considéré et celle au pré-industriel, calculé par le modèle iLOVECLIM et (c) la courbe composite de $CO_2$ mesurée dans les carottes de glace [Bereiter et al., 2015].

### 6.4.2 Relation entre $\delta^{18}O_{atm}$, $\delta^{18}O_{calcite}$ et insolation

Les sections suivantes reprennent les résultats de la simulation transitoire entre 130-100 ka en essayant de faire le lien entre le $\delta^{18}O_{atm}$, le $\delta^{18}O_{calcite}$ et l'insolation de l'hémisphère Nord. Certaines parties sont toutefois encore exploratoires puisque la période choisie pour réaliser cette simulation n'était pas obligatoirement la plus simple à réaliser et interpréter du fait de la complexité des mécanismes pris en compte.

#### 6.4.2.1 $\delta^{18}O_{atm}$ mesuré vs modélisé

Le $\delta^{18}O_{atm}$ simulé par le modèle couplé à partir des variations de la composition isotopique de la biosphère terrestre peut être comparé à celui mesuré dans la carotte de glace de Dome C, présenté sur la nouvelle chronologie (Figure 6.8).

On observe tout d'abord un décalage d'environ 2,5 ka entre les minimums du $\delta^{18}O_{atm}$ mesuré et simulé pendant le stade 5e (vers 125 ka), pouvant s'expliquer par des incertitudes de datation et par le fait qu'il n'y a pas d'évènement de Heinrich dans le modèle, à l'origine d'un décalage du $\delta^{18}O_{atm}$ pendant la Terminaison 2 comme vu précédemment dans les carottes de glace. La valeur du $\delta^{18}O_{atm}$ augmente ensuite en lien avec la diminution de l'insolation, la hausse du niveau marin et le début d'un refroidissement progressif (toujours avec un décalage entre le $\delta^{18}O_{atm}$ mesuré et simulé). L'amplitude de l'augmentation au cours de cette période est de 1,5 ‰ pour le $\delta^{18}O_{atm}$ simulé, supérieure aux 1 ‰ de changement pour le $\delta^{18}O_{atm}$ mesuré. Le début de l'augmentation est également observé plus tôt dans le modèle que dans les données.

A partir de 109 ka, le $\delta^{18}O_{atm}$ mesuré à Dome C présente à nouveau des valeurs plus faibles, en lien avec les variations orbitales. Le $\delta^{18}O_{atm}$ simulé présente cependant une différence d'amplitude sur cette période, puisqu'à partir de 109,5 ka on observe une diminution de 0,38 ‰, comparée à celle deux fois plus importante avec 0,75 ‰ dans le $\delta^{18}O_{atm}$ des carottes de glace (Figure 6.8). Cette différence d'amplitude pourrait s'expliquer par l'absence de dynamique des évènements rapides dans le modèle, puisque du côté des données on observe en plus du $\delta^{18}O_{atm}$, un changement rapide dans le $\delta^{18}O_{glace}$ de NGRIP et le $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes asiatiques autour de 109 ka. Une légère augmentation de 0,23 ‰ est ensuite observée dans le $\delta^{18}O_{atm}$ des carottes de glace autour de 105 ka suite à l'évènement de Heinrich enregistré dans l'Atlantique Nord, ce qui modifie la composition isotopique de l'eau utilisée pour la photosynthèse par la biosphère terrestre. Le modèle n'étant pas capable de reproduire ces variations rapides sans forçage externe imposé, la courbe de $\delta^{18}O_{atm}$ simulée ne présente pas d'augmentation.

En comparaison avec le $\delta^{18}O_{eaudemer}$, des valeurs de $\delta^{18}O_{atm}$ plus élevées sont observées lors des périodes avec un niveau marin plus bas, comme il y a 130 ka puisque celles-ci sont is-

sues du $\delta^{18}O_{eaudemer}$ via des processus de fractionnement. Puis il y a 123 ka, le minimum de $\delta^{18}O_{eaudemer}$ correspond à un minimum de $\delta^{18}O_{atm}$. Sur la suite du stade 5d et 5c, les variations du $\delta^{18}O_{eaudemer}$ n'expliquent qu'en partie celles du signal de $\delta^{18}O_{atm}$ puisque l'évolution de l'effet Dole est similaire à celle du $\delta^{18}O_{atm}$. Il y a donc l'influence d'autres mécanismes sur le signal du $\delta^{18}O_{atm}$ (e.g. humidité, $\delta^{18}O_{météorique}$, respiration).

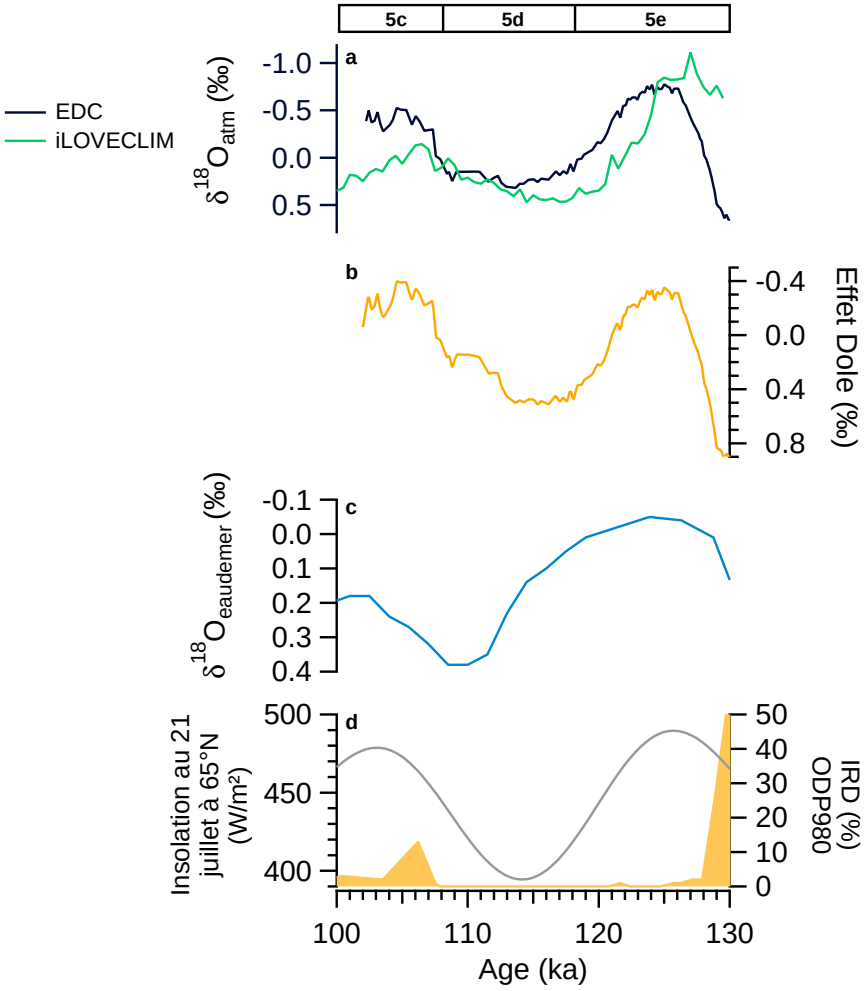



FIGURE 6.8 – Comparaison modèle-données du $\delta^{18}O_{atm}$ entre 130-100 ka. (a) La courbe noire représente les données centrées de $\delta^{18}O_{atm}$ mesurées dans la carotte de Dome C [Landais et al., 2013] ; [Bazin et al., 2016] sur la nouvelle chronologie [Extier et al., 2018] et la courbe verte est le $\delta^{18}O_{atm}$ centré simulé avec le modèle couplé, (b) l'effet Dole calculé comme la différence entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta^{18}O_{eaudemer}$ [Waelbroeck et al., 2002] présenté en (c), et (d) l'insolation au 21 juillet à 65°N [Laskar et al., 2004] de même que le pourcentage d'IRD en Atlantique Nord [McManus et al., 1999].

### 6.4.2.2 $\delta^{18}O_{atm}$ vs insolation

Une des hypothèses présentée dans le Chapitre 3 lors de la construction d'une nouvelle chronologie pour les carottes de glace était que les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ présentent un décalage de 5 ka avec l'insolation au 21 juillet à 65°N uniquement lors des terminaisons glaciaires-interglaciaires, contrairement à ce qui avait été proposé précédemment. Ce décalage pouvait s'expliquer par l'occurrence d'évènements de Heinrich provoquant une modification du cycle hydrologique des basses latitudes (suite au déplacement vers le Sud de la Zone de Convergence Intertropicale) et donc une augmentation du $\delta^{18}O_{atm}$ alors que dans un contexte de début d'augmentation de l'insolation avec la déglaciation, le $\delta^{18}O_{atm}$ devrait diminuer. En l'absence d'évènement de Heinrich dans le modèle, il est seulement possible de regarder le décalage entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation lors de changements orbitaux.

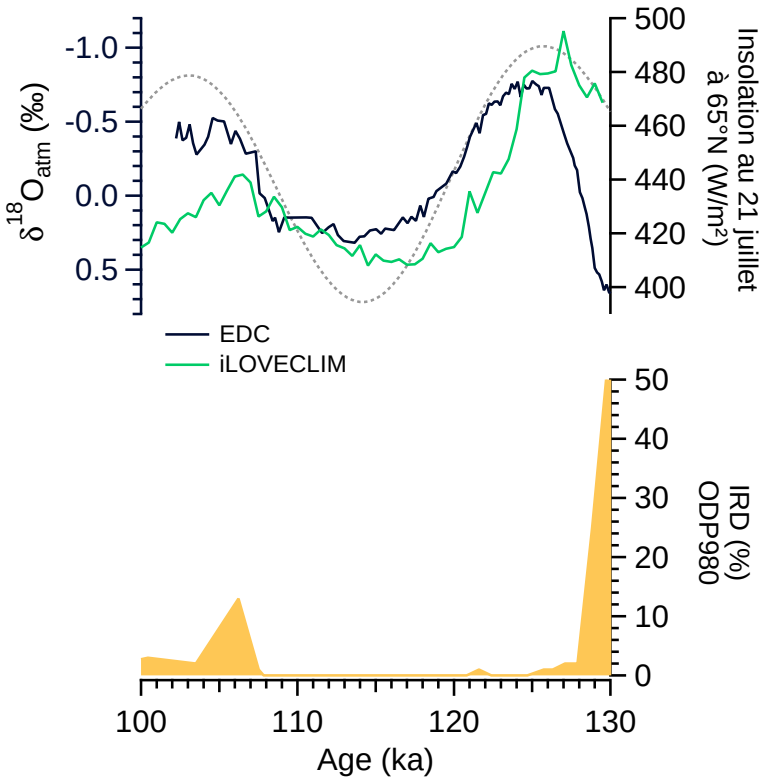



FIGURE 6.9 – Relation entre les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ mesurées dans les carottes de glace (valeurs centrées, courbe noire [Landais et al., 2013] ; [Bazin et al., 2016] sur la nouvelle chronologie [Extier et al., 2018]) et simulées dans le modèle (valeurs centrées, courbe verte) par rapport à l'insolation au 21 juillet à 65°N (en gris) [Laskar et al., 2004]. Le pourcentage d'IRD dans l'Atlantique Nord est aussi représenté [McManus et al., 1999].

Comme vu précédemment, le décalage entre le $\delta^{18}O_{atm}$ mesuré et l'insolation est maximum (5 ka) au cours de l'évènement de Heinrich au début de la terminaison glaciaire-interglaciaire, soit ici au tout début de la simulation il y a 130 ka. Pendant le maximum interglaciaire avec le maximum d'insolation au 21 juillet à 65°N, on observe un décalage de 1,6 ka entre le $\delta^{18}O_{atm}$ des carottes de glace sur la nouvelle chronologie et l'insolation, soit un décalage compris entre le maximum pendant un évènement de Heinrich et une valeur nulle dans le cas du seul forçage par l'insolation (Figure 6.9). Ce décalage nul il y a 125 ka est en effet observé entre la courbe du $\delta^{18}O_{atm}$ simulé par le modèle et celle de l'insolation au 21 juillet à 65°N puisque qu'il n'y a pas d'évènement de Heinrich dans le modèle et que les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ sont uniquement contrôlées par des changements d'insolation.

Pendant le minimum d'insolation vers 115 ka et sans évènement de Heinrich, les deux $\delta^{18}O_{atm}$ mesuré et simulé sont en phase avec l'insolation ce qui souligne le fait que sans évènement de Heinrich venant perturber le cycle hydrologique des basses latitudes, le $\delta^{18}O_{atm}$ répond aux changements de l'insolation au 21 juillet à 65°N sans décalage important. L'hypothèse effectuée lors de la construction de l'échelle d'âge AICC2012, considérant un décalage constant de 6 ka (avec l'insolation au 21 juin à 65°N) sur l'ensemble des 800 ka n'est donc pas correcte puisque ce décalage varie au cours du temps. Ce déphasage entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation conforte donc l'hypothèse proposée pendant ma thèse lors de la construction d'une nouvelle chronologie des carottes de glace (Chapitre 3).

#### 6.4.2.3 $\delta^{18}O_{calcite}$ mesuré vs simulé

Le $\delta^{18}O_{calcite}$ mesuré dans les spéléothèmes asiatiques peut tout d'abord être comparé avec le $\delta^{18}O_{calcite}$ simulé dans le modèle couplé entre 130-100 ka sur la zone sud-asiatique (entre 17°N-33°N et 87°E-116°E) en suivant la même méthode que celle présentée dans la Section 5.2.3.2. Bien que l'amplitude des variations des deux signaux soit différente, des similitudes dans leurs variations peuvent être observées sur certaines périodes. Le modèle est capable de reproduire les variations liées à l'insolation à 65°N (et donc aux précipitations) puisque l'on retrouve comme dans les données, un minimum de $\delta^{18}O_{calcite}$ pendant le maximum d'insolation (vers 125 ka) témoignant d'une forte activité de la mousson (Figure 6.10). Ces faibles valeurs du $\delta^{18}O_{calcite}$ durent toutefois plus longtemps dans le modèle (jusqu'à 118 ka) alors que le $\delta^{18}O_{calcite}$ des données commence à augmenter dès 121 ka. On a donc un déphasage sur cette

première partie du stade 5. Ce déphasage peut s'expliquer par le forçage des calottes de glace sur les variations du $\delta^{18}O_{calcite}$. En effet, Caley et al. [2014] ont montré que les variations de la taille des calottes de glace ont une influence sur la chronologie des processus hydrologiques sur l'Asie. Dans le cas d'un forçage uniquement par les calottes de glace, le $\delta^{18}O_{calcite}$ est en retard de 4 ka par rapport à la précession [Caley et al., 2014]. On peut donc supposer que la dynamique des calottes de glace du modèle contrôle le signal du $\delta^{18}O_{calcite}$ sur cette première partie du stade 5 (Figure 6.10).

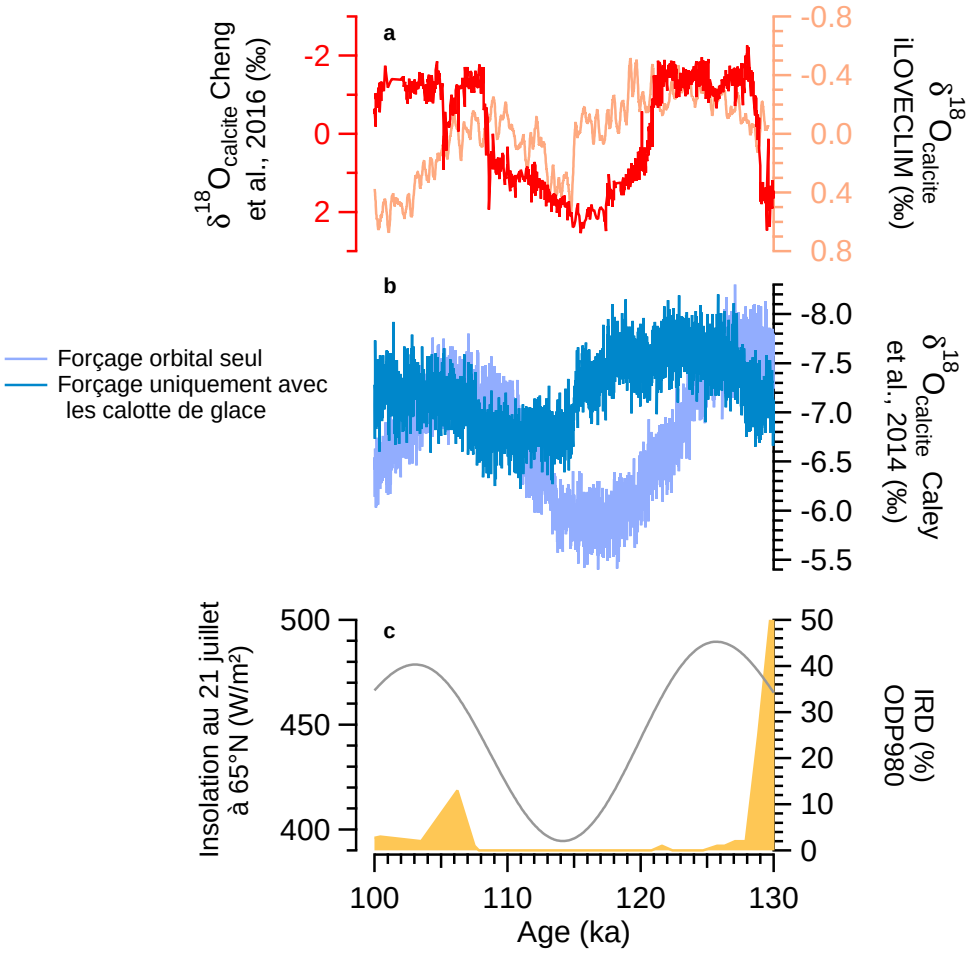



FIGURE 6.10 – Comparaison modèle-données du $\delta^{18}O_{calcite}$ entre 130-100 ka. (a) La courbe rouge montre les valeurs centrées du $\delta^{18}O_{calcite}$ mesurées dans les spéléothèmes est-asiatiques [Cheng et al., 2016] et la courbe plus clair représente les valeurs centrées du $\delta^{18}O_{calcite}$ simulées avec le modèle iLOVECLIM, (b) le $\delta^{18}O_{calcite}$ également simulé avec le modèle iLOVECLIM par Caley et al. [2014] forcé uniquement par les paramètres orbitaux (en bleu clair) ou uniquement par les calottes de glace (en bleu foncé), et (c) l'insolation au 21 juillet à 65°N [Laskar et al., 2004] de même que le pourcentage d'IRD en Atlantique Nord [McManus et al., 1999].

Au cours du stade 5d avec le minimum d'insolation (vers 115 ka), le $\delta^{18}O_{calcite}$ simulé augmente traduisant une période de faible activité de la mousson est-asiatique (Figure 6.10). Le $\delta^{18}O_{calcite}$ diminue ensuite avec le début d'augmentation de l'insolation. Sur la fin de la simulation vers 105 ka, le $\delta^{18}O_{calcite}$ simulé dans le modèle augmente (suite à l'augmentation du $\delta^{18}O_{eaudepluie}$) et présente des variations différentes à celles quasi stables du $\delta^{18}O_{calcite}$ mesuré dans les spéléothèmes. En comparaison avec l'étude de Caley et al. [2014], il semble que sur cette deuxième partie de la simulation les variations du $\delta^{18}O_{calcite}$ simulées par le modèle couplé soient contrôlées par le signal orbital seul.
De plus, l'augmentation notée dans les données de spéléothèmes asiatiques autour de 105 ka et causée par un évènement de Heinrich n'est pas visible dans le $\delta^{18}O_{calcite}$ simulé par le modèle puisque celui-ci ne prend pas en compte les évènements de Heinrich (Figure 6.10). Les diminutions abruptes observées vers 129 ka ou vers 109 ka dans les données ne se retrouvent pas dans le $\delta^{18}O_{calcite}$ des basses latitude simulé qui reste stable (Figure 6.10). Le modèle ne peut donc pas reproduire les effets de seuil.

#### 6.4.2.4 Décomposition du signal de $\delta^{18}O_{atm}$

Les signaux de $\delta^{18}O_{atm}$ et de $\delta^{18}O_{calcite}$ simulés par le modèle présentent quelques incohérences, notamment sur la première partie du stade isotopique 5 avec un $\delta^{18}O_{calcite}$ qui reste négatif (soit une période de mousson importante) plus longtemps que le $\delta^{18}O_{atm}$ qui augmente rapidement (Figure 6.11). Le $\delta^{18}O_{eaudemer}$ n'est pas le seul facteur des variations du $\delta^{18}O_{atm}$ puisque les variations de productivité de la biosphère terrestre présentent des similitudes avec celles du $\delta^{18}O_{atm}$. Le $\delta^{18}O_{atm}$ est en effet sensible à la fois au cycle hydrologique des basses latitudes mais également à la productivité de la biosphère terrestre.

Il avait aussi été fait l'hypothèse que les variations du $\delta^{18}O_{feuille}$ étaient reliées à celles du $\delta^{18}O_{calcite}$ des basses latitudes puisque contrôlées par des changements du $\delta^{18}O_{météorique}$ qui influencent le $\delta^{18}O_{vapeur}$ et le $\delta^{18}O_{eaudusol}$. Cependant, les résultats obtenus avec le modèle sont plus complexes à interpréter car les deux proxies présentent des différences, notamment lors du maximum de $\delta^{18}O_{calcite}$ qui n'est pas retrouvé dans le $\delta^{18}O_{feuille}$. Ces différences pourraient s'expliquer par le choix de la zone utilisée pour regarder le $\delta^{18}O_{calcite}$, par un biais de l'humidité dans le modèle puisque celle-ci semble trop élevée (comme déjà présenté dans la

Section 5.1), ou encore par le choix de la période à laquelle a été réalisée la simulation, avec l'influence du forçage des calottes de glace.

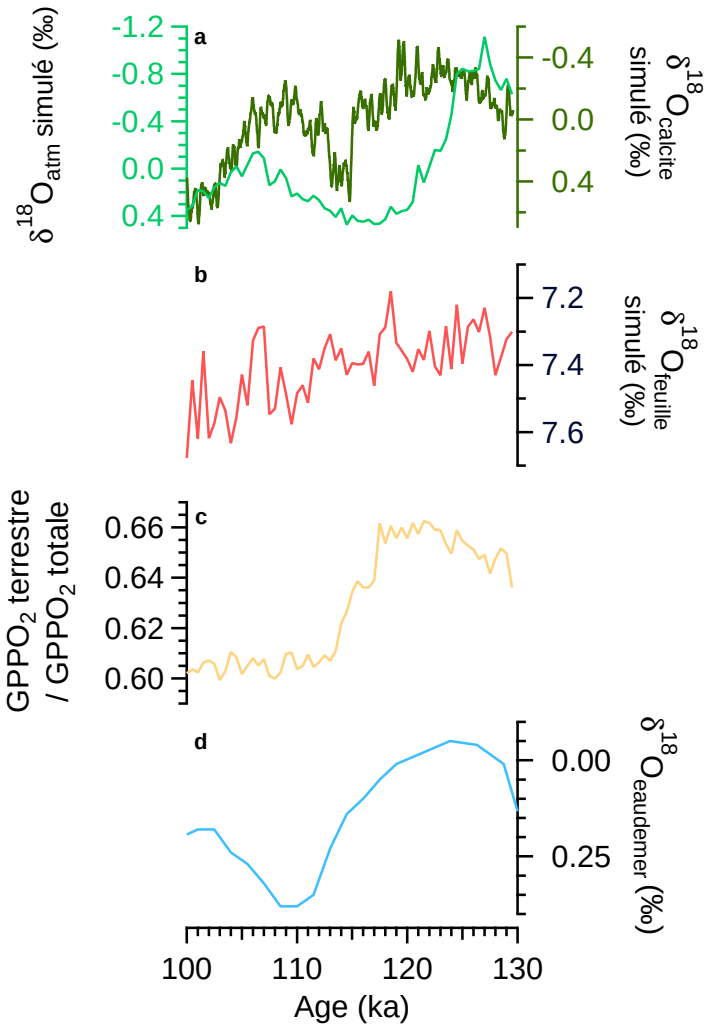



FIGURE 6.11 – Détail des différentes influences au signal de $\delta^{18}O_{atm}$ simulé par le modèle couplé. (a) $\delta^{18}O_{atm}$ simulé (vert clair) et $\delta^{18}O_{calcite}$ simulé sur l'Asie (vert foncé), (b) $\delta^{18}O_{feuille}$ simulé et corrigé du $\delta^{18}O_{eaudemer}$, (c) rapport de la productivité terrestre sur la productivité totale simulé par le modèle et (d) $\delta^{18}O_{eaudemer}$ [Waelbroeck et al., 2002].

## 6.5 Conclusions

La production de la biosphère terrestre, de même que la composition isotopique de l'eau dans les feuilles et de l'oxygène atmosphérique présentées dans ce chapitre ont été obtenues à partir d'une approche de modélisation couplée permettant d'étudier leur variation sur plusieurs

milliers d'années. Des enregistrements couvrants la première partie du stade isotopique 5 entre 130 et 100 ka permettent d'étudier les variations de la fin de la déglaciation (fin de la Terminaison 2), du maximum interglaciaire et du début de l'entrée en glaciation. Les résultats obtenus avec le modèle ont aussi été comparés avec des mesures effectuées dans les carottes de glace et dans les spéléothèmes est-asiatiques, reflétant des modifications aux hautes et basses latitudes.

La production en oxygène est directement reliée au type de végétation (sachant que les forêts tropicales humides sont les zones les plus productives) et donc au climat. La présence de calottes de glace sur l'Amérique du Nord et sur l'Europe du Nord à la fin de la Terminaison 2, de même qu'à partir de 115 ka, est globalement associée à des zones désertiques, arbustives et de prairies ouvertes aux moyennes latitudes de l'hémisphère Nord en lien avec un climat plus froid. Ce changement de végétation conduit à une production globale moins importante il y a 100 ka que lors du maximum interglaciaire (où la végétation est semblable à celle actuelle), avec environ 580 $PgO_2$/an contre environ 730 $PgO_2$/an. La production terrestre simulée pendant le stade 5e est plus élevée que celle au pré-industriel (730 vs 677,7 $PgO_2$/an), de la même façon que la courbe de productivité de la biosphère globale obtenue à partir de mesures dans les carottes de glace.

Les changements de composition isotopique de la biosphère terrestre permettent d'obtenir pour la première fois l'évolution du $\delta^{18}O_{atm}$ simulé sur plusieurs dizaines de milliers d'années. Le $\delta^{18}O_{atm}$ simulé présente des variations comparables à celles enregistrées dans les carottes de glace, influencées par les changements d'insolation au 21 juillet à 65°N. Les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ et de l'insolation de l'hémisphère Nord sont donc en phase et les périodes de décalage important sont uniquement dues aux évènements de Heinrich. En effet, un décalage de plusieurs milliers d'années entre le $\delta^{18}O_{atm}$ mesuré et simulé est observé uniquement à la suite d'un évènement de Heinrich comme à la fin de la Terminaison 2.

De plus, les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ simulées sur plusieurs milliers d'années présentent quelques différences avec celles du $\delta^{18}O_{calcite}$ simulées par le modèle, en lien avec la composition isotopique des précipitations. En effet, le $\delta^{18}O_{calcite}$ simulé ne présente pas les mêmes variations que le $\delta^{18}O_{calcite}$ mesuré dans les spéléothèmes puisque les calottes de glace et les forçages orbitaux

du modèle semblent avoir une influence différente sur ses variations. Cette partie étant encore exploratoire, un futur travail passera par l'amélioration de la compréhension des contraintes aux variations du $\delta^{18}O_{atm}$ et $\delta^{18}O_{calcite}$, notamment via des simulations sur différentes périodes de temps avec par exemple des périodes où le volume des calottes de glace varie peu.
Toutefois, la synchronicité des variations du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ simulés par le modèle conforte l'utilisation de ces deux proxies pour la construction d'une échelle d'âge des carottes des glace profondes avec de faibles incertitudes.

# Conclusions et perspectives

## Conclusions

Le cycle hydrologique et la productivité de la biosphère sont deux aspects fondamentaux du climat. Toutefois, les facteurs qui influencent leurs variations pour des périodes de temps passées sont mal quantifiés. Il manque également une chronologie précise des carottes de glace pour interpréter correctement la séquence des évènements en comparaison à d'autres archives climatiques. Au travers d'une approche combinant des mesures isotopiques dans les carottes de glace et l'utilisation d'un outil de modélisation, cette thèse a permis de progresser sur plusieurs aspects.

Le premier porte sur la réduction des incertitudes pour la chronologie des carottes de glace profondes. Pour cela des nouvelles mesures haute résolution du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta O_2/N_2$ ont été réalisées sur de la glace bien conservée entre 153 et 375 ka. Ces nouvelles mesures permettent pour la première fois d'obtenir un enregistrement complet à Dome C sur les derniers 800 ka. Ces mesures de $\delta^{18}O_{atm}$ ont été utilisées pour construire une chronologie à partir d'une nouvelle méthode d'alignement plutôt que celle utilisée lors de la construction d'AICC2012 entraînant une incertitude élevée de 6 ka. Cette méthode repose sur l'alignement du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques (localisés au niveau des tropiques et donc des zones de végétation les plus productives) en faisant l'hypothèse que ces deux proxies présentent les mêmes variations sur les derniers 640 ka, causées par des modifications du cycle hydrologique des basses latitudes en lien avec l'insolation ou des évènements de Heinrich. En utilisant de nouveaux points de calage entre les deux enregistrements, il a été possible de construire une nouvelle chronologie pour l'enregistrement de NGRIP au cours de la dernière entrée en glacia-

tion et pour l'enregistrement de Dome C entre 100 et 640 ka.

L'enregistrement du $\delta^{18}O_{glace}$ de NGRIP sur la nouvelle chronologie permet d'améliorer la compréhension de la séquence des évènements de Dansgaard-Oeschger lors de la dernière entrée en glaciation. Avec cette nouvelle chronologie, les incertitudes sont réduites par rapport à la chronologie AICC2012 et les évènements rapides de Dansgaard-Oeschger sont maintenant synchrones avec ceux observés dans l'enregistrement très bien daté des spéléothèmes des moyennes latitudes. La chronologie a ensuite été étendue aux derniers 640 ka pour la carotte de Dome C. Grâce à cette nouvelle méthode d'alignement, l'incertitude associée à cette chronologie est largement réduite par rapport à l'échelle d'âge AICC2012 sur les derniers 450 ka. La différence la plus importante est observée pendant le stade isotopique 10 et 11 avec une réduction par deux des incertitudes. Cela conduit à réviser la durée du stade isotopique 11 qui est maintenant de 29,8 ka au lieu de 31,1 ka.

Dans le cadre de la construction de cette nouvelle chronologie des carottes de glace, plusieurs hypothèses ont été faites à partir des variations observées dans les enregistrements paléoclimatiques. Afin de les vérifier, une approche de modélisation a été développée. Celle-ci fait intervenir intervenir pour la première fois le couplage entre le modèle de climat iLOVECLIM et le modèle de végétation CARAIB afin de mieux reproduire les changements associés à la biosphère terrestre, ainsi que l'implémentation de la composition isotopique de l'oxygène atmosphérique afin de calculer les flux d'oxygène associés aux processus de photosynthèse et respiration, la composition isotopique de l'oxygène dans les feuilles et les facteurs de fractionnement de l'oxygène au cours des processus de respiration.
Ce modèle couplé a été utilisé pour réaliser des simulations au pré-industriel, au Dernier Maximum Glaciaire, au cours d'un évènement de Heinrich idéalisé et sur le début du stade 5 entre 130 et 100 ka. Ces simulations ont permis de mettre en évidence l'influence du cycle hydrologique via des modifications du $\delta^{18}O$ de l'eau météorique sur la composition isotopique du $\delta^{18}O_{feuille}$ et donc du $\delta^{18}O_{atm}$ à l'échelle orbitale. Le $\delta^{18}O_{atm}$ s'est également montré représentatif de la productivité de la biosphère terrestre. A partir de la simulation du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$, il a été montré que ces deux proxies présentent des variations similaires en lien avec celles de l'insolation au 21 juillet à 65°N (même si plusieurs questions persistent sur la simula-

tion réalisée pendant le dernier interglaciaire) ce qui suggère une influence des précipitations et du cycle hydrologique des basses latitudes sur leur composition isotopique.
La simulation idéalisée avec l'ajout d'eau douce dans l'Atlantique Nord pour reproduire un évènement de Heinrich a également montré que les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{calcite}$ au cours de ce type d'évènement sont directement dues à une modification du cycle hydrologique des basses latitudes à la suite d'un déplacement vers le Sud de la Zone de Convergence Intertropicale. Ces modifications du cycle hydrologique sont le facteur dominant des variations du $\delta^{18}O_{atm}$ via l'utilisation de la composition isotopique de l'eau par la biosphère terrestre. De plus, le $\delta^{18}O_{atm}$ simulé par le modèle au cours de ces différentes périodes montre un bon accord avec les mesures effectuées dans les carottes de glace.

Les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ ont aussi pu être corrélées avec celles de l'insolation au 21 juillet à 65°N. Le décalage observé entre les deux enregistrements dans les données présentait un maximum pendant les terminaisons glaciaires-interglaciaires, en lien avec l'occurrence d'évènement de Heinrich. Grâce au modèle, il a été montré que les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ suivent celles de l'insolation pour des périodes sans évènements de Heinrich. Le décalage maximum de 5 ka est donc dû à ces évènements rapides ayant pour effet d'augmenter la composition isotopique de l'oxygène atmosphérique.

# Perspectives

A la suite de cette étude, plusieurs aspects pourraient être développés afin de (1) améliorer le couplage entre le modèle de climat et de végétation, (2) améliorer le calcul des flux d'oxygène associés à la biosphère et de la composition isotopique de l'oxygène atmosphérique, (3) tester la validité des hypothèses sur plusieurs cycles glaciaires-interglaciaires et (4) simuler une courbe du $\delta^{18}O_{atm}$ sur plusieurs cycles climatiques et lors des périodes clés que sont les terminaisons. Cela permettra notamment d'avoir une séquence précise des évènements sur les derniers 800 ka.

- Le modèle de climat iLOVECLIM a été couplé avec le modèle de végétation CARAIB laissant la possibilité dans sa version actuelle d'utiliser soit le modèle de végétation initial VECODE soit d'utiliser CARAIB. Pour l'étude de la distribution de la végétation ou des processus dé-

pendant de celle-ci et des mécanismes de photosynthèse et respiration, CARAIB présente un avantage certain. Dans sa version actuelle du couplage, le modèle de végétation transmet les fractions de végétation à iLOVECLIM afin que celui-ci calcule l'albédo. Il serait toutefois possible de transférer directement l'albédo de surface car celle-ci est calculée par CARAIB. Cela avait été réalisé au début de la procédure de couplage mais les résultats d'albédo de iLOVECLIM présentaient de trop grandes différences par rapport à l'albédo initiale et il a donc été préféré de seulement transférer les variables nécessaires à son calcul. Il faudrait donc trouver l'origine de cet écart des résultats et remplacer le calcul actuel de l'albédo directement par celle calculée par CARAIB.
Afin d'améliorer le couplage, il serait aussi possible de transférer à iLOVECLIM les variables telles que l'indice de surface foliaire (LAI) et l'évapotranspiration calculées par CARAIB.

- Dans le cadre de l'étude des variations du $\delta^{18}O_{atm}$, plusieurs équations ont été intégrées au modèle couplé afin de calculer la composition isotopique de l'oxygène dans les feuilles associée à la biosphère terrestre, en lien avec les processus de photosynthèse et respiration. Toutefois, ces équations reposent sur des estimations de certains paramètres comme la pression en $CO_2$ dans le milieu intercellulaire et le point de compensation du $CO_2$ à partir des équations de Lloyd and Farquhar [1994]. Ces estimations reposent sur l'utilisation de certaines variables climatiques calculées par iLOVECLIM et de paramètres dépendant du type de végétation. Avec le modèle CARAIB, il serait possible de trouver les bonnes variables correspondant à ces deux paramètres et de les utiliser directement dans les calculs associés aux processus de photosynthèse et respiration.

- De plus, les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ sont reliées à la fois aux variations de la biosphère terrestre et de la biosphère marine. Dans la version actuelle du modèle, seuls les changements associés à la biosphère terrestre (productivité en carbone et oxygène, fractionnement de l'oxygène...) sont pris en compte. Les valeurs de productivité de l'océan et de composition isotopique de l'oxygène associées aux processus de photosynthèse et respiration de la biosphère marine sont prises à partir d'estimations obtenues par de précédentes études de modélisation. Il serait toutefois important d'avoir des valeurs précises de ces paramètres sur plusieurs cycles climatiques et non plus pour des périodes de temps spécifiques. C'est pourquoi un modèle de calcul de

productivité océanique et d'estimation des flux d'oxygène et de facteurs de fractionnement lors des processus de respiration dans l'océan pourrait être développé au sein du modèle océanique d'iLOVECLIM.

- De nouvelles simulations transitoires pourraient également être réalisées, à la fois sur les terminaisons glaciaires-interglaciaires et sur plusieurs cycles climatiques. Un des intérêts de ces terminaisons est de faire le lien entre la forte augmentation en $CO_2$ caractéristique de la déglaciation et la productivité globale de la biosphère. Pour cela il est possible d'utiliser des mesures dans les carottes de glace pour reconstituer une courbe de productivité globale de la biosphère. Il n'est cependant pas possible de faire la distinction entre la contribution de la biosphère terrestre et océanique à ces variations. En cela, le modèle iLOVECLIM peut être un outil pour quantifier la contribution de la biosphère continentale et marine (une fois les processus intégrés au modèle), à la fois aux variations du $\delta^{18}O_{atm}$ et à la productivité globale de la biosphère.
Être capable de reproduire les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ sur plusieurs cycles climatiques permettra également de vérifier le lien entre la modification du climat, du cycle hydrologique et de la biosphère établi au cours de cette thèse sur de plus longues échelles de temps.

- Il serait également possible de développer une approche pour simuler le $\Delta^{17}O$ d'$O_2$, qui au contraire du $\delta^{18}O_{atm}$ peut être directement utilisé comme indicateur de la productivité de la biosphère globale. Le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\Delta^{17}O$ d'$O_2$ pourraient ainsi être utilisés de manière complémentaire.

- Une application supplémentaire serait d'adapter le downscaling global à 0,5° développé très récemment pour la grille d'iLOVECLIM à la grille de CARAIB, actuellement avec une résolution de 5,6°. Cela permettrait d'avoir une meilleure précision notamment sur la distribution de la végétation et sur la quantification de processus locaux liés à la biosphère terrestre.

- Enfin, des mesures complémentaires à haute résolution du $\delta^{18}O_{atm}$ pourraient aussi être réalisées avec un intérêt particulier pour les terminaisons glaciaires-interglaciaires comme les Terminaisons 4 et 5. Ces mesures permettraient d'affiner la séquence des évènements sur ces périodes et de contribuer à réduire encore les incertitudes associées à la chronologie des carottes de glace

via l'ajout de nouveaux marqueurs d'alignement entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques.

A plus long terme, cette approche modèle-données d'étude du cycle hydrologique et de la végétation via le $\delta^{18}O_{atm}$ pourrait être appliquée à la Transition du Pleistocène Moyen (MPT entre 1,2 et 0,8 Ma), période clé du Quaternaire caractérisée par de nombreux changements climatiques et environnementaux (dont le changement de cyclicité des périodes glaciaires-interglaciaires de 41 à 100 ka). Dans le cadre de projet Beyond EPICA Oldest Ice, il est prévu d'obtenir dans les années à venir une carotte de glace sur les derniers 1,5 Ma, dont il faudra construire la chronologie. Il sera aussi possible de réaliser des mesures à haute résolution du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $CO_2$ couvrant la MPT. D'un point de vue modélisation, il est prévu de développer dans le modèle iLOVECLIM une nouvelle bathymétrie interactive permettant de réaliser des simulations transitoires avec changement du masque continent-océan. Cette nouvelle bathymétrie en complément de l'amélioration générale de la résolution du modèle permettrait de réaliser des simulations sur la MPT en utilisant le modèle couplé développé pendant cette thèse pour étudier en parallèle les changements de distribution de la végétation et du cycle hydrologique des basses latitudes. Cette approche complémentaire permettrait en premier lieu d'étudier le lien entre la concentration en $CO_2$, les forçages orbitaux, les changements de distribution de végétation et du cycle hydrologique des basses latitudes afin de mieux comprendre les mécanismes dominants au cours de la MPT. Un deuxième aspect serait de déterminer via la comparaison du modèle et de données climatiques et archéologiques si les modifications climatiques et environnementales au cours de cette période ont pu avoir un impact sur l'évolution des hominidés avec la migration des populations ou la disparition de certaines espèces.

# Bibliographie

Álvarez-Solas, J., Montoya, M., Ritz, C., Ramstein, G., Charbit, S., Dumas, C., Nisancioglu, K., Dokken, T., and Ganopolski, A. (2011). Heinrich event 1 : an example of dynamical ice-sheet reaction to oceanic changes. *Climate of the Past*, 7(4) :1297–1306.

Angert, A., Barkan, E., Barnett, B., Brugnoli, E., Davidson, E. A., Fessenden, J., Maneepong, S., Panapitukkul, N., Randerson, J. T., Savage, K., Yakir, D., and Luz, B. (2003). Contribution of soil respiration in tropical, temperate, and boreal forests to the $^{18}O$ enrichment of atmospheric $O_2$. *Global Biogeochemical Cycles*, 17(3) :1–12.

Angert, A., Luz, B., and Yakir, D. (2001). Fractionation of oxygen isotopes by respiration and diffusion in soils and its implications for the isotopic composition of atmospheric $O_2$. *Global Biogeochemical Cycles*, 15(4) :871–880.

Araguas-Araguas, L., Danesi, P., Froehlich, K., and Rozanski, K. (1996). Global monitoring of the isotopic composition of precipitation. *Journal of radioanalytical and nuclear chemistry*, 205(2) :189–200.

Arz, H. W., Lamy, F., Ganopolski, A., Nowaczyk, N., and Pätzold, J. (2007). Dominant northern hemisphere climate control over millennial-scale glacial sea-level variability. *Quaternary Science Reviews*, 26(3-4) :312–321.

Asada, K. (1999). The water-water cycle in chloroplasts : scavenging of active oxygens and dissipation of excess photons. *Annual review of plant biology*, 50(1) :601–639.

Badger, M. R., von Caemmerer, S., Ruuska, S., and Nakano, H. (2000). Electron flow to oxygen in higher plants and algae : rates and control of direct photoreduction (Mehler reaction) and

rubisco oxygenase. *Philosophical Transactions of the Royal Society B : Biological Sciences*, 355(1402) :1433–1446.

Ball, J. T., Woodrow, I. E., and Berry, J. A. (1987). A model predicting stomatal conductance and its contribution to the control of photosynthesis under different environmental conditions. In *Progress in photosynthesis research*, pages 221–224.

Barbour, M. M., Roden, J. S., Farquhar, G. D., and Ehleringer, J. R. (2004). Expressing leaf water and cellulose oxygen isotope ratios as enrichment above source water reveals evidence of a Pclet effect. *Oecologia*, 138(3) :426–435.

Bariac, T., Rambal, S., Jusserand, C., and Berger, A. (1989). Evaluating water fluxes of field-grown alfalfa from diurnal observations of natural isotope concentrations, energy budget and ecophysiological parameters. *Agricultural and Forest Meteorology*, 48(3-4) :263–283.

Barkan, E. and Luz, B. (2005). High precision measurements of $^{17}O/^{16}O$ and $^{18}O/^{16}O$ ratios in $H_2O$. *Rapid Communications in Mass Spectrometry*, 19(24) :3737–3742.

Bassinot, F. C., Labeyrie, L. D., Vincent, E., Quidelleur, X., Shackleton, N. J., and Lancelot, Y. (1994). The astronomical theory of climate and the age of the brunhes-matuyama magnetic reversal. *Earth and Planetary Science Letters*, 126(1-3) :91–108.

Battle, M., Bender, M., Sowers, T., Tans, P. P., Butler, J. H., Elkins, J. W., Ellis, J. T., Conway, T., Zhang, N., Lang, P., and Clarket, A. D. (1996). Atmospheric gas concentrations over the past century measured in air from firn at the South Pole. *Nature*, 383(6597) :231–235.

Baumgartner, M., Kindler, P., Eicher, O., Floch, G., Schilt, A., Schwander, J., Spahni, R., Capron, E., Chappellaz, J., Leuenberger, M., et al. (2014). NGRIP $CH_4$ concentration from 120 to 10 kyr before present and its relation to a $\delta^{15}N$ temperature reconstruction from the same ice core. *Climate of the Past*, 10(2) :903–920.

Bazin, L. (2015). *Analyse de l'air piégé dans les carottes de glace de Dôme C et Talos Dôme pour mieux contraindre le rôle du forçage orbital et des gaz à effet de serre dans les variations glaciaire-interglaciaire*. PhD thesis, Université de Versailles-Saint Quentin en Yvelines.

Bazin, L., Landais, A., Capron, E., Masson-Delmotte, V., Ritz, C., Picard, G., Jouzel, J., Dumont, M., Leuenberger, M., and Prié, F. (2016). Phase relationships between orbital forcing and the composition of air trapped in Antarctic ice cores. *Climate of the Past*, 12(3) :729–748.

Bazin, L., Landais, A., Lemieux-Dudon, B., Toyé Mahamadou Kele, H., Veres, D., Parrenin, F., Martinerie, P., Ritz, C., Capron, E., Lipenkov, V., Loutre, M.-F., Raynaud, D., Vinther, B., Svensson, A., Rasmussen, S. O., Severi, M., Blunier, T., Leuenberger, M., Fischer, H., Masson-Delmotte, V., Chappellaz, J., and Wolff, E. (2013). An optimized multi-proxy, multi-site Antarctic ice and gas orbital chronology (AICC2012) : 120-800 ka. *Climate of the Past*, 9(4) :1715–1731.

Beerling, D. (1999). The influence of vegetation activity on the dole effect and its implications for changes in biospheric productivity in the mid-holocene. *Proceedings of the Royal Society of London B : Biological Sciences*, 266(1419) :627–632.

Bender, M., Sowers, T., and Labeyrie, L. (1994). The Dole Effect and its variations during the last 130,000 years as measured in the Vostok Ice Core. *Global Biogeochemical Cycles*, 8(3) :363–376.

Bender, M. L. (2002). Orbital tuning chronology for the Vostok climate record supported by trapped gas composition. *Earth and Planetary Science Letters*, 204(1-2) :275–289.

Bereiter, B., Eggleston, S., Schmitt, J., Nehrbass-Ahles, C., Stocker, T. F., Fischer, H., Kipfstuhl, S., and Chappellaz, J. (2015). Revision of the EPICA Dome C $CO_2$ record from 800 to 600 kyr before present : Analytical bias in the EDC $CO_2$ record. *Geophysical Research Letters*, 42(2) :542–549.

Berger, A. (1978). Long-term variations of daily insolation and quaternary climatic changes. *Journal of the atmospheric sciences*, 35(12) :2362–2367.

Berger, W. H. and Jansen, E. (1994). Mid-pleistocene climate shift-the nansen connection. *The polar oceans and their role in shaping the global environment*, 85 :295–311.

Bintanja, R., van de Wal, R. S., and Oerlemans, J. (2005). Modelled atmospheric temperatures and global sea levels over the past million years. *Nature*, 437(7055) :125–128.

Blunier, T., Bender, M. L., Barnett, B., and von Fischer, J. C. (2012). Planetary fertility during the past 400 ka based on the triple isotope composition of $O_2$ in trapped gases from the Vostok ice core. *Climate of the Past*, 8(5) :1509–1526.

Boch, R., Cheng, H., Spötl, C., Edwards, R. L., Wang, X., and Häuselmann, P. (2011). NALPS : a precisely dated European climate record 120–60 ka. *Climate of the Past*, 7(4) :1247–1259.

Boering, K., Jackson, T., Hoag, K., Cole, A., Perri, M., Thiemens, M., and Atlas, E. (2004). Observations of the anomalous oxygen isotopic composition of carbon dioxide in the lower stratosphere and the flux of the anomaly to the troposphere. *Geophysical Research Letters*, 31(3).

Bouttes, N. (2010). *L'évolution du cycle du carbone au cours du Quaternaire*. PhD thesis, Paris 6.

Bouttes, N., Roche, D. M., Mariotti, V., and Bopp, L. (2015). Including an ocean carbon cycle model into *i*LOVECLIM (v1.0). *Geoscientific Model Development*, 8(5) :1563–1576.

Braconnot, P., Otto-Bliesner, B., Harrison, S., Joussaume, S., Peterchmitt, J.-Y., Abe-Ouchi, A., Crucifix, M., Driesschaert, E., Fichefet, T., Hewitt, C., et al. (2007). Results of PMIP2 coupled simulations of the mid-holocene and last glacial maximum–part 1 : experiments and large-scale features. *Climate of the Past*, 3(2) :261–277.

Braun, H., Christl, M., Rahmstorf, S., Ganopolski, A., Mangini, A., Kubatzki, C., Roth, K., and Kromer, B. (2005). Possible solar origin of the 1,470-year glacial climate cycle demonstrated in a coupled model. *Nature*, 438(7065) :208.

Bréant, C., Landais, A., Orsi, A., Martinerie, P., Extier, T., Prié, F., Stenni, B., Jouzel, J., Masson-Delmotte, V., and Leuenberger, M. (2019). Unveiling the anatomy of termination 3 using water and air isotopes in the dome c ice core, east antarctica. *Quaternary Science Reviews*, 211 :156–165.

Bréant, C., Martinerie, P., Orsi, A., Arnaud, L., and Landais, A. (2017). Modelling firn thickness evolution during the last deglaciation : constraints on sensitivity to temperature and impurities. *Climate of the Past*, 13(7) :833–853.

Broecker, W. and Putnam, A. E. (2012). How did the hydrologic cycle respond to the two-phase mystery interval ? *Quaternary science reviews*, 57 :17–25.

Broecker, W. S., Bond, G., Klas, M., Bonani, G., and Wolfli, W. (1990). A salt oscillator in the glacial atlantic ? 1. the concept. *Paleoceanography*, 5(4) :469–477.

Brook, E. J., Harder, S., Severinghaus, J., Steig, E. J., and Sucher, C. M. (2000). On the origin and timing of rapid changes in atmospheric methane during the last glacial period. *Global Biogeochemical Cycles*, 14(2) :559–572.

Brook, E. J., White, J. W., Schilla, A. S., Bender, M. L., Barnett, B., Severinghaus, J. P., Taylor, K. C., Alley, R. B., and Steig, E. J. (2005). Timing of millennial-scale climate change at siple dome, west antarctica, during the last glacial period. *Quaternary Science Reviews*, 24(12-13) :1333–1343.

Brovkin, V., Ganopolski, A., and Svirezhev, Y. (1997). A continuous climate-vegetation classification for use in climate-biosphere studies. *Ecological Modelling*, 101(2-3) :251–261.

Bügelmayer, M., Roche, D., and Renssen, H. (2015). Representing icebergs in the iloveclim model (version 1.0)–a sensitivity study. *Geoscientific Model Development*, 8(7) :2139–2151.

Buizert, C., Cuffey, K. M., Severinghaus, J. P., Baggenstos, D., Fudge, T. J., Steig, E. J., Markle, B. R., Winstrup, M., Rhodes, R. H., Brook, E. J., Sowers, T. A., Clow, G. D., Cheng, H., Edwards, R. L., Sigl, M., McConnell, J. R., and Taylor, K. C. (2015). The WAIS Divide deep ice core WD2014 chronology - Part 1 : Methane synchronization (68–31 ka BP) and the gas age–ice age difference. *Climate of the Past*, 11(2) :153–173.

Buizert, C., Gkinis, V., Severinghaus, J. P., He, F., Lecavalier, B. S., Kindler, P., Leuenberger, M., Carlson, A. E., Vinther, B., Masson-Delmotte, V., et al. (2014). Greenland temperature response to climate forcing during the last deglaciation. *Science*, 345(6201) :1177–1180.

Caillon, N., Severinghaus, J. P., Jouzel, J., Barnola, J.-M., Kang, J., and Lipenkov, V. Y. (2003). Timing of atmospheric $CO_2$ and antarctic temperature changes across termination III. *Science*, 299(5613) :1728–1731.

Caley, T., Roche, D. M., and Renssen, H. (2014). Orbital Asian summer monsoon dynamics revealed using an isotope-enabled global climate model. *Nature Communications*, 5 :5371.

Cappa, C. D., Hendricks, M. B., DePaolo, D. J., and Cohen, R. C. (2003). Isotopic fractionation of water during evaporation. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D16).

Capron, E., Landais, A., Lemieux-Dudon, B., Schilt, A., Masson-Delmotte, V., Buiron, D., Chappellaz, J., Dahl-Jensen, D., Johnsen, S., Leuenberger, M., Loulergue, L., and Oerter, H. (2010). Synchronising EDML and NorthGRIP ice cores using $\delta^{18}$O of atmospheric oxygen $\delta^{18}O_{atm}$ and $CH_4$ measurements over MIS5 (80–123 kyr). *Quaternary Science Reviews*, 29(1-2) :222–234.

Casado, M. (2016). *Water stable isotopic composition on the East Antarctic Plateau : measurements at low temperature of the vapour composition, utilisation as an atmospheric tracer and implication for paleoclimate studies*. Theses, Université Paris-Saclay.

Cernusak, L., Pate, J. S., and Farquhar, G. (2002). Diurnal variation in the stable isotope composition of water and dry matter in fruiting lupinus angustifolius under field conditions. *Plant, Cell & Environment*, 25(7) :893–907.

Cernusak, L. A., Barbour, M. M., Arndt, S. K., Cheesman, A. W., English, N. B., Feild, T. S., Helliker, B. R., Holloway-Phillips, M. M., Holtum, J. A., Kahmen, A., et al. (2016). Stable isotopes in leaf water of terrestrial plants. *Plant, Cell & Environment*, 39(5) :1087–1102.

Channell, J., Hodell, D., Romero, O., Hillaire-Marcel, C., de Vernal, A., Stoner, J., Mazaud, A., and Röhl, U. (2012). A 750-kyr detrital-layer stratigraphy for the North Atlantic (IODP Sites U1302–U1303, Orphan Knoll, Labrador Sea). *Earth and Planetary Science Letters*, 317-318 :218–230.

Chapman, S. (1930). On ozone and atomic oxygen in the upper atmosphere. *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 10(64) :369–383.

Cheddadi, R., Vendramin, G. G., Litt, T., François, L., Kageyama, M., Lorentz, S., Laurent, J.-M., De Beaulieu, J.-L., Sadori, L., Jost, A., and Lunt, D. (2006). Imprints of glacial refugia in the modern genetic diversity of pinus sylvestris. *Global Ecology and Biogeography*, 15(3) :271–282.

Cheng, H., Edwards, R. L., Broecker, W. S., Denton, G. H., Kong, X., Wang, Y., Zhang, R., and Wang, X. (2009). Ice Age Terminations. *Science*, 326(5950) :248–252.

Cheng, H., Edwards, R. L., Sinha, A., Spötl, C., Yi, L., Chen, S., Kelly, M., Kathayat, G., Wang, X., Li, X., Kong, X., Wang, Y., Ning, Y., and Zhang, H. (2016). The Asian monsoon over the past 640,000 years and ice age terminations. *Nature*, 534 :640–646.

Cheng, H., Edwards, R. L., Wang, Y., Kong, X., Ming, Y., Kelly, M. J., Wang, X., Gallup, C. D., and Liu, W. (2006). A penultimate glacial monsoon record from hulu cave and two-phase glacial terminations. *Geology*, 34(3) :217–220.

Chiang, J. C. and Bitz, C. M. (2005). Influence of high latitude ice cover on the marine intertropical convergence zone. *Climate Dynamics*, 25(5) :477–496.

Clark, P. U., Archer, D., Pollard, D., Blum, J. D., Rial, J. A., Brovkin, V., Mix, A. C., Pisias, N. G., and Roy, M. (2006). The middle pleistocene transition : characteristics, mechanisms, and implications for long-term changes in atmospheric $pCO_2$. *Quaternary Science Reviews*, 25(23-24) :3150–3184.

Clark, P. U., Marshall, S. J., Clarke, G. K., Hostetler, S. W., Licciardi, J. M., and Teller, J. T. (2001). Freshwater forcing of abrupt climate change during the last glaciation. *Science*, 293(5528) :283–287.

Clark, P. U. and Pollard, D. (1998). Origin of the middle pleistocene transition by ice sheet erosion of regolith. *Paleoceanography*, 13(1) :1–9.

Colbeck, S. (1989). Air Movement in Snow Due to Windpumping. *Journal of Glaciology*, 35(120) :209–213.

Collatz, G. J., Ribas-Carbo, M., and Berry, J. (1992). Coupled photosynthesis-stomatal conductance model for leaves of C4 plants. *Functional Plant Biology*, 19(5) :519–538.

Coplen, T. B., Kendall, C., and Hopple, J. (1983). Comparison of stable isotope reference samples. *Nature*, 302(5905) :236.

Craig, H. (1961). Isotopic variations in meteoric waters. *Science*, 133(3465) :1702–1703.

Craig, H. and Gordon, L. I. (1965). Deuterium and oxygen 18 variations in the ocean and the marine atmosphere.

Craig, H., Horibe, Y., and Sowers, T. (1988). Gravitational Separation of Gases and Isotopes in Polar Ice Caps. *Science*, 242(4886) :1675–1678.

Crowley, T. J. and Hyde, W. T. (2008). Transient nature of late pleistocene climate variability. *Nature*, 456(7219) :226.

Dansgaard, W. (1964). Stable isotopes in precipitation. *Tellus*, 16(4) :436–468.

Dansgaard, W., Clausen, H., Gundestrup, N., Hammer, C., Johnsen, S., Kristinsdottir, P., and Reeh, N. (1982). A new greenland deep ice core. *Science*, 218(4579) :1273–1277.

Dansgaard, W., Johnsen, S., Clausen, H., Dahl-Jensen, D., Gundestrup, N., Hammer, C., and Oeschger, H. (1984). North atlantic climatic oscillations revealed by deep greenland ice cores. *Climate processes and climate sensitivity*, 29 :288–298.

De Pury, D. and Farquhar, G. (1997). Simple scaling of photosynthesis from leaves to canopies without the errors of big-leaf models. *Plant, Cell & Environment*, 20(5) :537–557.

Dole, M. (1935). The relative atomic weight of oxygen in water and in air. *Journal of the American Chemical Society*, 57(12) :2731–2731.

Dongmann, G. (1974). The contribution of land photosynthesis to the stationary enrichment of $^{18}$O in the atmosphere. *Radiation and environmental biophysics*, 11(3) :219–225.

Dreyfus, G., Raisbeck, G., Parrenin, F., Jouzel, J., Guyodo, Y., Nomade, S., and Mazaud, A. (2008). An ice core perspective on the age of the matuyama–brunhes boundary. *Earth and Planetary Science Letters*, 274(1-2) :151–156.

Dreyfus, G. B. (2008). *Dating an 800,000 year Antarctic ice core record using the isotopic composition of trapped air*. PhD thesis, Princeton University.

Dreyfus, G. B., Jouzel, J., Bender, M. L., Landais, A., Masson-Delmotte, V., and Leuenberger, M. (2010). Firn processes and 15n : potential for a gas-phase climate proxy. *Quaternary Science Reviews*, 29(1-2) :28–42.

Dreyfus, G. B., Parrenin, F., Lemieux-Dudon, B., Durand, G., Masson-Delmotte, V., Jouzel, J., Barnola, J.-M., Panno, L., Spahni, R., Tisserand, A., Siegenthaler, U., and Leuenberger, M. (2007). Anomalous flow below 2700 m in the EPICA Dome C ice core detected using $\delta^{18}$O of atmospheric oxygen measurements. *Climate of the Past*, 3(2) :341–353.

Dunbar, N. W., McIntosh, W. C., and Esser, R. P. (2008). Physical setting and tephrochronology of the summit caldera ice record at Mount Moulton, West Antarctica. *Geological Society of America Bulletin*, 120(7-8) :796–812.

Dury, M., Hambuckers, A., Warnant, P., Henrot, A., Favre, E., Ouberdous, M., and François, L. (2011). Responses of european forest ecosystems to 21 (st) century climate : assessing changes in interannual variability and fire intensity. *iForest : Biogeosciences and Forestry*, 4 :82–99.

Eisenstadt, D., Barkan, E., Luz, B., and Kaplan, A. (2010). Enrichment of oxygen heavy isotopes during photosynthesis in phytoplankton. *Photosynthesis research*, 103(2) :97–103.

Elliot, M., Labeyrie, L., and Duplessy, J.-C. (2002). Changes in north atlantic deep-water formation associated with the dansgaard–oeschger temperature oscillations (60–10 ka). *Quaternary Science Reviews*, 21(10) :1153–1165.

Emiliani, C. (1955). Pleistocene temperatures. *The Journal of Geology*, 63(6) :538–578.

EPICA Community Members (2004). Eight glacial cycles from an antarctic ice core. *Nature*, 429 :623–628.

EPICA Community Members (2006). One-to-one coupling of glacial climate variability in greenland and antarctica. *Nature*, 444(7116) :195–198.

Epstein, S. and Sharp, R. P. (1959). Oxygen-isotope variations in the malaspina and saskatchewan glaciers. *The Journal of Geology*, 67(1) :88–102.

Extier, T., Landais, A., Bréant, C., Prié, F., Bazin, L., Dreyfus, G., Roche, D. M., and Leuenberger, M. (2018). On the use of $\delta^{18}O_{atm}$ for ice core dating. *Quaternary Science Reviews*, 185 :244–257.

Eynaud, F., Malaizé, B., Zaragosi, S., Vernal, A., Scourse, J., Pujol, C., Cortijo, E., Grousset, F. E., Penaud, A., Toucanne, S., et al. (2012). New constraints on european glacial freshwater releases to the north atlantic ocean. *Geophysical Research Letters*, 39(15).

Farquhar, G., Hubick, K., Condon, A., and Richards, R. (1989). Carbon isotope fractionation and plant water-use efficiency. In *Stable isotopes in ecological research*, pages 21–40.

Farquhar, G. D. and Lloyd, J. (1993). Carbon and oxygen isotope effects in the exchange of carbon dioxide between terrestrial plants and the atmosphere. In *Stable isotopes and plant carbon-water relations*, pages 47–70.

Farquhar, G. D., von Caemmerer, S., and Berry, J. A. (1980). A biochemical model of photosynthetic $CO_2$ assimilation in leaves of C3 species. *Planta*, 149(1) :78–90.

Favre, E., François, L., Fluteau, F., Cheddadi, R., Thévenod, L., and Suc, J.-P. (2007). Messinian vegetation maps of the mediterranean region using models and interpolated pollen data. *Geobios*, 40(3) :433–443.

François, L., Ghislain, M., Otto, D., and Micheels, A. (2006). Late miocene vegetation reconstruction with the caraib model. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 238(1-4) :302–320.

François, L., Utescher, T., Favre, E., Henrot, A.-J., Warnant, P., Micheels, A., Erdei, B., Suc, J.-P., Cheddadi, R., and Mosbrugger, V. (2011). Modelling Late Miocene vegetation in Europe : Results of the CARAIB model and comparison with palaeovegetation data. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 304(3-4) :359–378.

François, L. M., Delire, C., Warnant, P., and Munhoven, G. (1998). Modelling the glacial–interglacial changes in the continental biosphere. *Global and Planetary Change*, 16-17 :37–52.

François, L. M., Goddéris, Y., Warnant, P., Ramstein, G., de Noblet, N., and Lorenz, S. (1999). Carbon stocks and isotopic budgets of the terrestrial biosphere at mid-Holocene and last glacial maximum times. *Chemical Geology*, 159(1-4) :163–189.

Fudge, T., Steig, E. J., Markle, B. R., Schoenemann, S. W., Ding, Q., Taylor, K. C., McConnell, J. R., Brook, E. J., Sowers, T., White, J. W., et al. (2013). Onset of deglacial warming in west antarctica driven by local orbital forcing. *Nature*, 500(7463) :440.

Fujita, S., Okuyama, J., Hori, A., and Hondoh, T. (2009). Metamorphism of stratified firn at Dome Fuji, Antarctica : A mechanism for local insolation modulation of gas transport conditions during bubble close off. *Journal of Geophysical Research*, 114.

Fujita, S., Parrenin, F., Severi, M., Motoyama, H., and Wolff, E. W. (2015). Volcanic synchronization of Dome Fuji and Dome C Antarctic deep ice cores over the past 216 kyr. *Climate of the Past*, 11(10) :1395–1416.

Galy, V., François, L., France-Lanord, C., Faure, P., Kudrass, H., Palhol, F., and Singh, S. K. (2008). C4 plants decline in the himalayan basin since the last glacial maximum. *Quaternary Science Reviews*, 27(13-14) :1396–1409.

Ganopolski, A. and Calov, R. (2011). The role of orbital forcing, carbon dioxide and regolith in 100 kyr glacial cycles. *Climate of the Past*, 7(4) :1415–1425.

Gao, C., Robock, A., Self, S., Witter, J. B., Steffenson, J., Clausen, H. B., Siggaard-Andersen, M.-L., Johnsen, S., Mayewski, P. A., and Ammann, C. (2006). The 1452 or 1453 AD kuwae eruption signal derived from multiple ice core records : Greatest volcanic sulfate event of the past 700 years. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 111.

Gérard, J. C., Nemry, B., François, L. M., and Warnant, P. (1999). The interannual change of atmospheric co2 : Contribution of subtropical ecosystems ? *Geophysical Research Letters*, 26(2) :243–246.

Goosse, H., Brovkin, V., Fichefet, T., Haarsma, R., Huybrechts, P., Jongma, J., Mouchet, A., Selten, F., Barriat, P.-Y., Campin, J.-M., Deleersnijder, E., Driesschaert, E., Goelzer, H., Janssens, I., Loutre, M.-F., Morales Maqueda, M. A., Opsteegh, T., Mathieu, P.-P., Munhoven, G., Pettersson, E. J., Renssen, H., Roche, D. M., Schaeffer, M., Tartinville, B., Timmermann, A., and Weber, S. L. (2010). Description of the Earth system model of intermediate complexity LOVECLIM version 1.2. *Geoscientific Model Development*, 3(2) :603–633.

Goosse, H. and Fichefet, T. (1999). Importance of ice-ocean interactions for the global ocean circulation : A model study. *Journal of Geophysical Research : Oceans*, 104(C10) :23337–23355.

Goujon, C., Barnola, J.-M., and Ritz, C. (2003). Modeling the densification of polar firn including heat diffusion : Application to close-off characteristics and gas isotopic fractionation for Antarctica and Greenland sites. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D24) :4792.

Guillevic, M., Bazin, L., Landais, A., Kindler, P., Orsi, A., Masson-Delmotte, V., Blunier, T., Buchardt, S. L., Capron, E., Leuenberger, M., Martinerie, P., Prié, F., and Vinther, B. M. (2013). Spatial gradients of temperature, accumulation and $\delta^{18}O_{ice}$ in Greenland over a series of Dansgaard-Oeschger events. *Climate of the Past*, 9(3) :1029–1051.

Guy, R., Berry, J., Fogel, M., Turpin, D., and Weger, H. (1992). Fractionation of the stable isotopes of oxygen during respiration by plants—the basis of a new technique to estimate partitioning to the alternative path. *Molecular, Biochemical and Physiological Aspects of Plant Respiration. Academic Publishing, The Hague, The Netherlands*.

Guy, R. D., Fogel, M. L., and Berry, J. A. (1993). Photosynthetic fractionation of the stable isotopes of oxygen and carbon. *Plant Physiology*, 101(1) :37–47.

Hammer, C., Clausen, H., Dansgaard, W., Gundestrup, N., Johnsen, S., and Reeh, N. (1978). Dating of greenland ice cores by flow models, isotopes, volcanic debris, and continental dust. *Journal of Glaciology*, 20(82) :3–26.

Hargreaves, J. C., Annan, J. D., Yoshimori, M., and Abe-Ouchi, A. (2012). Can the last glacial maximum constrain climate sensitivity ? *Geophysical Research Letters*, 39(24).

Heinrich, H. (1988). Origin and consequences of cyclic ice rafting in the northeast atlantic ocean during the past 130,000 years. *Quaternary research*, 29(2) :142–152.

Helliker, B. R. and Ehleringer, J. R. (2000). Establishing a grassland signature in veins : $^{18}O$ in the leaf water of C3 and C4 grasses. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 97(14) :7894–7898.

Helman, Y. (2005). Fractionation of the Three Stable Oxygen Isotopes by Oxygen-Producing and Oxygen-Consuming Reactions in Photosynthetic Organisms. *PLANT PHYSIOLOGY*, 138(4) :2292–2298.

Hendricks, M. B., Bender, M. L., and Barnett, B. A. (2004). Net and gross o2 production in the southern ocean from measurements of biological o2 saturation and its triple isotope composition. *Deep Sea Research Part I : Oceanographic Research Papers*, 51(11) :1541–1561.

Henrot, A. (2010). *Modelling climate and vegetation interactions. Application to the study of paleoclimates and paleovegetations*. PhD thesis, Université de Liège, Liège, Belgique.

Henrot, A.-J., François, L., Brewer, S., and Munhoven, G. (2009). Impacts of land surface properties and atmospheric $CO_2$ on the last glacial maximum climate : a factor separation analysis. *Climate of the Past*, 5(2) :183–202.

Henrot, A.-J., Utescher, T., Erdei, B., Dury, M., Hamon, N., Ramstein, G., Krapp, M., Herold, N., Goldner, A., Favre, E., Munhoven, G., and François, L. (2017). Middle Miocene climate and vegetation models and their validation with proxy data. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 467 :95–119.

Hodell, D. A., Channell, J. E. T., Curtis, J. H., Romero, O. E., and Röhl, U. (2008). Onset of "Hudson Strait" Heinrich events in the eastern North Atlantic at the end of the middle Pleistocene transition (640 ka) ? : PLEISTOCENE HEINRICH EVENTS. *Paleoceanography*, 23(4) :1–18.

Hodell, D. A., Nicholl, J. A., Bontognali, T. R. R., Danino, S., Dorador, J., Dowdeswell, J. A., Einsle, J., Kuhlmann, H., Martrat, B., Mleneck-Vautravers, M. J., Rodríguez-Tovar, F. J., and Röhl, U. (2017). Anatomy of Heinrich Layer 1 and its role in the last deglaciation : HEINRICH EVENT 1. *Paleoceanography*, 32(3) :284–303.

Hoffmann, G., Cuntz, M., Weber, C., Ciais, P., Friedlingstein, P., Heimann, M., Jouzel, J., Kaduk, J., Maier-Reimer, E., Seibt, U., and Six, K. (2004). A model of the Earth's Dole effect. *Global Biogeochemical Cycles*, 18(1) :1–15.

Hubert, B., François, L., Warnant, P., and Strivay, D. (1998). Stochastic generation of meteorological variables and effects on global models of water and carbon cycles in vegetation and soils. *Journal of hydrology*, 212 :318–334.

Hutterli, M. A., Schneebeli, M., Freitag, J., Kipfstuhl, J., and Rothlisberger, R. (2010). Impact of Local Insolation on Snow Metamorphism and Ice Core Records. *Hokkaido University Press, Sapporo, Japan*, pages 223–232.

Imbrie, J. and Imbrie, J. Z. (1980). Modeling the climatic response to orbital variations. *Science*, 207(4434) :943–953.

Jiang, X., Kong, X., Wang, Y., Cheng, H., Wu, J., and Chen, S. (2010). Orbital- and millennial-scale variability of the Asian monsoon during MIS8 from Sanbao Cave at Mount Shennongjia, central China. *Chinese Science Bulletin*, 55(11) :1041–1046.

Jouzel, J., Hoffmann, G., Parrenin, F., and Waelbroeck, C. (2002). Atmospheric oxygen 18 and sea-level changes. *Quaternary Science Reviews*, 21(1-3) :307–314.

Jouzel, J., Masson-Delmotte, V., Cattani, O., Dreyfus, G., Falourd, S., Hoffmann, G., Minster, B., Nouet, J., Barnola, J. M., Chappellaz, J., Fischer, H., Gallet, J. C., Johnsen, S., Leuenberger, M., Loulergue, L., Luethi, D., Oerter, H., Parrenin, F., Raisbeck, G., Raynaud, D., Schilt, A., Schwander, J., Selmo, E., Souchez, R., Spahni, R., Stauffer, B., Steffensen, J. P., Stenni, B., Stocker, T. F., Tison, J. L., Werner, M., and Wolff, E. W. (2007). Orbital and Millennial Antarctic Climate Variability over the Past 800,000 Years. *Science*, 317(5839) :793–796.

Jouzel, J., Vimeux, F., Caillon, N., Delaygue, G., Hoffmann, G., Masson-Delmotte, V., and Parrenin, F. (2003). Magnitude of isotope/temperature scaling for interpretation of central antarctic ice cores. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D12).

Jouzel, J., Waelbroeck, C., Malaize, B., Bender, M., Petit, J. R., Stievenard, M., Barkov, N. I., Barnola, J. M., King, T., Kotlyakov, V. M., and others (1996). Climatic interpretation of the recently extended Vostok ice records. *Climate Dynamics*, 12(8) :513–521.

Kawamura, K., Parrenin, F., Lisiecki, L., Uemura, R., Vimeux, F., Severinghaus, J. P., Hutterli, M. A., Nakazawa, T., Aoki, S., Jouzel, J., Raymo, M. E., Matsumoto, K., Nakata, H.,

Motoyama, H., Fujita, S., Goto-Azuma, K., Fujii, Y., and Watanabe, O. (2007). Northern Hemisphere forcing of climatic cycles in Antarctica over the past 360,000 years. *Nature*, 448(7156) :912–916.

Kiddon, J., Bender, M. L., Orchardo, J., Caron, D. A., Goldman, J. C., and Dennett, M. (1993). Isotopic fractionation of oxygen by respiring marine organisms. *Global Biogeochemical Cycles*, 7(3) :679–694.

Kim, S.-T. and O'Neil, J. R. (1997). Equilibrium and nonequilibrium oxygen isotope effects in synthetic carbonates. *Geochimica et cosmochimica acta*, 61(16) :3461–3475.

Kindler, P., Guillevic, M., Baumgartner, M., Schwander, J., Landais, A., and Leuenberger, M. (2014). Temperature reconstruction from 10 to 120 kyr b2k from the NGRIP ice core. *Climate of the Past*, 10(2) :887–902.

Kitover, D., Van Balen, R., Roche, D., Vandenberghe, J., and Renssen, H. (2015). Advancement toward coupling of the vamper permafrost model within the earth system model iloveclim (version 1.0) : description and validation. *Geoscientific Model Development*, 8(5) :1445–1460.

Kopp, R. E., Simons, F. J., Mitrovica, J. X., Maloof, A. C., and Oppenheimer, M. (2009). Probabilistic assessment of sea level during the last interglacial stage. *Nature*, 462(7275) :863.

Kroopnick, P. and Craig, H. (1976). Oxygen isotope fractionation in dissolved oxygen in the deep sea. *Earth and Planetary Science Letters*, 32(2) :375–388.

Laing, W. A., Ogren, W. L., and Hageman, R. H. (1974). Regulation of soybean net photosynthetic $CO_2$ fixation by the interaction of $CO_2$, $O_2$, and ribulose 1,5-diphosphate carboxylase. *Plant Physiology*, 54(5) :678–685.

Lambert, F., Delmonte, B., Petit, J. R., Bigler, M., Kaufmann, P. R., Hutterli, M. A., Stocker, T. F., Ruth, U., Steffensen, J. P., and Maggi, V. (2008). Dust-climate couplings over the past 800,000 years from the EPICA Dome C ice core. *Nature*, 452(7187) :616–619.

Landais, A., Barkan, E., Yakir, D., and Luz, B. (2006). The triple isotopic composition of oxygen in leaf water. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 70(16) :4105–4115.

Landais, A., Caillon, N., Goujon, C., Grachev, A., Barnola, J., Chappellaz, J., Jouzel, J., Masson-Delmotte, V., and Leuenberger, M. (2004). Quantification of rapid temperature change during DO event 12 and phasing with methane inferred from air isotopic measurements. *Earth and Planetary Science Letters*, 225(1-2) :221–232.

Landais, A., Capron, E., Masson-Delmotte, V., Toucanne, S., Rhodes, R. H., Popp, T., Vinther, B., Minster, B., and Prié, F. (2018). Ice core evidence for decoupling between midlatitude atmospheric water cycle and greenland temperature during the last deglaciation. *Climate of the Past*, 14(10) :1405–1415.

Landais, A., Chappellaz, J., Delmotte, M., Jouzel, J., Blunier, T., Bourg, C., Caillon, N., Cherrier, S., Malaizé, B., Masson-Delmotte, V., Raynaud, D., Schwander, J., and Steffensen, J. P. (2003). A tentative reconstruction of the last interglacial and glacial inception in Greenland based on new gas measurements in the Greenland Ice Core Project (GRIP) ice core. *Journal of Geophysical Research*, 108(D18).

Landais, A., Dreyfus, G., Capron, E., Jouzel, J., Masson-Delmotte, V., Roche, D. M., Prié, F., Caillon, N., Chappellaz, J., Leuenberger, M., Lourantou, A., Parrenin, F., Raynaud, D., and Teste, G. (2013). Two-phase change in $CO_2$, Antarctic temperature and global climate during Termination II. *Nature Geoscience*, 6(12) :1062–1065.

Landais, A., Dreyfus, G., Capron, E., Masson-Delmotte, V., Sanchez-Goñi, M., Desprat, S., Hoffmann, G., Jouzel, J., Leuenberger, M., and Johnsen, S. (2010). What drives the millennial and orbital variations of $^{18}O_{atm}$ ? *Quaternary Science Reviews*, 29(1-2) :235–246.

Landais, A., Dreyfus, G., Capron, E., Pol, K., Loutre, M. F., Raynaud, D., Lipenkov, V. Y., Arnaud, L., Masson-Delmotte, V., Paillard, D., Jouzel, J., and Leuenberger, M. (2012). Towards orbital dating of the EPICA Dome C ice core using $O_2/N_2$. *Climate of the Past*, 8(1) :191–203.

Landais, A., Lathiere, J., Barkan, E., and Luz, B. (2007a). Reconsidering the change in global biosphere productivity between the Last Glacial Maximum and present day from the triple oxygen isotopic composition of air trapped in ice cores : THREE ISOTOPES OF OXYGEN AND PRODUCTIVITY. *Global Biogeochemical Cycles*, 21(1) :1–13.

Landais, A., Masson-Delmotte, V., Combourieu Nebout, N., Jouzel, J., Blunier, T., Leuenberger, M., Dahl-Jensen, D., and Johnsen, S. (2007b). Millenial scale variations of the isotopic composition of atmospheric oxygen over Marine Isotopic Stage 4. *Earth and Planetary Science Letters*, 258(1-2) :101–113.

Lang, C., Leuenberger, M., Schwander, J., and Johnsen, S. (1999). 16°C rapid temperature variation in central greenland 70,000 years ago. *Science*, 286(5441) :934–937.

Laskar, J., Robutel, P., Joutel, F., Gastineau, M., Correia, A. C. M., and Levrard, B. (2004). A long-term numerical solution for the insolation quantities of the Earth. *Astronomy & Astrophysics*, 428(1) :261–285.

Laurent, J., François, L., Barhen, A., Bel, L., and Cheddadi, R. (2008). European bioclimatic affinity groups : Data-model comparisons. *Global and Planetary Change*, 61(1-2) :28–40.

Lemieux-Dudon, B., Blayo, E., Petit, J.-R., Waelbroeck, C., Svensson, A., Ritz, C., Barnola, J.-M., Narcisi, B. M., and Parrenin, F. (2010). Consistent dating for Antarctic and Greenland ice cores. *Quaternary Science Reviews*, 29(1-2) :8–20.

Leuenberger, M. C. (1997). Modeling the signal transfer of sea water $\delta^{18}$O to the $\delta^{18}$O of atmospheric oxygen using a diagnostic box model for the terrestrial and marine biosphere. *Journal of Geophysical Research : Oceans*, 102(C12) :26841–26850.

Li, C., Battisti, D. S., Schrag, D. P., and Tziperman, E. (2005). Abrupt climate shifts in greenland due to displacements of the sea ice edge. *Geophysical Research Letters*, 32(19).

Lisiecki, L. E. and Lisiecki, P. A. (2002). Application of dynamic programming to the correlation of paleoclimate records. *Paleoceanography*, 17(4).

Lisiecki, L. E. and Raymo, M. E. (2005). A Pliocene-Pleistocene stack of 57 globally distributed benthic $^{18}$ O records. *Paleoceanography*, 20(1).

Lloyd, J. and Farquhar, G. D. (1994). $^{13}$C discrimination during $CO_2$ assimilation by the terrestrial biosphere. *Oecologia*, 99(3-4) :201–215.

Loulergue, L., Schilt, A., Spahni, R., Masson-Delmotte, V., Blunier, T., Lemieux, B., Barnola, J.-M., Raynaud, D., Stocker, T. F., and Chappellaz, J. (2008). Orbital and millennial-scale features of atmospheric $CH_4$ over the past 800,000 years. *Nature*, 453(7193) :383–386.

Luz, B. and Barkan, E. (2011). THE ISOTOPIC COMPOSITION OF ATMOSPHERIC OXYGEN. *Global Biogeochemical Cycles*, 25(3) :1–14.

Luz, B., Barkan, E., Bender, M. L., Thiemens, M. H., and Boering, K. A. (1999). Triple-isotope composition of atmospheric oxygen as a tracer of biosphere productivity. *Nature*, 400(6744) :547.

Luz, B., Barkan, E., Sagi, Y., and Yacobi, Y. Z. (2002). Evaluation of community respiratory mechanisms with oxygen isotopes : A case study in lake kinneret. *Limnology and Oceanography*, 47(1) :33–42.

Mahowald, N., Kohfeld, K., Hansson, M., Balkanski, Y., Harrison, S. P., Prentice, I. C., Schulz, M., and Rodhe, H. (1999). Dust sources and deposition during the last glacial maximum and current climate : A comparison of model results with paleodata from ice cores and marine sediments. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 104(D13) :15895–15916.

Majoube, M. (1971). Fractionnement en oxygène 18 et en deutérium entre l'eau et sa vapeur. *Journal de Chimie Physique*, 68 :1423–1436.

Malaizé, B., Paillard, D., Jouzel, J., and Raynaud, D. (1999). The Dole effect over the last two glacial-interglacial cycles. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 104(D12) :14199–14208.

Masson, V., Braconnot, P., Jouzel, J., de Noblet, N., Cheddadi, R., and Marchal, O. (2000). Simulation of intense monsoons under glacial conditions. *Geophysical Research Letters*, 27(12) :1747–1750.

Masson-Delmotte, V., Stenni, B., and Jouzel, J. (2004). Common millennial-scale variability of antarctic and southern ocean temperatures during the past 5000 years reconstructed from the EPICA Dome C ice core. *The Holocene*, 14(2) :145–151.

McClymont, E. L., Sosdian, S. M., Rosell-Melé, A., and Rosenthal, Y. (2013). Pleistocene sea-surface temperature evolution : Early cooling, delayed glacial intensification, and implications for the mid-pleistocene climate transition. *Earth-Science Reviews*, 123 :173–193.

McManus, J. F., Oppo, D. W., and Cullen, J. L. (1999). A 0.5-million-year record of millennial-scale climate variability in the North Atlantic. *Science*, 283(5404) :971–975.

Mehler, A. H. (1951). Studies on reactions of illuminated chloroplasts. II. Stimulation and inhibition of the reaction with molecular oxygen. *Archives of Biochemistry and Biophysics*, 34(2) :339–351.

Merlivat, L. and Nief, G. (1967). Fractionnement isotopique lors des changements d 'état solide-vapeur et liquide-vapeur de l'eau à des températures inférieures à 0°C. *Tellus*, 19(1) :122–127.

Milankovitch, M. (1941). Kanon der erdbestrahlung und seine anwendung auf das eiszeiten-problem. *Royal Serbian Academy Special Publication*, 133 :1–633.

Minet, J., Jacquemin, I., and François, L. (2013). Caraib user's guide.

Mook, W. and Rozanski, K. (2000). *Environmental isotopes in the hydrological cycle, Volume II, Atmospheric water*.

Morita, N. (1935). The increased density of air oxygen relative to water oxygen. *Journal of Chemical Society of Japan*, 56 :1291.

Narcisi, B., Petit, J. R., and Tiepolo, M. (2006). A volcanic marker (92 ka) for dating deep east antarctic ice cores. *Quaternary Science Reviews*, 25(21-22) :2682–2687.

Nemry, B., François, L., Warnant, P., Robinet, F., and Gérard, J.-C. (1996). The seasonality of the $CO_2$ exchange between the atmosphere and the land biosphere : a study with a global mechanistic vegetation model. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 101(D3) :7111–7125.

NorthGRIP Community Members (2004). High-resolution record of northern hemisphere climate extending into the last interglacial period. *Nature*, 431(7005) :147.

Opsteegh, J., Haarsma, R., Selten, F., and Kattenberg, A. (1998). Ecbilt : A dynamic alternative to mixed boundary conditions in ocean models. *Tellus A : Dynamic Meteorology and Oceanography*, 50(3) :348–367.

Otto, D., Rasse, D., Kaplan, J., Warnant, P., and François, L. (2002). Biospheric carbon stocks reconstructed at the Last Glacial Maximum : comparison between general circulation models using prescribed and computed sea surface temperatures. *Global and Planetary Change*, 33(1-2) :117–138.

Pahnke, K. (2003). 340,000-Year Centennial-Scale Marine Record of Southern Hemisphere Climatic Oscillation. *Science*, 301(5635) :948–952.

Paillard, D. (1998). The timing of pleistocene glaciations from a simple multiple-state climate model. *Nature*, 391(6665) :378.

Parrenin, F., Barnola, J.-M., Beer, J., Blunier, T., Castellano, E., Chappellaz, J., Dreyfus, G., Fischer, H., Fujita, S., Jouzel, J., and others (2007). The EDC3 chronology for the EPICA Dome C ice core. *Climate of the Past*, 3(3) :485–497.

Parrenin, F., Jouzel, J., Waelbroeck, C., Ritz, C., and Barnola, J.-M. (2001). Dating the vostok ice core by an inverse method. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 106(D23) :31837–31851.

Pedro, J. B., Bostock, H. C., Bitz, C. M., He, F., Vandergoes, M. J., Steig, E. J., Chase, B. M., Krause, C. E., Rasmussen, S. O., Markle, B. R., and Cortese, G. (2016). The spatial extent and dynamics of the Antarctic Cold Reversal. *Nature Geoscience*, 9(1) :51–55.

Pedro, J. B., Jochum, M., Buizert, C., He, F., Barker, S., and Rasmussen, S. O. (2018). Beyond the bipolar seesaw : Toward a process understanding of interhemispheric coupling. *Quaternary Science Reviews*, 192 :27–46.

Peltier, W. (2004). Global glacial isostasy and the surface of the ice-age earth : the ICE-5G (VM2) model and GRACE. *Annu. Rev. Earth Planet. Sci.*, 32 :111–149.

Pena, L. D. and Goldstein, S. L. (2014). Thermohaline circulation crisis and impacts during the mid-pleistocene transition. *Science*, 345(6194) :318–322.

Pérez-Mejías, C., Moreno, A., Sancho, C., Bartolomé, M., Stoll, H., Cacho, I., Cheng, H., and Edwards, R. L. (2017). Abrupt climate changes during Termination III in Southern Europe. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 114(38) :10047–10052.

Petersen, S. V., Schrag, D. P., and Clark, P. U. (2013). A new mechanism for dansgaard-oeschger cycles. *Paleoceanography*, 28(1) :24–30.

Petit, J.-R., Jouzel, J., Raynaud, D., Barkov, N. I., Barnola, J.-M., Basile, I., Bender, M., Chappellaz, J., Davis, M., Delaygue, G., et al. (1999). Climate and atmospheric history of the past 420,000 years from the Vostok ice core, Antarctica. *Nature*, 399(6735) :429.

Popova, S., Utescher, T., Gromyko, D. V., Mosbrugger, V., Herzog, E., and François, L. (2013). Vegetation change in siberia and the northeast of russia during the cenozoic cooling : A study based on diversity of plant functional types. *Palaios*, 28(7) :418–432.

Raisbeck, G. M., Yiou, F., Jouzel, J., and Stocker, T. F. (2007). Direct north-south synchronization of abrupt climate change record in ice cores using Beryllium 10. *Clim. Past*, page 7.

Rasmussen, S. O., Andersen, K. K., Svensson, A., Steffensen, J. P., Vinther, B. M., Clausen, H. B., Siggaard-Andersen, M.-L., Johnsen, S. J., Larsen, L. B., Dahl-Jensen, D., et al. (2006). A new greenland ice core chronology for the last glacial termination. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 111.

Raymo, M., Lisiecki, L., and Nisancioglu, K. H. (2006). Plio-pleistocene ice volume, antarctic climate, and the global $\delta^{18}$O record. *Science*, 313(5786) :492–495.

Raymo, M., Oppo, D., and Curry, W. (1997). The mid-pleistocene climate transition : A deep sea carbon isotopic perspective. *Paleoceanography*, 12(4) :546–559.

Raynaud, D., Lipenkov, V., Lemieux-Dudon, B., Duval, P., Loutre, M.-F., and Lhomme, N. (2007). The local insolation signature of air content in Antarctic ice. A new step toward an absolute dating of ice records. *Earth and Planetary Science Letters*, 261(3-4) :337–349.

Reimer, P. J., Baillie, M. G., Bard, E., Bayliss, A., Beck, J. W., Bertrand, C. J., Blackwell, P. G., Buck, C. E., Burr, G. S., Cutler, K. B., et al. (2004). Intcal04 terrestrial radiocarbon age calibration, 0-26 cal kyr bp. *Radiocarbon*, 46(3) :1029–1058.

Reutenauer, C., Landais, A., Blunier, T., Bréant, C., Kageyama, M., Woillez, M.-N., Risi, C., Mariotti, V., and Braconnot, P. (2015). Quantifying molecular oxygen isotope variations during a Heinrich stadial. *Climate of the Past*, 11(11) :1527–1551.

Rhodes, R. H., Brook, E. J., Chiang, J. C., Blunier, T., Maselli, O. J., McConnell, J. R., Romanini, D., and Severinghaus, J. P. (2015). Enhanced tropical methane production in response to iceberg discharge in the North Atlantic. *Science*, 348(6238) :1016–1019.

Roche, D. and Caley, T. (2013). $\delta^{18}$O water isotope in the iLOVECLIM model (version 1.0)-part 2 : Evaluation of model results against observed $\delta$18O in water samples. *Geoscientific Model Development*, 6(5).

Roche, D., Dumas, C., Bügelmayer, M., Charbit, S., and Ritz, C. (2014). Adding a dynamical cryosphere to iLOVECLIM (version 1.0) : coupling with the GRISLI ice-sheet model. *Geoscientific Model Development*, 7(4) :1377–1394.

Roche, D. M. (2013). $\delta^{18}$O water isotope in the *i*LOVECLIM model (version 1.0) – Part 1 : Implementation and verification. *Geoscientific Model Development*, 6(5) :1481–1491.

Roche, D. M., Wiersma, A. P., and Renssen, H. (2010). A systematic study of the impact of freshwater pulses with respect to different geographical locations. *Climate Dynamics*, 34(7-8) :997–1013.

Ruddiman, W. F. (1977). Late quaternary deposition of ice-rafted sand in the subpolar north atlantic (lat 40 to 65 n). *Geological Society of America Bulletin*, 88(12) :1813–1827.

Ruddiman, W. F. (2008). *Earth's Climate : past and future, second edition*. Macmillan.

Sanchez-Goñi, M. F., Desprat, S., Daniau, A.-L., Bassinot, F. C., Polanco-Martínez, J. M., Harrison, S. P., Allen, J. R., Scott Anderson, R., Behling, H., Bonnefille, R., et al. (2017). The acer pollen and charcoal database : a global resource to document vegetation and fire response to abrupt climate changes during the last glacial period.

Saxton, K., Rawls, W., Romberger, J., and Papendick, R. (1986). Estimating generalized soil-water characteristics from texture 1. *Soil Science Society of America Journal*, 50(4) :1031–1036.

Schlesinger, W. H. and Andrews, J. A. (2000). Soil respiration and the global carbon cycle. *Biogeochemistry*, 48(1) :7–20.

Schulz, M., Paul, A., and Timmermann, A. (2002). Relaxation oscillators in concert : A framework for climate change at millennial timescales during the late pleistocene. *Geophysical Research Letters*, 29(24) :46–1.

Schwander, J. (1989). The transformation of snow to ice and the occlusion of gases. *The environmental record in glaciers and ice sheets*, pages 53–67.

Schwander, J., Jouzel, J., Hammer, C. U., Petit, J.-R., Udisti, R., and Wolff, E. (2001). A tentative chronology for the EPICA Dome Concordia ice core. *Geophysical research letters*, 28(22) :4243–4246.

Seltzer, A. M., Buizert, C., Baggenstos, D., Brook, E. J., Ahn, J., Yang, J.-W., and Severinghaus, J. P. (2017). Does $^{18}O$ of $O_2$ record meridional shifts in tropical rainfall ? *Climate of the Past*, 13(10) :1323–1338.

Severinghaus, J. and Battle, M. (2006). Fractionation of gases in polar ice during bubble close-off : New constraints from firn air Ne, Kr and Xe observations. *Earth and Planetary Science Letters*, 244(1-2) :474–500.

Severinghaus, J. P., Albert, M. R., Courville, Z. R., Fahnestock, M. A., Kawamura, K., Montzka, S. A., M{ühle, J., Scambos, T. A., Shields, E., Shuman, C. A., Suwa, M., Tans, P., and Weiss, R. F. (2010). Deep air convection in the firn at a zero-accumulation site, central Antarctica. *Earth and Planetary Science Letters*, 293(3-4) :359–367.

Severinghaus, J. P., Beaudette, R., Headly, M. A., Taylor, K., and Brook, E. J. (2009). Oxygen-18 of $O_2$ Records the Impact of Abrupt Climate Change on the Terrestrial Biosphere. *Science*, 324(5933) :1431–1434.

Severinghaus, J. P., Grachev, A., Luz, B., and Caillon, N. (2003). A method for precise measurement of argon 40/36 and krypton/argon ratios in trapped air in polar ice with applications to past firn thickness and abrupt climate change in Greenland and at Siple Dome, Antarctica. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 67(3) :325–343.

Severinghaus, J. P., Sowers, T., Brook, E. J., Alley, R. B., and Bender, M. L. (1998). Timing of abrupt climate change at the end of the Younger Dryas interval from thermally fractionated gases in polar ice. *Nature*, 391(6663) :141–146.

Shackleton, N., Fairbanks, R., Chiu, T.-c., and Parrenin, F. (2004). Absolute calibration of the Greenland time scale : implications for Antarctic time scales and for $^{14}C$. *Quaternary Science Reviews*, 23(14-15) :1513–1522.

Shackleton, N. J. (1969). The last interglacial in the marine and terrestrial records. *Proceedings of the Royal Society of London. Series B. Biological Sciences*, 174(1034) :135–154.

Shackleton, N. J. (2000). The 100,000-year ice-age cycle identified and found to lag temperature, carbon dioxide, and orbital eccentricity. *Science*, 289(5486) :1897–1902.

Shackleton, N. J., Sánchez-Goñi, M. F., Pailler, D., and Lancelot, Y. (2003). Marine isotope substage 5e and the eemian interglacial. *Global and Planetary change*, 36(3) :151–155.

Sigl, M., Fudge, T. J., Winstrup, M., Cole-Dai, J., Ferris, D., McConnell, J. R., Taylor, K. C., Welten, K. C., Woodruff, T. E., Adolphi, F., et al. (2016). The wais divide deep ice core WD2014 chronology–part 2 : Annual-layer counting (0–31 ka bp). *Climate of the Past*, 12(3) :769–786.

Sowers, T., Bender, M., and Raynaud, D. (1989). Elemental and isotopic composition of occluded $O_2$ and $N_2$ in polar ice. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 94(D4) :5137–5150.

Sowers, T., Bender, M., Raynaud, D., and Korotkevich, Y. S. (1992). $^{15}N$ of $N_2$ in air trapped in polar ice : A tracer of gas transport in the firn and a possible constraint on ice age-gas age differences. *Journal of Geophysical Research*, 97(D14) :15683.

Stanford, J., Rohling, E. J., Bacon, S., Roberts, A., Grousset, F., and Bolshaw, M. (2011). A new concept for the paleoceanographic evolution of heinrich event 1 in the north atlantic. *Quaternary Science Reviews*, 30(9-10) :1047–1066.

Stauffer, B., Blunier, T., Dällenbach, A., Indermühle, A., Schwander, J., Stocker, T., Tschumi, J., Chappellaz, J., Raynaud, D., Hammer, C. U., et al. (1998). Atmospheric $CO_2$ concentration and millennial-scale climate change during the last glacial period. *Nature*, 392(6671) :59.

Stauffer, B., Hofer, H., Oeschger, H., Schwander, J., and Siegenthaler, U. (1984). Atmospheric $CO_2$ concentration during the last glaciation. *Annals of Glaciology*, 5 :160–164.

Steffensen, J. P. (1997). The size distribution of microparticles from selected segments of the greenland ice core project ice core representing different climatic periods. *Journal of Geophysical Research : Oceans*, 102(C12) :26755–26763.

Stenni, B., Buiron, D., Frezzotti, M., Albani, S., Barbante, C., Bard, E., Barnola, J., Baroni, M., Baumgartner, M., Bonazza, M., et al. (2011). Expression of the bipolar see-saw in antarctic climate records during the last deglaciation. *Nature Geoscience*, 4(1) :46.

Stenni, B., Masson-Delmotte, V., Selmo, E., Oerter, H., Meyer, H., Röthlisberger, R., Jouzel, J., Cattani, O., Falourd, S., Fischer, H., et al. (2010). The deuterium excess records of epica dome c and dronning maud land ice cores (east antarctica). *Quaternary Science Reviews*, 29(1-2) :146–159.

Stocker, T. F. and Johnsen, S. J. (2003). A minimum thermodynamic model for the bipolar seesaw. *Paleoceanography*, 18(4).

Stolper, D., Bender, M., Dreyfus, G., Yan, Y., and Higgins, J. (2016). A pleistocene ice core record of atmospheric o2 concentrations. *Science*, 353(6306) :1427–1430.

Sun, Y., Clemens, S. C., An, Z., and Yu, Z. (2006). Astronomical timescale and palaeoclimatic implication of stacked 3.6-myr monsoon records from the chinese loess plateau. *Quaternary Science Reviews*, 25(1-2) :33–48.

Suwa, M. and Bender, M. L. (2008). Chronology of the Vostok ice core constrained by $O_2/N_2$ ratios of occluded air, and its implication for the Vostok climate records. *Quaternary Science Reviews*, 27(11-12) :1093–1106.

Thiemens, M. H. (1999). Mass-Independent Isotope Effects in Planetary Atmospheres and the Early Solar System. *Science*, 283(5400) :341–345.

Thiemens, M. H. and Jackson, T. (1987). Production of isotopically heavy ozone by ultraviolet light photolysis of $O_2$. *Geophysical Research Letters*, 14(6) :624–627.

Thompson, W. G. and Goldstein, S. L. (2005). Open-system coral ages reveal persistent suborbital sea-level cycles. *Science*, 308(5720) :401–404.

Tjallingii, R., Claussen, M., Stuut, J.-B. W., Fohlmeister, J., Jahn, A., Bickert, T., Lamy, F., and Röhl, U. (2008). Coherent high-and low-latitude control of the northwest african hydrological balance. *Nature Geoscience*, 1(10) :670.

Toucanne, S., Zaragosi, S., Bourillet, J.-F., Marieu, V., Cremer, M., Kageyama, M., Van Vliet-Lanoë, B., Eynaud, F., Turon, J.-L., and Gibbard, P. L. (2010). The first estimation of fleuve manche palaeoriver discharge during the last deglaciation : Evidence for fennoscandian ice sheet meltwater flow in the english channel ca 20–18 ka ago. *Earth and Planetary Science Letters*, 290(3-4) :459–473.

Turner, A. G. and Annamalai, H. (2012). Climate change and the south asian summer monsoon. *Nature Climate Change*, 2(8) :587.

Turner, C. and West, R. (1968). The subdivision and zonation of interglacial periods. *Eiszeitalter und Gegenwart*, 19(93) :101.

Utescher, T., Erdei, B., François, L., and Mosbrugger, V. (2007). Tree diversity in the miocene forests of western eurasia. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 253(1-2) :226–250.

Van Geel, B., Raspopov, O., Renssen, H., Van der Plicht, J., Dergachev, V., and Meijer, H. (1999). The role of solar forcing upon climate change. *Quaternary Science Reviews*, 18(3) :331–338.

Van Wijk, M., Dekker, S., Bouten, W., Bosveld, F., Kohsiek, W., Kramer, K., and Mohren, G. (2000). Modeling daily gas exchange of a douglas-fir forest : comparison of three stomatal conductance models with and without a soil water stress function. *Tree Physiology*, 20(2) :115–122.

Veres, D., Bazin, L., Landais, A., Toyé Mahamadou Kele, H., Lemieux-Dudon, B., Parrenin, F., Martinerie, P., Blayo, E., Blunier, T., Capron, E., Chappellaz, J., Rasmussen, S. O., Severi, M., Svensson, A., Vinther, B., and Wolff, E. W. (2013). The Antarctic ice core chronology

(AICC2012) : an optimized multi-parameter and multi-site dating approach for the last 120 thousand years. *Climate of the Past*, 9(4) :1733–1748.

Vettoretti, G. and Peltier, W. R. (2016). Thermohaline instability and the formation of glacial north atlantic super polynyas at the onset of warming events. *Geophysical Research Letters*, 43(10) :5336–5344.

Von Caemmerer, S. (2000). *Biochemical models of leaf photosynthesis*. Csiro publishing.

Waelbroeck, C., Frank, N., Jouzel, J., Parrenin, F., Masson-Delmotte, V., and Genty, D. (2008). Transferring radiometric dating of the last interglacial sea level high stand to marine and ice core records. *Earth and Planetary Science Letters*, 265(1-2) :183–194.

Waelbroeck, C., Labeyrie, L., Michel, E., Duplessy, J. C., McManus, J., Lambeck, K., Balbon, E., and Labracherie, M. (2002). Sea-level and deep water temperature changes derived from benthic foraminifera isotopic records. *Quaternary Science Reviews*, 21(1-3) :295–305.

Wang, X.-F., Yakir, D., and Avishai, M. (1998). Non-climatic variations in the oxygen isotopic compositions of plants. *Global Change Biology*, 4(8) :835–849.

Wang, Y., Cheng, H., Edwards, R. L., Kong, X., Shao, X., Chen, S., Wu, J., Jiang, X., Wang, X., and An, Z. (2008). Millennial- and orbital-scale changes in the East Asian monsoon over the past 224,000 years. *Nature*, 451(7182) :1090–1093.

Wang, Y. J., Cheng, H., Edwards, R. L., An, Z., Wu, J., Shen, C.-C., and Dorale, J. A. (2001). A High-Resolution Absolute-Dated Late Pleistocene Monsoon Record from Hulu Cave, China. *Science*, 294(5550) :2345–2348.

Warnant, P., François, L., Strivay, D., and Gérard, J.-C. (1994). CARAIB : A global model of terrestrial biological productivity. *Global Biogeochemical Cycles*, 8(3) :255–270.

Yiou, F., Raisbeck, G. M., Baumgartner, S., Beer, J., Hammer, C., Johnsen, S., Jouzel, J., Kubik, P. W., Lestringuez, J., Stiévenard, M., Suter, M., and Yiou, P. (1997). Beryllium 10 in the Greenland Ice Core Project ice core at Summit, Greenland. *Journal of Geophysical Research : Oceans*, 102(C12) :26783–26794.

Yuan, D. (2004). Timing, Duration, and Transitions of the Last Interglacial Asian Monsoon. *Science*, 304(5670) :575–578.

Yung, Y. L., DeMore, W. B., and Pinto, J. P. (1991). Isotopic exchange between carbon dioxide and ozone via O( $^1$ D) in the stratosphere. *Geophysical Research Letters*, 18(1) :13–16.

Yung, Y. L., Lee, A. Y. T., Irion, F. W., DeMore, W. B., and Wen, J. (1997). Carbon dioxide in the atmosphere : Isotopic exchange with ozone and its use as a tracer in the middle atmosphere. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 102(D9) :10857–10866.

# Table des figures


1 Données historiques et projections futures des précipitations sur le Sud de l'Asie 14
2 Schéma de la durée couverte par différentes archives paléoclimatiques . . . . . 15
3 Classification des différents types de modèles de climat . . . . . 16
4 Variations climatiques du Quaternaire . . . . . 18
5 Description des paramètres de Milankovitch . . . . . 20
6 Variations climatiques rapides des derniers 130 ka . . . . . 22

1.1 Comparaison des données existantes de $\delta^{18}O_{atm}$ aux sites de Dome C, Vostok et Dome F sur les derniers 650 ka . . . . . 30
1.2 Schéma des principales contributions au $\delta^{18}O_{atm}$ . . . . . 32
1.3 Schéma du cycle de l'oxygène . . . . . 34
1.4 Schéma représentant le fractionnement isotopique lors du cycle de l'eau . . . . 36

2.1 Carte des différents sites de forage antarctique . . . . . 52
2.2 Evolution du flux de poussières à Dome C au cours des derniers 800 ka . . . . 54
2.3 Variabilité millénaire au cours des 3 dernières terminaisons . . . . . 56
2.4 Schéma descriptif des différentes zones du névé . . . . . 58
2.5 Variations du $\delta O_2/N_2$ entre 100 et 800 ka pour les sites antarctiques de Dome C, Vostok et Dome F. . . . . 60
2.6 Profils du $\delta^{18}O_{atm}$ sur les chronologies EDC2 et EDC3 . . . . . 67
2.7 Evolution des isotopes de l'eau à EDC sur différentes chronologies . . . . . 69
2.8 Evènements de Dansgaard-Oescher des derniers 50 ka . . . . . 70
2.9 Schéma de la ligne d'extraction semi-automatique de l'air piégé dans la glace . 72

3.1 Nouvelles données de $\delta^{18}O_{atm}$ et $\delta O_2/N_2$ à Dome C . . . . . 77

3.2 Décalage entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation d'été à 65°N entre 100 et 650 ka . . . 80
3.3 Chronologies de NGRIP au cours de la dernière entrée en glaciation . . . . . 83
3.4 Détail des différents marqueurs d'alignement (et leurs incertitudes) utilisés pour l'alignement du $\delta^{18}O_{atm}$ avec le $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques entre 100 et 640 ka . . . . . 84
3.5 Détail des marqueurs utilisés selon la méthode d'alignement sur la dernière entrée en glaciation et comparaison de l'enregistrement de NGRIP sur les différentes chronologies . . . . . 86
3.6 Variations de l'effet Dole au cours des derniers 650 ka . . . . . 105
3.7 Analyse spectrale sur les derniers 800 ka de l'effet Dole, du $\delta^{18}O_{atm}$ et du $\delta^{18}O_{eaudemer}$ . . . . . 106
3.8 Comparaison des isotopes de l'eau et de l'air mesurés à Dome C au cours des quatre dernières terminaisons . . . . . 107
3.9 Variabilité millénaire observée pendant la Terminaison 3 . . . . . 109
3.10 Schéma synthétique des processus lors d'un évènement de Heinrich . . . . . 110

4.1 Description du modèle de complexité intermédiaire iLOVECLIM . . . . . 115
4.2 Description des différentes composantes du modèle de végétation CARAIB . . 116
4.3 Schéma simplifié du couplage du modèle de climat et de végétation . . . . . 120
4.4 Carte d'anomalie de la GPP obtenue entre le modèle couplé et le modèle de végétation seul . . . . . 125
4.5 Comparaison de la végétation obtenue avec CARAIB forcé par iLOVECLIM et avec le modèle couplé . . . . . 125
4.6 Schéma simplifié du couplage avec l'intégration du $\delta^{18}O_{atm}$ . . . . . 127

5.1 Localisation des zones d'ajout d'eau douce testées dans le cadre de la simulation d'un évènement de Heinrich avec iLOVECLIM . . . . . 168
5.2 Evolution de la circulation thermohaline dans l'Atlantique Nord à la suite d'un ajout en eau douce . . . . . 169
5.3 Evolution de la salinité moyenne des océans et de l'anomalie de température suite à un ajout en eau douce dans l'Atlantique Nord . . . . . 170

5.4 Carte des anomalies d'humidité au niveau de la feuille entre un évènement de Heinrich et le Dernier Maximum Glaciaire . . . 171
5.5 Représentation du $\delta^{18}O_{vapeur}$ pendant le Dernier Maximum Glaciaire et un évènement de Heinrich . . . 172
5.6 Représentation du $\delta^{18}O_{eaudusol}$ pendant le Dernier Maximum Glaciaire et un évènement de Heinrich . . . 173
5.7 Anomalies du $\delta^{18}O_{feuille}$ entre un évènement de Heinrich et le Dernier Maximum Glaciaire . . . 174
5.8 Carte des anomalies de distribution de la $GPPO_2$ entre un évènement de Heinrich et le Dernier Maximum Glaciaire . . . 176
5.9 Evolution des proxies basses et hautes latitudes pendant l'évènement de Heinrich 1 . . . 179
5.10 Comparaison modèle-données entre le pré-industriel, le Dernier Maximum Glaciaire et pendant l'évènement de Heinrich 1 . . . 182
5.11 Différence de GPP entre un évènement de Heinrich et le Dernier Maximum Glaciaire . . . 184

6.1 Détails des sous-stades du stade isotopique 5 . . . 188
6.2 Evolution des proxies hautes et basses latitudes entre 130 et 100 ka . . . 190
6.3 Evolution des paramètres climatiques entre 130 et 100 ka . . . 192
6.4 Distribution de la végétation simulée entre 130 et 100 ka . . . 194
6.5 Evolution de la productivité terrestre en oxygène au cours du stade isotopique 5 195
6.6 Evolution du $\delta^{18}O_{feuille}$ entre 130 et 100 ka . . . 197
6.7 Comparaison de la productivité de la biosphère (globale et terrestre) entre le modèle et les données . . . 199
6.8 Comparaison modèle-données du $\delta^{18}O_{atm}$ . . . 201
6.9 Relation entre les variations du $\delta^{18}O_{atm}$ et de l'insolation . . . 202
6.10 Comparaison modèle-données du $\delta^{18}O_{calcite}$ . . . 204
6.11 Détail des différentes influences au signal de $\delta^{18}O_{atm}$ . . . 206

# Liste des tableaux


1.1 Valeurs des différents paramètres physiologiques associés à chaque PFT . . . . 45

1.2 Tableau des fractions et de l'enrichissement isotopique associés aux différents processus de respiration . . . . . 46

3.1 Tableau récapitulatif des mesures de $\delta^{18}O_{atm}$ et de $\delta O_2/N_2$ . . . . . 78

3.2 Décalage de la chronologie de NGRIP lors des évènements de Dansgaard-Oeschger . . . . . 87

3.3 Décalage lors des évènements de Dansgaard-Oeschger entre NGRIP et NALPS 87

4.1 Classification des 26 PFTs de CARAIB . . . . . 119

5.1 Comparaison des valeurs de productivité de la biosphère terrestre et de composition isotopique simulées entre le Dernier Maximum Glaciaire et un évènement de Heinrich . . . . . 181

6.1 Tableau de la productivité en carbone et oxygène de la biosphère terrestre et de la composition isotopique de l'eau dans les feuilles au cours du MIS5 . . . . . 196

# Annexes

## Article : A two-million-year-long hydroclimatic context for hominin evolution in southeastern Africa (Caley et al., 2018)

LETTER

https://doi.org/10.1038/s41586-018-0309-6

# A two-million-year-long hydroclimatic context for hominin evolution in southeastern Africa

Thibaut Caley[1]*, Thomas Extier[1,2], James A. Collins[3,4], Enno Schefuß[5], Lydie Dupont[5], Bruno Malaizé[1], Linda Rossignol[1], Antoine Souron[6], Erin L. McClymont[7], Francisco J. Jimenez-Espejo[8], Carmen García-Comas[9,10], Frédérique Eynaud[1], Philippe Martinez[1], Didier M. Roche[2,11], Stephan J. Jorry[12], Karine Charlier[1], Mélanie Wary[1], Pierre-Yves Gourves[1], Isabelle Billy[1] & Jacques Giraudeau[1]

**The past two million years of eastern African climate variability is currently poorly constrained, despite interest in understanding its assumed role in early human evolution[1–4]. Rare palaeoclimate records from northeastern Africa suggest progressively drier conditions[2,5] or a stable hydroclimate[6]. By contrast, records from Lake Malawi in tropical southeastern Africa reveal a trend of a progressively wetter climate over the past 1.3 million years[7,8]. The climatic forcings that controlled these past hydrological changes are also a matter of debate. Some studies suggest a dominant local insolation forcing on hydrological changes[9–11], whereas others infer a potential influence of sea surface temperature changes in the Indian Ocean[8,12,13]. Here we show that the hydroclimate in southeastern Africa (20–25° S) is controlled by interplay between low-latitude insolation forcing (precession and eccentricity) and changes in ice volume at high latitudes. Our results are based on a multiple-proxy reconstruction of hydrological changes in the Limpopo River catchment, combined with a reconstruction of sea surface temperature in the southwestern Indian Ocean for the past 2.14 million years. We find a long-term aridification in the Limpopo catchment between around 1 and 0.6 million years ago, opposite to the hydroclimatic evolution suggested by records from Lake Malawi. Our results, together with evidence of wetting at Lake Malawi, imply that the rainbelt contracted toward the Equator in response to increased ice volume at high latitudes. By reducing the extent of woodland or wetlands in terrestrial ecosystems, the observed changes in the hydroclimate of southeastern Africa—both in terms of its long-term state and marked precessional variability—could have had a role in the evolution of early hominins, particularly in the extinction of *Paranthropus robustus*.**

Subtropical southeastern Africa is a region of critical interest because it contains hominin fossils that enable a comparison between continental indicators of hominin evolution and nearby marine records of past climate changes. Different modes of climate change have previously been proposed as major factors that influenced hominin speciation, adaptation or extinction. Some authors stress the effect of long-term trends towards aridity on hominin evolution[1,2] whereas others suggest a crucial role of short periods of extreme climatic variability in driving hominin evolution[3,4].

*P. robustus* fossils have been found only in southeastern Africa and exclusively in the Limpopo River catchment, at the sites of Cooper's Cave D, Drimolen, Swartkrans, Sterkfontein, Kromdraai B and Gondolin, (Fig. 1) which date from at least about 2 million years ago (Ma) to 0.9 Ma (Extended Data Table 1). It is currently unclear whether climate stress could have had a role in the extinction of this species.

To investigate the hydroclimatic context of the environment in which *P. robustus* lived, we reconstructed changes in the Quaternary hydrological cycle in subtropical southeastern Africa (20–25° S) to determine the drivers of variability and to identify the long-term climate evolution of this region. We used marine sediment core MD96-2048 (26° 10′ 482″ S, 34° 01′ 148″ E, 660-m water depth) from offshore of the Limpopo River mouth (Fig. 1). The chronology of MD96-2048 is established by tuning the $\delta^{18}O$ benthic foraminifera signal to the reference LR04 stack (Fig. 2, Methods), which confirms that the core covers the past 2.14 million years (Myr). We present a multiple-proxy record of hydrological changes in the Limpopo catchment together with a sea surface temperature (SST) record of the southwestern Indian Ocean (Fig. 2).

Modern precipitation in the Limpopo catchment is dominated by austral summer rainfall associated with the extension of the Intertropical Convergence Zone (ITCZ) southwards to 15–20° S (Fig. 1). Changes in the hydrological cycle in the catchment are imprinted on discharge from the Limpopo River. We observe large changes in sedimentary elemental ratios of terrestrial iron to marine calcium, which indicate changes in terrestrial discharge by the Limpopo River at orbital and longer timescales (Fig. 2, Extended Data Fig. 1). Maxima in ln(Fe/Ca) ratios are associated with a more-depleted stable hydrogen isotope composition of plant waxes ($\delta D_{wax}$) (Fig. 2), which reflects the isotopic composition of precipitation and is indicative of a higher amount of regional rainfall[10,12,14] (Extended Data Fig. 2, Methods). Maxima in ln(Fe/Ca) ratios are also associated with maxima in concentrations of branched glycerol dialkyl glycerol tetraethers (brGDGT), which are commonly found in soils and attributed to Limpopo River runoff[15], and more enriched plant-wax $\delta^{13}C$. A previous study of the past 0.8 Myr of core MD96-2048 interpreted shifts towards more-depleted $\delta^{13}C_{wax}$ as potentially reflecting more-humid conditions[16]. However, $\delta^{13}C_{wax}$ is a proxy for the contribution of waxes from $C_3$ versus $C_4$ plants to the sediments, which can be influenced by many other factors than aridity and humidity. We attribute the enriched plant $\delta^{13}C_{wax}$ at times of depleted $\delta D_{wax}$ values, and increased ln(Fe/Ca) and concentrations of brGDGT, to stronger transport of $C_4$ plant material from the upper Limpopo catchment, in addition to the extension of riverine swamps and floodplains that contain abundant $C_4$ sedges (Fig. 2, Extended Data Figs. 3, 4).

The ln(Fe/Ca) ratio has the highest temporal resolution—300 years on average—of the proxies that we used. Statistical analyses indicate significant 19- and 23-thousand-year (kyr) cycles (precession) and 100-kyr and 400-kyr cycles (eccentricity) but no significant 41-kyr cycle (obliquity) (Extended Data Fig. 5). The dominance of eccentricity and

[1]EPOC, UMR 5805, CNRS, University of Bordeaux, Pessac, France. [2]Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, LSCE/IPSL, CEA-CNRS-UVSQ, Université Paris-Saclay, Gif-sur-Yvette, France. [3]GFZ – German Research Center for Geosciences, Section 5.1 Geomorphology, Organic Surface Geochemistry Laboratory, Potsdam, Germany. [4]Alfred Wegener Institute Helmholtz Centre for Polar and Marine Research, Bremerhaven, Germany. [5]MARUM – Center for Marine Environmental Sciences, University of Bremen, Bremen, Germany. [6]PACEA, UMR 5199, CNRS, University of Bordeaux, Pessac, France. [7]Department of Geography, Durham University, Durham, UK. [8]Department of Biogeochemistry (JAMSTEC), Yokosuka, Japan. [9]Research and Development Center for Global Change, (JAMSTEC), Yokohama, Japan. [10]Ecology Group, University of Vic – Central University of Catalonia, Barcelona, Spain. [11]Vrije Universiteit Amsterdam, Faculty of Science, Cluster Earth and Climate, Amsterdam, The Netherlands. [12]Unité Géosciences Marines, Institut Français de Recherche pour l'Exploitation de la Mer (IFREMER), Plouzané, France.
*e-mail: thibaut.caley@u-bordeaux.fr



© 2018 Macmillan Publishers Limited, part of Springer Nature. All rights reserved.

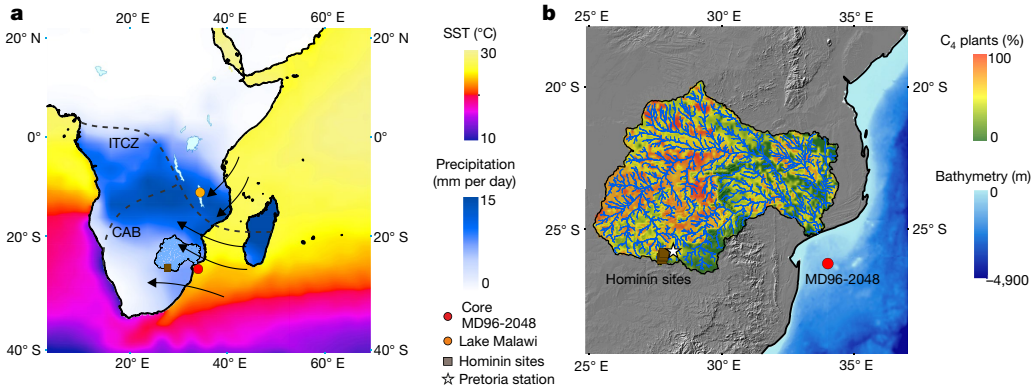



**Fig. 1 | Modern climatology over southern Africa and vegetation types in the Limpopo catchment. a**, Averaged precipitation rates for January[28] and annual SST over the Indian Ocean[29]. Black arrows represent the atmospheric circulation over southern Africa during austral summer. The ITCZ and the Congo air boundary (CAB) are indicated. **b**, Modelled relative $C_4$ plant abundance in the Limpopo catchment[30] with indications of topography (from SRTM, Shuttle Radar Topography Mission; https://www2.jpl.nasa.gov/srtm/) and bathymetry (from GEBCO, General Bathymetric Chart of the Oceans; https://www.gebco.net). Location of core MD96-2048, the Lake Malawi records, the main sites of hominin finds for *P. robustus* (sites of Cooper's Cave D, Drimolen, Swartkrans, Sterkfontein, Kromdraai B and Gondolin) and *A. sediba* (Malapa) (Extended Data Table 1) and the Pretoria Global Network of Isotopes in Precipitation station are indicated.

precession cycles indicates a strong influence of low-latitude insolation on hydrological changes in the Limpopo catchment. Rainfall and precession maxima are in phase (that is, maxima of local insolation in the Southern Hemisphere) (Extended Data Figs. 3, 5).

Modern-day rainfall in the subtropical Limpopo region depends mainly on easterly waves and low-pressure cells that largely control summer rainfall (November to March, 72% of the rainfall in Pretoria; Extended Data Fig. 2), and on tropical–extratropical cloud bands and associated thunderstorms[17]. Convective rains are usually associated with the ITCZ and warm, humid easterly winds[17]. Numerical model experiments suggest southern summer insolation forcing exerts a strong and positive effect on monsoon rainfall[11,18]. During precession maxima, higher levels of Southern Hemisphere summer insolation cause higher temperatures and lower surface pressure over the Southern Hemisphere, in particular over land[11]. The contrast between land and ocean temperatures results in stronger easterly moisture inflow into southeastern Africa. Increased rainfall results from increased convection over, and increased humidity transport into, southeastern Africa[11]. Because eccentricity modulates precession amplitudes, the increased summer insolation associated with eccentricity increases the variability in rainfall and fluvial discharge in the Limpopo catchment (Fig. 3).

In addition to this, it is thought that SST anomalies in the Indian Ocean have an influence on summer rainfall in the region[19]. To explore the potential relationship between hydrological cycle changes and oceanic conditions, we reconstructed SSTs for the southwestern Indian Ocean using two different methods (Extended Data Fig. 6, Methods). There is a significant correlation between SST and orbital parameters at the 100-kyr cycle (glacial–interglacial periodicity) and the 41-kyr cycle (obliquity) (Extended Data Fig. 5). The results confirm a previous study that revealed the absence of significant precessional variability in the SST record over the past 0.8 Myr[15]. This suggests that orbital-scale precipitation changes in southeastern Africa are more closely related to the contrast between land and ocean temperatures than to SST changes.

Superimposed on the orbital-scale changes, our record displays a long-term trend towards more arid conditions in southeastern Africa between about 1 and 0.6 Ma (Figs. 2, 3b, c). This period corresponds to the mid-Pleistocene transition (MPT), which is marked by ice-sheet expansion and global SST decrease[20] (Fig. 2). In terms of hydrological changes, the record from Lake Malawi that covers the past 1.3 Myr has previously been interpreted[7,8] to show changes that are opposite to those that we observe for the Limpopo catchment. At Lake Malawi, the climate changed from a predominantly arid environment between 1.3 and about 1 Ma to generally wetter conditions after about 1 Ma[7,8]. This opposing pattern in hydrological changes between the Limpopo catchment and Lake Malawi suggests a gradual contraction of tropical rainfall from the Limpopo catchment towards lower latitudes in response to the ice sheet expansion during the MPT. This rainfall shift could be related to increased Antarctic ice volume during the MPT[21,22].

The long-term trend towards wetter conditions at Lake Malawi has been explained by a progressively less-positive Indian Ocean Dipole since approximately 1 Ma. The Indian Ocean Dipole can enhance or reduce the precessional variability in the low-latitude hydroclimate by modifying the Walker circulation over the Indian Ocean, with a diverse response in eastern Africa[23]. A progressively less-positive Indian Ocean Dipole would have generated wetter conditions in southern Africa and increased the precession signal. Although the precessional signal increased over time in the Limpopo record, the observed progressive increase in aridity is contrary to what would be expected from Indian Ocean Dipole forcing alone (Fig. 3).

On the basis of our new records and comparisons with published records for Lake Malawi, we propose that low-latitude insolation forcing (precession and eccentricity) and changes in ice volume at high latitudes were the main drivers of the southeastern African hydroclimate over the past 2 Myr and that SST forcing had a secondary role. Our results also highlight a large regional variability in the southeastern African hydroclimate.

Changes in the hydrological cycle in southeastern Africa were probably one of multiple factors that influenced the dispersal and evolution of human relatives[2,4]. The more-humid conditions observed between about 2 Ma and 1.75 Ma, associated with a maximum in eccentricity forcing, correspond to several occurrences of *P. robustus* (Fig. 3, Extended Data Table 1). *P. robustus* is a species that was tolerant of environmental variability (eurytopic), but multiple lines of evidence suggest that from its earliest to its last occurrence this species preferred the wooded or humid components—dominated by $C_3$ plants—of environments that were otherwise dominated by $C_4$, dry-adapted plants. This preference for habitats dominated by $C_3$ plants is well-corroborated by the data from palaeoecological studies of other contemporaneous animals that indicate that large quantities of $C_4$ vegetation were available, but that a more-wooded component and water sources were also present[24] (Fig. 3f, Extended Data Table 2, Methods). This more-humid period between about 2 Ma and 1.75 Ma is also characterized by the presence of *Australopithecus sediba* in the Limpopo catchment (so far known only from the Malapa site)[25]. Multiple lines of evidence suggest *A. sediba* also lived in a wooded or humid habitat and had a diet dominated by $C_3$ plants, within an otherwise rather-open environment dominated by $C_4$ plants[25].

Our data raise the possibility that increasing long-term aridity associated with multi-millennial-scale changes after 1 Ma, driven by the



© 2018 Macmillan Publishers Limited, part of Springer Nature. All rights reserved.

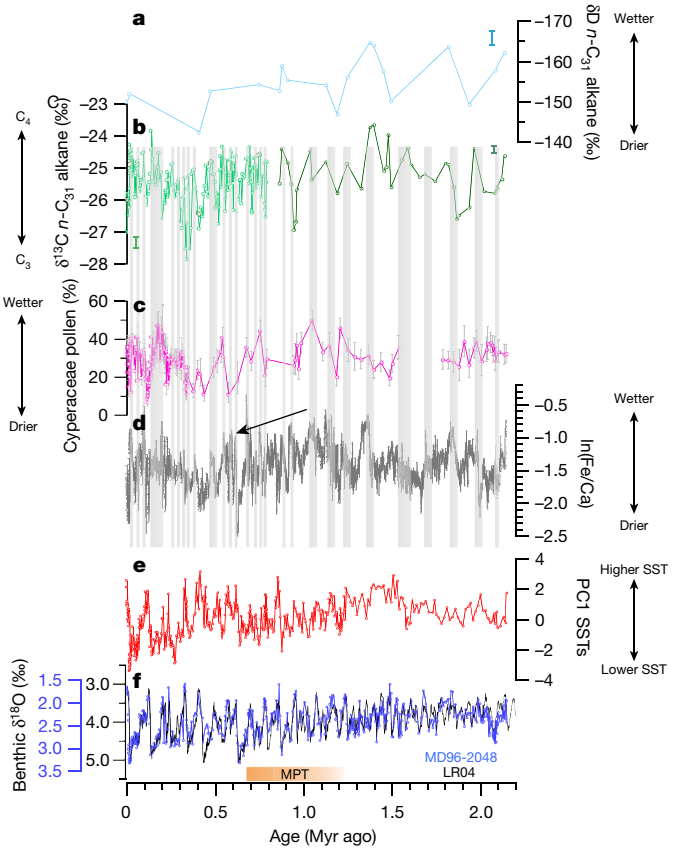



**Fig. 2 | Hydrological changes in the Limpopo catchment compared to SSTs of the southwestern Indian Ocean over the past 2.14 Myr.** **a**, δD of the *n*-$C_{31}$ alkane of plant waxes. Mean analytical uncertainty of 3‰ is indicated ($n = 8$). **b**, $\delta^{13}C$ of the *n*-$C_{31}$ alkane of plant waxes. Data from a previous study[16] are shown in light green, and data from this study are shown in dark green. Mean analytical uncertainties of 0.2‰ ($n = 15$) and average reproducibility of 0.4‰[16] are indicated. **c**, Pollen percentages of Cyperaceae (data from the past 342 kyr from a previous study[13]). Error bars represent 95% confidence intervals. **d**, ln(Fe/Ca) X-ray fluorescence (XRF) ratios. Arrow indicates the long-term trend discussed in the text. Grey frames represent events of hydrological cycle intensification. **e**, Principal component of the SST records (Methods). **f**, $\delta^{18}O$ of benthic foraminifera compared to the reference LR04 curve (data from the past 790 kyr from a previously study[15]) (Methods). The MPT is indicated.

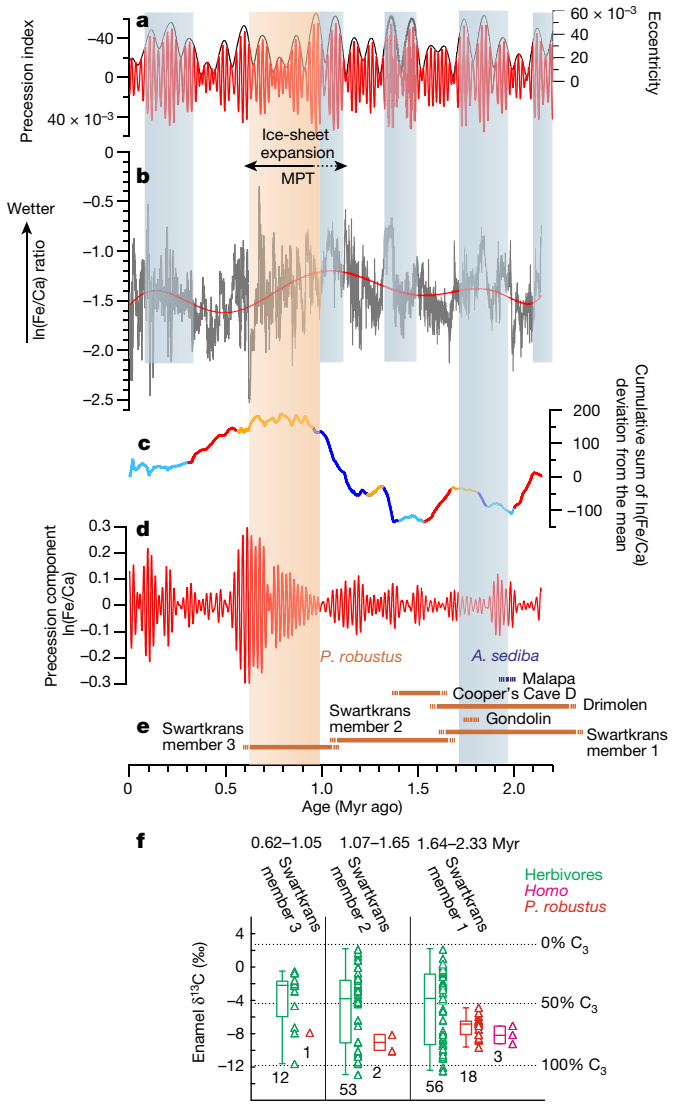



**Fig. 3 | Forcings on the hydrological cycle changes in the Limpopo catchment and relationship with hominin evolution over the past 2.14 Myr.** **a**, Eccentricity and precession index[31]. **b**, ln(Fe/Ca) XRF ratios as a proxy for hydrological changes in the Limpopo catchment. Red curve denotes a polynomial fit (9th degree). The MPT and associated ice-sheet expansion is indicated (orange shading)[20,21]. Grey shading indicates wetter conditions in the Limpopo catchment, associated with higher eccentricity. **c**, Cumulative sum of ln(Fe/Ca) showing deviation from the mean as indicator of hydrological variability in the Limpopo catchment (Methods) (red curves correspond to dry periods, yellow curves to drying periods, dark blue curves to wet periods and light blue curves to humidification periods). **d**, Precession component of the ln(Fe/Ca) ratios obtained by Gaussian filtering. **e**, Estimated ages for the main sites that yielded remains of the hominins *P. robustus* (Cooper's Cave D, Drimolen, Swartkrans and Gondolin) and *A. sediba* (Malapa) (Extended Data Table 1). **f**, Enamel $\delta^{13}C$ (‰ Vienna Pee Dee Belemnite) of hominins and contemporaneous herbivores at Swartkrans (Extended Data Table 2). Triangles indicate raw data points. The box plots correspond to the median (horizontal line), the interquartile range (box) and the full range of data (vertical whiskers). Sample sizes are indicated by numbers below the plots. Dashed lines highlight the thresholds used to estimate the percentage of $C_3$ plants-derived foods in the diets.

MPT (Fig. 3b–d), could have diminished the wooded and/or humid component of the habitat preferred by *P. robustus*. This is consistant with a trend towards more open and drier landscapes at Swartkrans (Fig. 3f, Extended Data Table 2, Methods).

It has previously been proposed that extinctions of large mammals are caused mainly by abiotic environmental changes[26]. We propose as a speculative, but plausible, scenario that the geographic ranges of species that preferred wooded and humid habitats—including *P. robustus*—would have contracted and expanded according to precessional (approximately 21-kyr) dry and wet cycles. During the multi-millennial dry periods, population ranges of these species would have contracted and often become fragmented. These isolated populations would have been especially prone to local extinction through lack of sufficient suitable food, water and shelter, and related increased competition and predation. During multi-millennial wet periods associated with precessional maxima, preferred woodland and humid habitats would have expanded again. The surviving populations would have expanded into their previously occupied range, replacing locally extinct populations. The long-term trend toward increased aridity implies that the dry periods became more and more pronounced between 1 and 0.6 Ma (Fig. 3b, d), increasing the likelihood for more numerous extinctions of local populations until the last-remaining population—therefore the species—went extinct[27]. Given that the $C_3$ component of the vegetation preferred by *P. robustus* was never dominant in the landscape, even during humid periods, populations of this species would have been especially prone to local extinction during dry periods.



© 2018 Macmillan Publishers Limited, part of Springer Nature. All rights reserved.

Both the long-term state of aridification and the extreme precessional variability in hydroclimate (Fig. 3) could therefore have contributed to the extinction of *P. robustus*.

## Online content

Any Methods, including any statements of data availability and Nature Research reporting summaries, along with any additional references and Source Data files, are available in the online version of the paper at https://doi.org/10.1038/s41586-018-0309-6.

Received: 20 November 2017; Accepted: 25 April 2018;
Published online: 09 July 2018

1. Vrba, E. S. Environment and evolution: alternative causes of the temporal distribution of evolutionary events. *S. Afr. J. Sci.* **81**, 229–236 (1985).
2. deMenocal, P. B. Plio-Pleistocene African climate. *Science* **270**, 53–59 (1995).
3. Potts, R. Environmental hypotheses of hominin evolution. *Yearb. Phys. Anthropol.* **41**, 93–136 (1998).
4. Maslin, M. A. & Trauth, M. H. in *The First Humans: Origin and Early Evolution of the Genus Homo* (eds Grine, F. E. et al.) 151–158 (Springer, New York, 2009).
5. Cerling, T. E. et al. Woody cover and hominin environments in the past 6 million years. *Nature* **476**, 51–56 (2011).
6. Blumenthal, S. A. et al. Aridity and hominin environments. *Proc. Natl Acad. Sci. USA* **114**, 7331–7336 (2017).
7. Lyons, R. P. et al. Continuous 1.3-million-year record of East African hydroclimate, and implications for patterns of evolution and biodiversity. *Proc. Natl Acad. Sci. USA* **112**, 15568–15573 (2015).
8. Johnson, T. C. et al. A progressively wetter climate in southern East Africa over the past 1.3 million years. *Nature* **537**, 220–224 (2016).
9. Partridge, T. C., Demenocal, P. B., Lorentz, S. A., Paiker, M. J. & Vogel, J. C. Orbital forcing of climate over South Africa: a 200,000-year rainfall record from the Pretoria saltpan. *Quat. Sci. Rev.* **16**, 1125–1133 (1997).
10. Schefuß, E., Kuhlmann, H., Mollenhauer, G., Prange, M. & Pätzold, J. Forcing of wet phases in southeast Africa over the past 17,000 years. *Nature* **480**, 509–512 (2011).
11. Simon, M. H. et al. Eastern South African hydroclimate over the past 270,000 years. *Sci. Rep.* **5**, 18153 (2015).
12. Tierney, J. E. et al. Northern Hemisphere controls on tropical southeast African climate during the past 60,000 years. *Science* **322**, 252–255 (2008).
13. Dupont, L. M. et al. Glacial–interglacial vegetation dynamics in South Eastern Africa coupled to sea surface temperature variations in the Western Indian Ocean. *Clim. Past* **7**, 1209–1224 (2011).
14. Schefuß, E., Schouten, S. & Schneider, R. R. Climatic controls on central African hydrology during the past 20,000 years. *Nature* **437**, 1003–1006 (2005).
15. Caley, T. et al. High-latitude obliquity as a dominant forcing in the Agulhas current system. *Clim. Past* **7**, 1285–1296 (2011).
16. Castañeda, I. S. et al. Middle to Late Pleistocene vegetation and climate change in subtropical southern East Africa. *Earth Planet. Sci. Lett.* **450**, 306–316 (2016).
17. Tyson, P. D. & Preston-Whyte, R. A. *The Weather and Climate of Southern Africa* (Oxford Univ. Press, Oxford, 2000).
18. Kutzbach, J. E., Liu, X., Liu, Z. & Chen, G. Simulation of the evolutionary response of global summer monsoons to orbital forcing over the past 280,000 years. *Clim. Dyn.* **30**, 567–579 (2008).
19. Reason, C. J. C. Subtropical Indian Ocean SST dipole events and southern African rainfall. *Geophys. Res. Lett.* **28**, 2225–2227 (2001).
20. McClymont, E. L., Sosdian, S. M., Rosell-Melé, A. & Rosenthal, Y. Pleistocene sea-surface temperature evolution: early cooling, delayed glacial intensification, and implications for the mid-Pleistocene climate transition. *Earth Sci. Rev.* **123**, 173–193 (2013).
21. Elderfield, H. et al. Evolution of ocean temperature and ice volume through the mid-Pleistocene climate transition. *Science* **337**, 704–709 (2012).
22. Pollard, D. & DeConto, R. M. Modelling West Antarctic ice sheet growth and collapse through the past five million years. *Nature* **458**, 329–332 (2009).
23. Tierney, J. E., Smerdon, J. E., Anchukaitis, K. J. & Seager, R. Multidecadal variability in East African hydroclimate controlled by the Indian Ocean. *Nature* **493**, 389–392 (2013).
24. Balter, V., Braga, J., Télouk, P. & Thackeray, J. F. Evidence for dietary change but not landscape use in South African early hominins. *Nature* **489**, 558–560 (2012).
25. Henry, A. G. et al. The diet of *Australopithecus sediba*. *Nature* **487**, 90–93 (2012).
26. Žliobaitė, I., Fortelius, M. & Stenseth, N. C. Reconciling taxon senescence with the Red Queen's hypothesis. *Nature* **552**, 92–95 (2017).
27. Foley, R. in *African Biogeography, Climate Change, and Human Evolution* (eds Bromage, T. G. & Schrenk, F.) 328–348 (Oxford Univ. Press, Oxford, 1999).
28. Xie, P. & Arkin, P. A. Global precipitation: a 17-year monthly analysis based on gauge observations, satellite estimates and numerical model outputs. *Bull. Am. Meteorol. Soc.* **78**, 2539–2558 (1997).
29. Locarnini, R. A. et al. *World Ocean Atlas 2009. Volume 1: Temperature* (NOAA Atlas NESDIS 68, U.S. Government Printing Office, Washington, D.C., 2010).
30. Still, C. J. & Powell, R. L. in *Isoscapes: Understanding Movement, Pattern, and Process on Earth through Isotope Mapping* (eds West, J. B. et al.) 179–194 (Springer, Dordrecht, 2010).
31. Laskar, J. et al. A long-term numerical solution for the insolation quantities of the Earth. *Astron. Astrophys.* **428**, 261–285 (2004).

**Acknowledgements** T.C. is supported by CNRS-INSU. Funding from LEFE-IMAGO CNRS INSU project SeaSalt is acknowledged. T.C. was partly supported by the 'Laboratoire d'Excellence' LabexMER (ANR-10-LABX-19) and co-funded by a grant from the French government under the program 'Investissements d'Avenir', and by a grant from the Regional Council of Brittany (SAD programme). J.A.C. acknowledges funding from the ERC project 'STEEPClim'. E.S. and L.D. acknowledge funding through the DFG Research Center/Cluster of Excellence 'The Ocean in the Earth System' at MARUM – Center for Environmental Sciences. A.S. acknowledges funding through the LaScArBx, a programme supported by the Agence Nationale de la Recherche (ANR-10-LABX-52). C.G.-C. was supported by CREST (grant number JPMJCR12A3; P.I. SLS) funded by the Japan Science and Technology (JST). Core MD96-2048 was collected during the MOZAPHARE cruise of the RV Marion Dufresne, supported by the French agencies Ministère de l'Education Nationale de la Recherche et de la Technologie, Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS) and Institut Paul Emile Victor (IPEV).

**Reviewer information** *Nature* thanks C. O'Brien, M. Petraglia, K. Uno and the other anonymous reviewer(s) for their contribution to the peer review of this work.

**Author contributions** T.C. designed the study. T.C., T.E., M.W. and P.-Y.G. performed the Mg/Ca measurements. L.R. analysed the foraminifera assemblages, and T.C. and F.E. analysed the results and performed the transfer function. T.C., T.E., B.M. and K.C. performed the $\delta^{18}O$ analyses on foraminifera. T.C., J.G., P.M. and I.B. performed the XRF measurements and F.J.J.-E. and C.G.-C. conducted the statistical analyses on XRF. J.A.C. and E.S. performed plant-wax $\delta D$ and $\delta^{13}C$ analyses. L.D. performed the pollen analysis. A.S. and T.C. produced the synthesis on the ecology and environments of South African hominins and conducted the comparisons to the marine record. T.C. and D.M.R. performed and analysed the iLOVECLIM model results. T.C. analysed the results and all authors participated in the interpretation. T.C. wrote the manuscript with contributions from all authors.

**Competing interests** The authors declare no competing interests.

**Additional information**
**Extended data** is available for this paper at https://doi.org/10.1038/s41586-018-0309-6.
**Reprints and permissions information** is available at http://www.nature.com/reprints.
**Correspondence and requests for materials** should be addressed to T.C.
**Publisher's note:** Springer Nature remains neutral with regard to jurisdictional claims in published maps and institutional affiliations.



© 2018 Macmillan Publishers Limited, part of Springer Nature. All rights reserved.

## METHODS

**XRF measurements.** Element intensities were measured using a XRF-Avaatech core scanner at EPOC. Before analysis, the sediment surface was flattened and covered with Ultralene film. The core sections were scanned at a 0.5-cm resolution at two different levels of energy (10 and 30 keV).

To easily identify periods in XRF ln(Fe/Ca) record, we computed the cumulative sum (cusum) of the deviations from the mean: cusum = sum(ln(Fe/Ca) − (mean(ln(Fe/Ca)). The cumulative sum method was developed for industrial control to detect changes in sequential production[32]. More recently, the cumulative sum has been extensively applied in biological oceanography (for example, ref.33) following ref.34. We first confirmed the regularity of our time series—no periods with greater sampling effort; the average sampling effort was 283 years with only 8% of scattered time gaps greater than 500 years—and ensured that our periodicity matched that of regularized time series at 500-year and 1,000-year windows. The cumulative sum shows periods (that is, linear sequences) and their value with respect to the long-term average: a positive slope shows a period of values greater than the long-term average, and a negative slope shows a period of values smaller than the long-term average. The steepness of the slope reflects how different a period is from the long-term average. Furthermore, changes in the tendency (that is, sequential periodical changes in the slope) reflect periodical changes from a set of conditions to another (for example, a change from a positive slope to a flat slope in the XRF ln(Fe/Ca) record reflects a change from a humid period to a drier period). In the case of the 1 –0.6-Ma interval, this corresponds to a period of aridification because it is more arid than the previous period between 1.2 Ma and 1 Ma (that is, there is a change of slope from steeply positive to slightly negative). In addition, the period between 1 Ma and 0.6 Ma is very variable, because the slope is noisy rather than straight. The cumulative sum can be found under the function name local.trend, in the R package Pastecs (package of analysis of space-time ecological series).

**Plant-wax δD and $\delta^{13}C$.** Plant-wax analyses were carried out at MARUM. Samples were oven dried at 40 °C, homogenized and squalane was added as an internal standard before extraction. Lipids were extracted with a DIONEX accelerated colvent extractor using a 9:1 mixture of dichloromethane to methanol at 100 °C and 1,000 p.s.i. for five minutes, repeated three times. The saturated hydrocarbon fraction was obtained by elution of the dried lipid extract over a silica column with hexane and subsequent elution over $AgNO_3$-coated silica to remove unsaturated hydrocarbons.

Compound-specific stable carbon isotope ($\delta^{13}C$) analyses were carried out using a Thermo Fisher Scientific Trace GC Ultra coupled to a Finnigan MAT 252 isotope-ratio-monitoring mass spectrometer via a combustion interface operated at 1,000 °C. Isotope values were calibrated against external $CO_2$ reference gas and are reported as parts per thousand (‰) against the Vienna Pee Dee Belemnite (V-PDB) standard. Samples were run in at least duplicate. The internal standards yielded a precision of $\leq$ 0.3‰. Repeated analysis of an external *n*-alkane standard between samples yielded a root-mean-squared accuracy of 0.1‰ and a standard deviation of on average 0.2‰.

When possible, given the high amount of lipids necessary, compound-specific stable hydrogen isotope (δD) compositions were measured using a Thermo Fisher Scientific Trace GC coupled via a pyrolysis reactor operated at 1,420 °C to a Thermo Fisher MAT 253 isotope-ratio mass spectrometer. δD values were calibrated against external $H_2$ reference gas, the 3H+ factor was monitored daily (values vary between 6.7 and 6.9); δD values are reported in parts per thousand (‰) versus the Vienna Standard of Mean Ocean Water (VSMOW) standard. The internal standards yielded a precision of 2‰ on average. Repeated analysis of an external *n*-alkane standard between samples yielded a root-mean-squared accuracy of <1‰ and a standard deviation of on average 3‰.

The results of a method to adjust the $\delta D_{wax}$ record for vegetation and ice-volume changes are given in Extended Data Fig. 4.

**Pollen preparation.** Samples of 1.5 to 8.5 ml were prepared at MARUM. The volume was measured using water displacement. Samples were decalcified with diluted HCl (~12%) and treated with HF (~40%) to remove silicates. Samples were sieved over a screen to remove particles smaller than 10–12 μm. When necessary the sample was decanted to remove remaining silt. Samples were stored in water, mounted in glycerol and microscopically examined (magnification 400× and 1,000×) for pollen and spores. Cyperaceae (sedges) pollen percentages were calculated based on the total number of pollen and spores, ranging from 53 to 365, and 95% confidence intervals were calculated according to a previously published method[35].

**$\delta^{18}O$ analyses on foraminifera.** Specimens of benthic *Planulina wuellerstorfi* foraminifera were picked from the 250–315-μm size fraction. Analyses were carried out by a coupled system Multiprep–Optima of Micromass at EPOC. The automated preparation system (Multiprep) transforms carbonate samples into $CO_2$ gas by treatment with orthophosphoric acid at a constant temperature of 75 °C. The $CO_2$ gas samples were then analysed by isotope mass spectrometry (Optima) in comparison with a calibrated reference gas to determine the isotopic ratio $^{18}O/^{16}O$ of the sample. For all stable oxygen isotope measurements a working standard (Burgbrohl $CO_2$ gas) was used, which was calibrated against the Vienna Pee Dee Belemnite (V-PDB) standard by using the NBS 19 standard. Analytical standard deviation is about 0.05‰ ($\pm 1\sigma$).

The chronology of the core was established by tuning the $\delta^{18}O$ benthic foraminifera signal to the reference LR04 stack[36] with the AnalySeries software[37] and yielded a correlation coefficient of $R = 0.8$ for the past 2.14 Myr. The core is about 36 m long and the sedimentation rate has a mean value of 2 cm per kyr ($\sigma = 0.91$) and is relatively constant.

**SSTs reconstruction.** *Globigerinoides ruber sensu stricto* were picked within the 250–315-μm size fraction for trace element analyses. Shells were cleaned at EPOC to eliminate contamination by clays and organic matter based on a previously published procedure[38]. An Agilent inductively coupled plasma optical emission spectrometer (ICP-OES) was used for magnesium and calcium analyses following a previously established procedure[39]. Reproducibility obtained from *G. ruber s. s.* on 80 samples from the complete core was better than 6% ($\pm 1\sigma$, pooled standard deviation). All new analyses for this study ($n = 217$) were performed at EPOC. Measured Mg/Ca ratios were converted into temperature values applying a previously established equation[40], yielding a precision of 1.2 °C.

Total assemblages of planktonic foraminifera were analysed at EPOC using an Olympus SZH10 binocular microscope following previously published taxonomy[41,42]. About 300 specimens were counted in each level after splitting with an Otto microsplitter. Relative abundances of species were used to perform quantification of SST after an ecological transfer function[43] developed at EPOC. The method used here is based on the modern analogue techniques[44] running under the R software, using the ReconstMAT script developed by J. Guiot (BIOINDIC package, https://www.eccorev.fr/spip.php?article389). The modern database used is composed of 367 core tops and derived from core tops covering the southern Indian Ocean[45] in the MARGO project. Calculations of past hydrological parameters rely on a weighted average of SST values from the best five modern analogues, with a maximum weight given to the closest analogue in terms of statistical distance (that is, dissimilarity minimum)[43,46]. This method permits the reconstruction of annual SST with a precision of 0.8 °C (Extended Data Fig. 7).

As each proxy has some uncertainty related to the calibration, non-temperature influences and lateral advection[15], we applied empirical orthogonal function analysis[47] to the two SST records for the past 2.14 Myr (Extended Data Fig. 6). The first principal component (PC1) explains 74% of the total variance for the Mg/Ca and foraminifera transfer function records over the past 2.14 Myr. The correlation between SST proxies and PC1 over the past 2.14 Myr is $R = 0.71$.

**Climate modelling.** To investigate the control on the past δD composition of precipitation in the Limpopo catchment, we analysed the results of a transient run with the intermediate complexity isotope-enabled climate model iLOVECLIM[48–50] over the past 150 kyr[51]. The atmospheric part of the coupled climate model was run at T21 spatial resolution[51] (~5.65° latitude and longitude) and used accelerated forcing (irradiance, greenhouse gases and ice sheets were updated with an acceleration factor 10). Intermediate complexity models experience some weaknesses caused by the spatial resolution and simplified convective physics but have the advantage of efficient computation. iLOVECLIM was previously successfully applied in the Asian monsoon region[51] and in the West African monsoon region[52] to investigate past monsoonal precipitation changes and their links with changes in the isotopic composition of precipitation. For the current study, analysis of the present-day performance of the iLOVECLIM model for the region, together with results over the past 150 kyr, are shown in Extended Data Fig. 2.

**Ecology and environment of the hominins *P. robustus* and *A. sediba* in the Limpopo catchment.** Building on previous research[53,54], we produce a short synthesis of multiple lines of evidence to reconstruct the ecology and environmental context of the southern African robust australopith *P. robustus*. We also briefly discuss *A. sediba*. Much literature has been devoted to the ecology of the robust australopiths, and particularly to the ecological differences between *P. robustus* and *P. boisei*, another species that is found in eastern Africa. Given that our geographic scope is centred on South Africa, we here focus mostly on *P. robustus*. It remains a matter of debate whether the robust australopiths—*P. robustus, P. boisei* and *P. aethiopicus* (the probable ancestor of *P. boisei*, also found in eastern Africa)—are closely related to each other in a monophyletic genus or whether robust adaptive traits evolved independently by convergence or parallelism in eastern Africa and southern Africa, which would make the *Paranthropus* genus diphyletic[54,55]. Authors who support the diphyletic hypothesis tend to classify the robust australopiths in the genus *Australopithecus*. Until the issue is settled, here we use the genus name *Paranthropus* as a convenient taxonomic label of a grade that groups these three taxa, which share similar robust adaptive features that differ from the more-gracile genera *Australopithecus* and *Homo*.

**Craniomandibular and dental morphology.** Species of *Paranthropus* are characterized by a suite of craniomandibular and dental morphological characters: reduced incisors and canines, molarized premolars, enlarged molars, thick

© 2018 Macmillan Publishers Limited, part of Springer Nature. All rights reserved.

enamel, enlarged insertion areas for temporal muscles and a robust mandibular corpus[56]. This suite of robust morphological traits has been frequently interpreted as potential adaptations to diets including hard foods[57,58]. This interpretation is partly supported in *P. robustus* by dental microwear data that indicate occasional consumption of hard objects (see below). Other authors have suggested that these characters reflect the ability of *Paranthropus* to chew tough plant matter for prolonged periods[59,60]. This alternative interpretation is supported by dental microwear and stable carbon isotopic data in *P. boisei*[61,62]. This interpretation could apply to *P. robustus* as well, even though this species probably fed on different kinds of plants to those eaten by *P. boisei* ($C_4$ herbaceous plants in *P. boisei* versus various $C_3$ and $C_4$ plants in *P. robustus*, see below).

Potential modern analogues of herbivorous mammals that evolved from omnivorous ancestors that have thick enamel and bunodont molars include the giant panda *Ailuropoda melanoleuca* and the red panda *Ailurus fulgens*, both of which have independently become highly specialized on a diet of tough bamboo leaves that require prolonged chewing and numerous repeated chewing cycles[63,64]. Both examples illustrate phylogenetic inertia, with evolution acting on preexistent morphologies that limit the range of possible adaptive traits in response to functional selective pressure and result in seemingly suboptimal morphologies for the realized diet. A similar argument has been made for *Paranthropus*[53,65]. Therefore, contrary to herbivorous ungulates that evolved long shearing crests and a more lateral mastication to reduce plant matter into small digestible fragments, the giant panda, the red panda and *Paranthropus* evolved alternative solutions combining thick enamel and increased dental surface with prolonged use of high masticatory forces.

It has also been suggested that an increased dental occlusal surface in mammals could be an adaptive trait for feeding on small bites of small-sized food items[66] by increasing the chance of efficiently masticating the food items with a reduced number of chewing cycles, and limiting the wear induced by a strong increased attrition (tooth-to-tooth contact) in addition to the wear induced by abrasion (tooth-to-food contact). Similar adaptive traits, most notably enlarged surfaces of third molars, evolved independently multiple times in African herbivorous suids[67].

Compared to *Paranthropus*, the craniomandibular and dental morphology of *A. sediba* is more gracile and more similar to that found in older species of *Australopithecus* and younger species of *Homo*. It has recently been argued that the morphology of the cranium was unsuited for feeding on hard objects[68], but that the morphology of the mandible was suited for this activity[69].

**Postcranial morphology.** Very little is known about the postcranial morphology of *P. robustus* but most studies indicate the retention of traits adaptive for arboreal climbing[70,71]. Hand morphology suggests an ability to perform precision gripping during tool-making and tool-using activities[72]. Numerous bone tools are found in Swartkrans member 3 and Drimolen, sites that have yielded numerous specimens of *P. robustus*. Microscopic and macroscopic wear analyses as well as experimental data suggest that these tools were used for digging into termite mounds[73–75]. The scarcity of *Homo* remains compared to those of *P. robustus* in sites bearing bone tools suggests that the latter species is most likely to be the tool maker and user[73–75]. *A. sediba* is known by two partial skeletons that provide much information on its postcranial morphology. The upper limbs and shoulders of this species retained numerous adaptive traits for climbing and suspensory behaviours[76,77].

**Microstructure and biomechanics of enamel.** A study of the dental microstructure of *P. robustus* indicates that its enamel was decussated (contrary that of *P. boisei*[78]), which is assumed to reflect a capacity to withstand strong and/or prolonged biomechanic constraints during mastication. Other mammals that feed on hard objects, such as hyaenids[79], and mammals that feed on tough vegetation, such as many ungulates, also display decussated enamel[80].

In addition, an experimental study of the behaviour of enamel under various biomechanic constraints suggests that thick enamel could be an adaptive trait to deal with foods that are either hard or tough, or laden with particulates, potentially including both grit and phytoliths[81]. A recent study observed a low frequency of enamel chipping in *P. robustus*, concluding that it was adapted to eating tough vegetation rather than hard foods[82]. This interpretation is at odds with the dental microwear data that indicate at least some consumption of hard objects (see 'Dental microwear'). Alternatively, we argue that it is equally plausible that this low frequency of chipping is related to the specialized decussated microstructure that reinforces the tooth enamel of *P. robustus* at a microscopic scale, making its teeth less prone to chipping and therefore more durable when consuming hard or tough foods.

**Enamel biogeochemistry.** Numerous data are available regarding the stable carbon and oxygen isotopic compositions (expressed as $\delta^{13}C$ and $\delta^{18}O$, respectively) and the major elements (Sr, Ba and Ca) of the enamel of *P. robustus*, of other hominins and of other contemporaneous animals. The stable carbon isotope ratios enable the quantification of the proportions of food items deriving, directly or indirectly (through one or several trophic levels), from $C_3$ plants (mostly woody vegetation, but also sedges in humid environments) and $C_4$ plants (mostly grass and sedges, but also shrubs of the Amaranthaceae and Chenopodiaceae family). The $\delta^{13}C$ values of the enamel of *P. robustus* indicate a diet that was dominated by foods derived from $C_3$ plants, with a substantial proportion (about 35–40%) of foods derived from $C_4$ plants (Fig. 3f and Extended Data Table 2). Much effort has been dedicated to identifying the food items that compose this substantial $C_4$ component in the diet of *P. robustus*[83–86]. The most probable $C_4$-plant-derived food items include grass leaves and roots, insects such as grasshoppers and termites, and small vertebrates (birds, lizards, rodents and small ungulates) that consume either $C_4$ plants or invertebrates that eat $C_4$ plants. Sedges are also considered to be a likely source of $C_4$ resources, notably through the consumption of their underground storage organs (USOs)[87,88]. A previous study[84], however, has argued that $C_4$ sedges were rather scattered in South African riverine settings and that not many of them produced large palatable underground storage organs. This study therefore suggested that $C_4$ sedges represented only a minor food resource for hominins. However, they only studied the sedges from four riverine sites located in the Kruger National Park and it remains unknown whether their conclusions are valid for the whole Limpopo catchment and larger scales.

More important in our opinion is the fact that the diet of *P. robustus* was dominated by $C_3$-plant-derived food resources, which could include any parts (leaves, stems, fruits, nuts or underground storage organs) of $C_3$ plants (mostly trees, shrubs and bushes in wooded environments but also abundant sedges in humid environments). There is little data on the enamel $\delta^{13}C$ values of *A. sediba* ($n=2$) but both specimens display low values (−12.1‰ and −12.2‰) that indicate a diet dominated by $C_3$-plant-derived food resources[25].

Stable oxygen ratios of enamel are related to multiple factors, including behaviour, ecology, diet, physiology and climate[89]. A previous study[90] classified mammals into evaporation sensitive and evaporation insensitive taxa. The $\delta^{18}O$ values in evaporation sensitive taxa increase with aridity. Evaporation sensitive taxa do not drink much and get most of the water they require from the plants they consume. Conversely, $\delta^{18}O$ values of evaporation insensitive taxa track the $\delta^{18}O$ values of surface water that they drink abundantly and frequently[90,91]. Although hominins were not included in this classification scheme, they are probably water-dependent, as all large primates need to drink a lot of water every day. Hominins generally display relatively low $\delta^{18}O$ values on average compared to the rest of the fauna[62,92], suggesting a high water dependence or consumption of plants containing little evaporated water. Those data support the preference of *P. robustus* for wooded and/or humid environments.

Intra-tooth variations of $\delta^{13}C$ and $\delta^{18}O$ also provide information about intra-annual and inter-annual variation in ecology. Intra-tooth $\delta^{13}C$ and $\delta^{18}O$ profiles were measured using laser ablation on four teeth of *P. robustus* from Swartkrans member 1[83]. The mean values of the $\delta^{13}C$ profiles are similar to those of other *P. robustus* individuals sampled previously, and they also reveal substantial intra-tooth variation with ranges varying from 2‰ to 5‰ over periods representing approximately one or two years (inferred from the number of perikymata). Significant positive correlations between the $\delta^{13}C$ and $\delta^{18}O$ in three out of four specimens of *P. robustus* also indicate that they consumed relatively more $C_4$-plant-derived foods during the dry season than during the wet season[83]. This could suggest an opportunistic sampling of the environment, with a relative consumption of foods derived from $C_3$ or $C_4$ plants that depended in part on seasonal or inter-annual climatic differences. These data are also congruent with the identification of *P. robustus* as an evaporation insensitive taxon and are similar to the pattern observed in some extant evaporation insensitive herbivorous ungulates (for example, strong positive correlations of $\delta^{13}C$ and $\delta^{18}O$ profiles in an extant common hippopotamus *Hippopotamus amphibius*[93]).

Investigations of trace elements preserved in the enamel of *P. robustus* have also revealed interesting patterns[24,94]. *P. robustus* is characterized by relatively high Sr/Ca ratios, lower than in grazing ungulates and slightly higher than in carnivores, browsing ungulates and omnivorous cercopithecid monkeys. *Australopithecus africanus* is characterized by even higher Sr/Ca ratios. Both hominins, but especially *A. africanus*, display low Ba/Ca ratios. Altogether, these data indicate that the proportion of animal matter in their diets is likely to have been low. The only extant animals that combine a high Sr/Ca ratio and a low Ba/Ca ratio are the mole rat (*Cryptomys hottentotus*), and to a lesser extent, the common warthog (*Phacochoerus africanus*). Both species consume large amounts of grass roots. This could indicate that grass root consumption was an important aspect of the diet of *P. robustus*, explaining part of the $C_4$ component of the diet. However, the Sr/Ca and the Ba/Ca ratios of *A. africanus* and *P. robustus* are not as extreme as those found in the mole rat and the common warthog, suggesting that the consumption of grass roots was probably not as important as in those two species. As previously highlighted[94], one must, however, stress that the use of major element concentrations in enamel as an indication of the diet of extant and extinct animals still require further study. One previous study[24] observed Sr/Ca and Ba/Ca ratios for *P. robustus* that are intermediate between those of *A. africanus* and early *Homo*, and similar to those of browsers: these authors argue the diet of *P. robustus* was dominated by woody plants.

© 2018 Macmillan Publishers Limited, part of Springer Nature. All rights reserved.

**Dental microwear.** Investigations of dental microwear have also provided useful information for reconstructing the diet of *P. robustus*[61,95–97]. Dental microwear mostly results from a combination of abrasion (food-to-tooth contact) and attrition (tooth-to-tooth contact), both of which result in various microscopic scars left at the surface of the enamel facets. Among hominins, specimens of *P. robustus* are characterized by unique microwear textures that display strongly variable complexities, ranging from low to very high values, and low anisotropies. This pattern, originally observed on a few specimens, was later confirmed by a large-scale study of dental microwear in *P. robustus*, including numerous specimens from various sites[98]. Similarities in dental microwear textures were noted between *P. robustus* and specimens of several extant primates that are known to consume hard objects such as nuts and seeds (grey-cheeked mangabeys, *Lophocebus albigena* or brown capuchins, *Sapajus apella*), indicating at least some consumption of hard objects by *P. robustus*. Dental microwear data available for *A. sediba*—although they are based on only two specimens—also show high complexities, suggesting a potential consumption of hard objects[25].

**Stable carbon isotopes of contemporary mammals.** Compiled data of $\delta^{13}C$ values for herbivorous mammals that were contemporary and sympatric with *P. robustus* indicate habitats encompassing a mix of $C_3$ and $C_4$ plants, suggesting a mix of woodlands and grasslands in all sites that were sampled (data for Swartkrans members 1, 2, and 3[83,84,99,100]; Cooper's Cave D[101]; Gondolin[102]; Fig. 3f and Extended Data Table 2). The enamel $\delta^{13}C$ values of herbivorous mammals contemporaneous with *P. robustus* from all sites for which sufficient data are available display a bimodal distribution (Extended Data Table 2): the main mode indicates that the habitat was dominated by herbivorous mammals consuming mostly $C_4$ plants, and the secondary mode indicates that a substantial portion of the remaining herbivorous mammals consumed $C_3$ plants. Mammals displaying a strong $C_4$ signal in their enamel probably consumed herbaceous plants, including mostly dry-adapted $C_4$ grasses in open habitats and possibly $C_4$ sedges in humid habitats. They are usually classified as grazers. Conversely, mammals displaying a strong $C_3$ signal in their enamel probably fed mainly on woody plants (trees, shrubs or bushes) in woodlands, and possibly on $C_3$ sedges in humid habitats. They are usually classified as browsers. Complicating factors of palaeodietary reconstructions include the potential consumption of CAM plants (mostly succulents in arid habitats, and epiphytic plants in closed forests) and $C_4$ dicot woody vegetation (for example, shrubs of the family Amaranthaceae or Chenopodiaceae). However, the classification of mammals using the dichotomy between $C_3$ browsers and $C_4$ grazers inferred from $\delta^{13}C$ values is generally confirmed by ecomorphological and dental wear studies[101]. $\delta^{13}C$ data of *P. robustus* are intermediate between the $C_4$ pole and the $C_3$ pole, but closer to the latter, indicating a preference of this hominin for the $C_3$ wooded and/or humid component of its habitat.

The enamel $\delta^{13}C$ data of the herbivorous mammals found at the Malapa site with *A. sediba* indicate an environment dominated by $C_4$ plants, presumably grasses, and a few species consuming $C_3$ plants, presumably woody plants[25]. The pattern is therefore similar to that observed in sites containing *P. robustus*, indicating a preference of *A. sediba* for the $C_3$ component—presumably woodland—of the otherwise $C_4$-grass-dominated landscapes.

**Ecomorphology and community structures.** A previous analysis[103] quantified trophic and locomotor adaptive traits of mammals to compare the ecological diversity of modern and past faunal communities, and found evidence that *P. robustus* inhabited mosaic environments that included both woodlands and grasslands, always close to a water source. This study also detected a pattern of more-open habitats throughout the Swartkrans sequence. This observation supports the information provided by $\delta^{13}C$ values of the herbivorous mammals that—based on our data compilation—generally indicate more $C_4$ plants in the landscape, presumably grasses adapted to open and dry environments (Fig. 3f). Another previous study[104] conducted a correspondence analysis using the relative abundances of the different groups of mammals classified as woodland-adapted and grassland-adapted, on the basis of stable carbon isotopes and uniformitarian comparisons to extant relatives. This study observed that the relative abundance of *P. robustus* follows the relative abundances of woodland-adapted species and is negatively correlated to the relative abundances of grassland-adapted species. An ecomorphological analysis (L. C. Bishop et al., personal communication) of bovid postcrania from Sterkfontein member 5B 'Oldowan infill' concluded that most bovid species were adapted to open grasslands, and reconstructed the environment as dominated by grasslands but with a nearby more-wooded component. Finally, another previous analysis[106] has suggested that the absence of *P. robustus* in Sterkfontein member 5 west could be linked to a drier local habitat without water-dependent species. Overall, these studies indicate that grasslands were important and probably predominant in the environments occupied by *P. robustus*, but always with a more-wooded and humid component nearby. The ecological data gained from multiple lines of evidence suggest that *P. robustus* preferred this woodland and/or humid component.

**Combining the multiple lines of evidence.** Based on the evidence discussed above, we interpret *P. robustus* as a species that was tolerant of environmental variability (eurytopic), especially in terms of dietary resources, but with a long-lasting preference for the wooded or humid components (characterized by $C_3$ plants) of environments that were otherwise dominated by $C_4$ dry-adapted plants. Such a selective feeding behaviour—with scarce components of the vegetation that are over-represented in the diet of an animal—is frequently observed in extant mammals. For example, extant geladas (*Theropithecus gelada*) from the Guassa Plateau in the highlands of Ethiopia rely extensively on forbs (about 38% of annual diet, and up to 61% of monthly diet) although their preferred forbs represent only 8% of ground cover[107]. A variable $C_3$-plant-dominated diet, including both hard and tough food items, and displaying strong seasonal or inter-annual variations, is supported by the stable carbon and oxygen isotopes, the dental microwear textures and the overall morphological adaptive traits displayed by *P. robustus*. The robust craniomandibular and dental traits appear as a reasonable compromise to efficiently process an extremely diversified diet including numerous tough parts of plants along with some hard foods, and probably a large number of small food items that had to be eaten in small bites, with some exogenous grit particulates adhering (for example, termites or grass roots).

The preference of *P. robustus* for habitats dominated by $C_3$ plants, either in woodlands or in humid environments, is well corroborated by the data gained from the study of other animals, indicating large quantities of $C_4$ vegetation but always with a more wooded component and the nearby presence of a water source. Frequent exploitation of the $C_4$-plant food resources in the more open component of the landscapes is demonstrated by stable carbon isotopes that indicate a substantial, but not dominant, $C_4$ component in the diet. Prehensile hands and the possible use of bone tools would have enabled *P. robustus* to access a great variety of foods in both wooded and open habitats. *P. robustus* may be best characterized as an ecotonic species, exploiting intermediate habitats in which the edge effect is maximized, enabling it to forage on a maximal variety of foods in both wooded and open habitats within a limited area while retaining access to secure shelters in woodlands. Such an ecology is displayed by the forest hog (*Hylochoerus meinertzhageni*) that strongly depends on wooded humid forests for shelter, food and water, but which also frequently exploits open grasslands for additional plant resources[108]. Data are scarcer for *A. sediba* but the multiple lines of evidence discussed above suggest an even stronger preference for $C_3$-plant-dominated wooded habitats, when compared to *P. robustus*. It is worth noting that a similar preference for the $C_3$-plant component, presumably woodlands, in overall $C_4$-grass-dominated landscapes is also documented in several other hominin species from eastern Africa[109,110].

**Extinction of *P. robustus*.** It appears likely that the last documented occurrence of *P. robustus* is dated about 0.9 Ma, or even later (see Extended Data Table 1). Indeed, multiple lines of dating evidence point to a young age of Swartkrans member 3, probably around 0.9 Ma but possibly as young as 0.6 Ma. It is also worth noting the frequency of artificial range truncation of extinct taxa, often called the Signor and Lipps effect[111]: owing to the imperfect nature of the fossil record, the extinction date of a particular taxon is most probably more recent than the last fossil occurrence of this taxon. Bearing in mind that this caution was formulated on the basis of the near-continuous and precisely dated marine palaeontological record, the Signor and Lipps effect is even more pertinent when considering extinction dates based on the spatio-temporally biased continental fossil record of terrestrial faunas (see details in ref.112). This dating uncertainty most probably applies to *P. robustus* as the known geographic distribution of this species is extremely small. Most of the sites that contain *P. robustus* are located within a circle of about 3-km radius, and only Gondolin is located a bit further north, around 25 km from Swartkrans and Sterkfontein. A circle of 12.5-km radius encompassing all the known occurrences of *P. robustus* would therefore represent a distribution area of about 500 $km^2$. Large mammals tend to have much larger geographic distributions than 500 $km^2$. For comparison, the critically endangered eastern gorilla (*Gorilla beringei*)—the extant species of African great ape that has the smallest geographic distribution—is found over an area of about 70,000 $km^2$. Other great apes have much larger distributions (*Gorilla gorilla*, over 700,000 $km^2$; *Pan paniscus*: about 156,000 $km^2$; *Pan troglodytes*, over 2,600,000 $km^2$; all data are from the International Union for Conservation of Nature website, http://www.iucnredlist.org/). It is therefore most likely that the real distribution area of *P. robustus* was much larger than the area that is currently sampled by the available fossil record, making the true last occurrence of the species unlikely to be sampled, and the real extinction date of the species probably younger than 0.9 Ma.

The fossil record of South Africa indicates that numerous species became extinct during the Pleistocene. However, the paucity of the record after 1.4 Ma seriously hinders our understanding of the pattern and timing of the extinctions. Middle Pleistocene faunas such as those of Florisbad (about 0.25 Ma) are almost entirely composed of species that are similar to the extant species whereas older faunas (for example, Cornelia at around 1 Ma or Elandsfontein at 1–0.6 Ma) contain a substantial proportion of extinct species (see ref.113). Neither a precise date nor a time interval (1–0.5 Ma versus later during the Pleistocene) can be

© 2018 Macmillan Publishers Limited, part of Springer Nature. All rights reserved.

constrained for the extinction of those species based on their currently available fossil records.

Our marine record and previously published terrestrial records are indicative of a clear trend through time towards more-open and drier landscapes in the Limpopo catchment. Given that *P. robustus* preferentially thrived in the non-dominant component of its environment (either woodland or humid grassland) characterized by $C_3$ plants, and that the diet of this species was dominated by $C_3$-plant-derived food items, including occasional hard objects, we assume that the regional trend towards a more arid hydroclimate after 1 Ma and the marked precessional variability affected the abundance of this species and its resilience to environmental changes. As the regional hydroclimate became drier, the wooded and humid environments favoured by *P. robustus* probably became progressively scarcer, strongly affecting the fitness and survival of populations of mammals that depended on these habitats for food, water and shelter. We propose a speculative, but plausible, scenario inspired by previous theoretical work[27]. According to this scenario, the geographic ranges of taxa adapted to woodlands and humid habitats, including *P. robustus*, contracted and expanded according to the precessional ~21-kyr dry and wet cycles. During multi-millennial dry periods, the range of populations of these taxa contracted and often became fragmented. The resulting isolated populations were especially prone to local extinction through increased competition and predation induced by the lack of sufficient and suitable food, water and shelters. During multi-millennial wet periods, preferred woodland and humid habitats would have expanded again and the surviving populations would have expanded into their previously occupied range, replacing locally extinct populations. The long-term trend to aridity, inferred from our marine record, implies that dry periods became more and more marked through time, increasing the likelihood for local extinction of numerous local populations, until the extinction of the last remaining local population and therefore the extinction of the species. Thus, both long-term state and the extreme precessional changes in hydroclimate could have affected the evolution of *P. robustus*. A recent synthesis of factors involved in the extinction of large mammals—spanning three continents and the whole Cenozoic period—concluded that abiotic changes, such as climatic changes, were key players in the extinctions of species[26].

**What of *Homo*?** Several authors (reviewed in ref.114) have suggested that strong morphological, behavioural and ecological differences between *P. robustus* and the contemporary *Homo* gave an evolutionary advantage to the latter over the former. Given that *Homo* did not go extinct and remained extremely widespread in Africa and beyond, some authors have related these differences to the extinction of *P. robustus*. Notably different relative abundances of these two taxa do suggest they were occupying separate ecological niches in the sites where they co-occur (Swartkrans 96% *P. robustus*, 4% *Homo*; Drimolen 84% *P. robustus* 16% *Homo*, according to previous work[115]). However, these scenarios are speculative and clearly beyond the scope of our paper, which is focused on *P. robustus*. Regardless of any potential evolutionary advantage of *Homo* over *P. robustus*, whether or not *Homo* went extinct locally in the Limpopo catchment during the aridification period is meaningless to the subsequent evolutionary history of the genus *Homo*. Remains of *Homo* are known in other parts of South Africa at around 1 Ma (for example, Elandsfontein[116] and Cornelia-Uitzoek[117]), as well as in other parts of Africa[118,119], which would have made any local extinction counterbalanced by subsequent dispersals from other regions. The survival of *Homo* could plausibly be explained solely through plain contingency, especially as our synthesis as well as recent literature[114] indicates a eurytopic ecology for both *Homo* and *Paranthropus*.

**Code availability.** The iLOVECLIM source code is based on the LOVECLIM model version 1.2, for which code is accessible at http://www.elic.ucl.ac.be/modx/elic/index.php?id=289. The developments of the iLOVECLIM source code are hosted at http://forge.ipsl.jussieu.fr/ludus, but are not publicly available owing to copyright restrictions. Access can be granted on demand by request to D.M.R. (didier.roche@lsce.ipsl.fr) to those who conduct research in collaboration with the iLOVECLIM users group.

**Data availability.** The datasets generated during and/or analysed during the current study are available from the corresponding author on reasonable request. Source Data for Fig. 2 is provided with the paper.


32. Page, E. S. Continuous inspection schemes. *Biometrika* **41**, 100–115 (1954).
33. García-Comas, C. et al. Zooplankton long-term changes in the NW Mediterranean Sea: decadal periodicity forced by winter hydrographic conditions related to large-scale atmospheric changes? *J. Mar. Syst.* **87**, 216–226 (2011).
34. Ibanez, F., Fromentin, J. M. & Castel, J. Application of the cumulated function to the processing of chronological data in oceanography. *C. R. Acad. Sci. III* **316**, 745–748 (1993).
35. Maher, L. J. Jr. Nomograms for computing 0.95 confidence limits of pollen data. *Rev. Palaeobot. Palynol.* **13**, 85–93 (1972).
36. Lisiecki, L. E. & Raymo, M. E. A Pliocene–Pleistocene stack of 57 globally distributed benthic $\delta^{18}O$ records. *Paleoceanography* **20**, PA1003 (2005).
37. Paillard, D., Labeyrie, L. D. & Yiou, P. AnalySeries 1.0: Macintosh program performs time-series analysis. *Eos* **77**, 379 (1996).
38. Barker, S., Greaves, M. & Elderfield, H. A study of cleaning procedures used for foraminiferal Mg/Ca paleothermometry. *Geochem. Geophys. Geosyst.* **4**, 8407 (2003).
39. de Villiers, S., Greaves, M. & Elderfield, H. An intensity ratio calibration method for the accurate determination of Mg/Ca and Sr/Ca of marine carbonates by ICP-AES. *Geochem. Geophys. Geosyst.* **3**, 2001GC000169 (2002).
40. Anand, P., Elderfield, H. & Conte, M. H. Calibration of Mg/Ca thermometry in planktonic foraminifera from a sediment trap time series. *Paleoceanography* **18**, 1050 (2003).
41. Hemleben, C., Spindler, M. & Erson, O. R. *Modern Planktonic Foraminifera* (Springer, New York, 1989).
42. Kennett, J. P. & Srinivasan, M. S. *Neogene Planktonic Foraminifera: A Phylogenetic Atlas* (Hutchinson Ross, Stroudsburg, 1983).
43. Guiot, J. & de Vernal, A. in *Proxies in Late Cenozoic Paleoceanography* (eds Hillaire-Marcel, C. & de Vernal, A.) 523–563 (Elsevier, Amsterdam, 2007).
44. Kucera, M. in *Proxies in Late Cenozoic Paleoceanography* (eds Hillaire-Marcel, C. & de Vernal, A.) 213–262 (Elsevier, Amsterdam, 2007).
45. Barrows, T. T. & Juggins, S. Sea-surface temperatures around the Australian margin and Indian Ocean during the Last Glacial Maximum. *Quat. Sci. Rev.* **24**, 1017–1047 (2005).
46. Kucera, M. et al. Reconstruction of sea-surface temperatures from assemblages of planktonic foraminifera: multi-technique approach based on geographically constrained calibration data sets and its application to glacial Atlantic and Pacific Oceans. *Quat. Sci. Rev.* **24**, 951–998 (2005).
47. Von Storch, H. & Zwiers, F. W. *Statistical Analysis in Climate Research* (Cambridge Univ. Press, Cambridge, 1999).
48. Roche, D. M. $\delta^{18}O$ water isotope in the iLOVECLIM model (version 1.0)–part 1: implementation and verification. *Geosci. Model Dev.* **6**, 1481–1491 (2013).
49. Roche, D. M. & Caley, T. $\delta^{18}O$ water isotope in the *i*LOVECLIM model (version 1.0)–part 2: evaluation of model results against observed $\delta^{18}O$ in water samples. *Geosci. Model Dev.* **6**, 1493–1504 (2013).
50. Caley, T. & Roche, D. M. $\delta^{18}O$ water isotope in the *i*LOVECLIM model (version 1.0)–part 3: a palaeo-perspective based on present-day data–model comparison for oxygen stable isotopes in carbonates. *Geosci. Model Dev.* **6**, 1505–1516 (2013).
51. Caley, T., Roche, D. M. & Renssen, H. Orbital Asian summer monsoon dynamics revealed using an isotope-enabled global climate model. *Nat. Commun.* **5**, 5371 (2014).
52. Collins, J. A. et al. Rapid termination of the African Humid Period triggered by northern high-latitude cooling. *Nat. Commun.* **8**, 1372 (2017).
53. Grine, F. E. & Daegling, D. J. Functional morphology, biomechanics and the retrodiction of early hominin diets. *C. R. Palevol* **16**, 613–631 (2017).
54. Wood, B. & Schroer, K. in *Human Paleontology and Prehistory. Contributions in Honor of Yoel Rak* (eds Marom, A. & Hovers, E.) 95–107 (Springer, Cham, 2017).
55. Patterson, D. B., Faith, J. T., Bobe, R. & Wood, B. Regional diversity patterns in African bovids, hyaenids, and felids during the past 3 million years: the role of taphonomic bias and implications for the evolution of *Paranthropus*. *Quat. Sci. Rev.* **96**, 9–22 (2014).
56. Grine, F. E. (ed). *Evolutionary History of the "Robust" Australopithecines* (Aldine de Gruyter, New York, 1988).
57. Strait, D. S. et al. Viewpoints: diet and dietary adaptations in early hominins: the hard food perspective. *Am. J. Phys. Anthropol.* **151**, 339–355 (2013).
58. Smith, A. L. et al. The feeding biomechanics and dietary ecology of *Paranthropus boisei*. *Anat. Rec. (Hoboken)* **298**, 145–167 (2015).
59. Rabenold, D. & Pearson, O. M. Abrasive, silica phytoliths and the evolution of thick molar enamel in primates, with implications for the diet of *Paranthropus boisei*. *PLoS ONE* **6**, e28379 (2011).
60. Scott, J. E., McAbee, K. R., Eastman, M. M. & Ravosa, M. J. Experimental perspective on fallback foods and dietary adaptations in early hominins. *Biol. Lett.* **10**, 20130789 (2014).
61. Ungar, P. S., Grine, F. E. & Teaford, M. F. Dental microwear and diet of the Plio-Pleistocene hominin *Paranthropus boisei*. *PLoS ONE* **3**, e2044 (2008).
62. Cerling, T. E. et al. Diet of *Paranthropus boisei* in the early Pleistocene of East Africa. *Proc. Natl Acad. Sci. USA* **108**, 9337–9341 (2011).
63. King, R. A. Using *Ailuropoda melanoleuca* as a Model Species for Studying the Ecomorphology of *Paranthropus*. *MSc. thesis, Marshall Univ.* (2014).
64. Weng, Z. Y. et al. Giant panda's tooth enamel: structure, mechanical behavior and toughening mechanisms under indentation. *J. Mech. Behav. Biomed. Mater.* **64**, 125–138 (2016).
65. Ungar, P. S. & Hlusko, L. J. The evolutionary path of least resistance. *Science* **353**, 29–30 (2016).
66. Lucas, P. W. *Dental Functional Morphology: How Teeth Work* (Cambridge Univ. Press, Cambridge, 2004).
67. Souron, A. in *Ecology, Conservation and Management of Wild Pigs and Peccaries* (eds Melletti, M. & Meijaard, E.) 29–38 (Cambridge Univ. Press, Cambridge, 2017).
68. Ledogar, J. A. et al. Mechanical evidence that *Australopithecus sediba* was limited in its ability to eat hard foods. *Nat. Commun.* **7**, 10596 (2016).
69. Daegling, D. J., Carlson, K. J., Tafforeau, P., de Ruiter, D. J. & Berger, L. R. Comparative biomechanics of *Australopithecus sediba* mandibles. *J. Hum. Evol.* **100**, 73–86 (2016).
70. Grine, F. E. & Susman, R. L. Radius of *Paranthropus robustus* from member 1, Swartkrans formation, South Africa. *Am. J. Phys. Anthropol.* **84**, 229–248 (1991).
71. Patel, B. A. The hominoid proximal radius: re-interpreting locomotor behaviors in early hominins. *J. Hum. Evol.* **48**, 415–432 (2005).

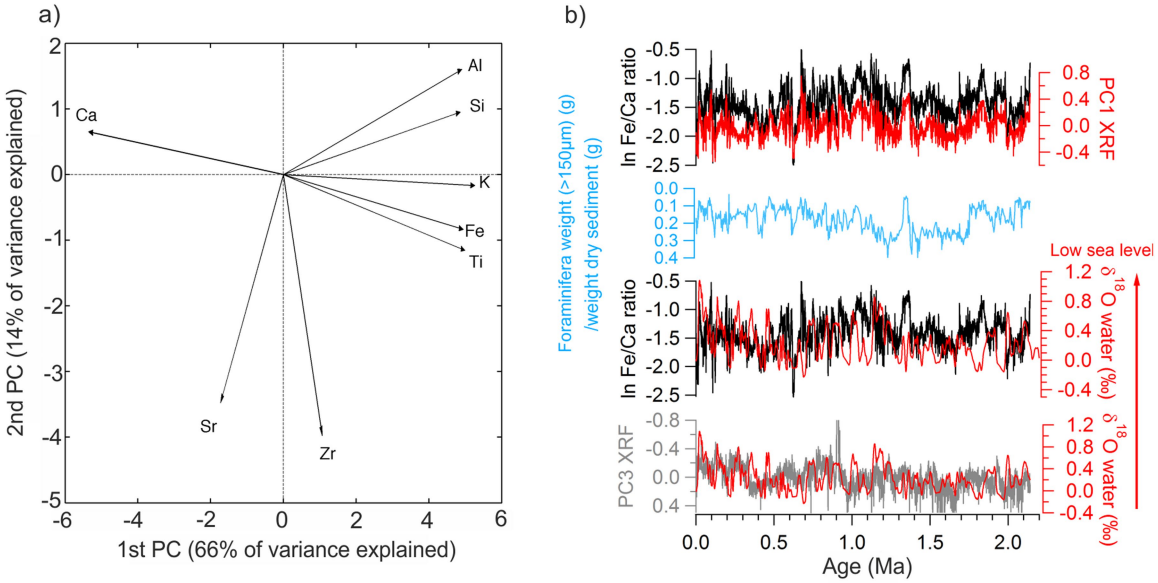

© 2018 Macmillan Publishers Limited, part of Springer Nature. All rights reserved.

72. Susman, R. L. Hand of *Paranthropus robustus* from Member 1, Swartkrans: fossil evidence for tool behavior. *Science* **240**, 781–784 (1988).
73. Backwell, L. R. & d'Errico, F. Additional evidence on the early hominid bone tools from Swartkrans with reference to spatial distribution of lithic and organic artefacts. *S. Afr. J. Sci.* **99**, 259–267 (2003).
74. Backwell, L. R. & d'Errico, F. Early hominid bone tools from Drimolen, South Africa. *J. Archaeol. Sci.* **35**, 2880–2894 (2008).
75. d'Errico, F. & Backwell, L. R. Assessing the function of early hominin bone tools. *J. Archaeol. Sci.* **36**, 1764–1773 (2009).
76. Churchill, S. E. et al. The upper limb of *Australopithecus sediba*. *Science* **340**, 1233477 (2013).
77. Rein, T. R., Harrison, T., Carlson, K. J. & Harvati, K. Adaptation to suspensory locomotion in *Australopithecus sediba*. *J. Hum. Evol.* **104**, 1–12 (2017).
78. Macho, G. in *Trends in Biological Anthropology* Vol. 1 (eds Gerdau-Radonić, K. & McSweeney, K.) 1–10 (Oxbow, Oxford, 2015).
79. Tseng, Z. J. Connecting Hunter–Schreger Band microstructure to enamel microwear features: new insights from durophagous carnivores. *Acta Palaeontol. Pol.* **57**, 473–484 (2012).
80. Alloing-Séguier, L. et al. Enamel microstructure evolution in anthracotheres (Mammalia, Cetartiodactyla) and new insights on hippopotamoid phylogeny. *Zool. J. Linn. Soc.* **171**, 668–695 (2014).
81. Constantino, P. J., Borrero-Lopez, O., Pajares, A. & Lawn, B. R. Simulation of enamel wear for reconstruction of diet and feeding behavior in fossil animals: a micromechanics approach. *BioEssays* **38**, 89–99 (2016).
82. Towle, I., Irish, J. D. & De Groote, I. Behavioral inferences from the high levels of dental chipping in *Homo naledi*. *Am. J. Phys. Anthropol.* **164**, 184–192 (2017).
83. Sponheimer, M. et al. Isotopic evidence for dietary variability in the early hominin *Paranthropus robustus*. *Science* **314**, 980–982 (2006).
84. Sponheimer, M. et al. Hominins, sedges, and termites: new carbon isotope data from the Sterkfontein valley and Kruger National Park. *J. Hum. Evol.* **48**, 301–312 (2005).
85. Sponheimer, M. & Lee-Thorp, J. A. Differential resource utilization by extant great apes and australopithecines: towards solving the $C_4$ conundrum. *Comp. Biochem. Physiol. A* **136**, 27–34 (2003).
86. Sponheimer, M. in *The Paleobiology of Australopithecus* (eds Reed, K. E., Fleagle, J. G. & Leakey, R. E.) 225–233 (Springer, Dordrecht, 2013).
87. Dominy, N. J., Vogel, E. R., Yeakel, J. D., Constantino, P. & Lucas, P. W. Mechanical properties of plant underground storage organs and implications for dietary models of early hominins. *Evol. Biol.* **35**, 159–175 (2008).
88. Yeakel, J. D., Dominy, N. J., Koch, P. L. & Mangel, M. Functional morphology, stable isotopes, and human evolution: a model of consilience. *Evolution* **68**, 190–203 (2014).
89. Sponheimer, M. & Lee-Thorp, J. A. Oxygen isotopes in enamel carbonate and their ecological significance. *J. Archaeol. Sci.* **26**, 723–728 (1999).
90. Levin, N. E., Cerling, T. E., Passey, B. H., Harris, J. M. & Ehleringer, J. R. A stable isotope aridity index for terrestrial environments. *Proc. Natl Acad. Sci. USA* **103**, 11201–11205 (2006).
91. Faith, J. T. Paleodietary change and its implications for aridity indices derived from $\delta^{18}O$ of herbivore tooth enamel. *Palaeogeogr. Palaeoclimatol. Palaeoecol.* **490**, 571–578 (2018).
92. Lee-Thorp, J. A., Sponheimer, M., Passey, B. H., de Ruiter, D. J. & Cerling, T. E. Stable isotopes in fossil hominin tooth enamel suggest a fundamental dietary shift in the Pliocene. *Philos. Trans. R. Soc. Lond. B* **365**, 3389–3396 (2010).
93. Souron, A., Balasse, M. & Boisserie, J.-R. Intra-tooth isotopic profiles of canines from extant *Hippopotamus amphibius* and late Pliocene hippopotamids (Shungura Formation, Ethiopia): insights into the seasonality of diet and climate. *Palaeogeogr. Palaeoclimatol. Palaeoecol.* **342–343**, 97–110 (2012).
94. Sponheimer, M., de Ruiter, D., Lee-Thorp, J. & Späth, A. Sr/Ca and early hominin diets revisited: new data from modern and fossil tooth enamel. *J. Hum. Evol.* **48**, 147–156 (2005).
95. Ungar, P. S. & Sponheimer, M. The diets of early hominins. *Science* **334**, 190–193 (2011).
96. Grine, F. E., Sponheimer, M., Ungar, P. S., Lee-Thorp, J. & Teaford, M. F. Dental microwear and stable isotopes inform the paleoecology of extinct hominins. *Am. J. Phys. Anthropol.* **148**, 285–317 (2012).
97. Ungar, P. S., Scott, J. R. & Steininger, C. M. Dental microwear differences between eastern and southern African fossil bovids and hominins. *S. Afr. J. Sci.* **112**, 2015-0393 (2016).
98. Peterson, A. S., Abella, E. F., Grine, F. E., Teaford, M. F. & Ungar, P. S. Microwear textures of *Australopithecus africanus* and *Paranthropus robustus* molars in relation to environment and diet. *J. Hum. Evol.* **119**, 42–63 (2018).
99. Lee-Thorp, J. A., van der Merwe, N. J. & Brain, C. K. Diet of *Australopithecus robustus* at Swartkrans from stable carbon isotopic analysis. *J. Hum. Evol.* **27**, 361–372 (1994).
100. Lee-Thorp, J., Thackeray, J. F. & van der Merwe, N. The hunters and the hunted revisited. *J. Hum. Evol.* **39**, 565–576 (2000).
101. Steininger, C. M. The Dietary Behaviour of Early Pleistocene Bovids from Cooper's Cave and Swartkrans, South Africa. PhD thesis, Univ. of the Witwatersrand (2011).
102. Adams, J. W. Stable carbon isotope analysis of fauna from the Gondolin GD 2 fossil assemblage, South Africa. *Ann. Ditsong Natl. Mus. Nat. Hist.* **2**, 1–5 (2012).
103. Reed, K. E. Early hominid evolution and ecological change through the African Plio-Pleistocene. *J. Hum. Evol.* **32**, 289–322 (1997).
104. de Ruiter, D. J., Sponheimer, M. & Lee-Thorp, J. A. Indications of habitat association of *Australopithecus robustus* in the Bloubank Valley, South Africa. *J. Hum. Evol.* **55**, 1015–1030 (2008).
106. Kuman, K. & Clarke, R. J. Stratigraphy, artefact industries and hominid associations for Sterkfontein, member 5. *J. Hum. Evol.* **38**, 827–847 (2000).
107. Fashing, P. J., Nguyen, N., Venkataraman, V. V. & Kerby, J. T. Gelada feeding ecology in an intact ecosystem at Guassa, Ethiopia: variability over time and implications for theropith and hominin dietary evolution. *Am. J. Phys. Anthropol.* **155**, 1–16 (2014).
108. d'Huart, J.-P. in *Pigs, Peccaries, and Hippos: Status Survey and Conservation Action Plan* (ed. Oliver, W. L. R.) 84–92 (IUCN, Gland, 1993).
109. Quinn, R. L. et al. Pedogenic carbonate stable isotopic evidence for wooded habitat preference of early Pleistocene tool makers in the Turkana Basin. *J. Hum. Evol.* **65**, 65–78 (2013).
110. Robinson, J. R., Rowan, J., Campisano, C. J., Wynn, J. G. & Reed, K. E. Late Pliocene environmental change during the transition from *Australopithecus* to *Homo*. *Nat. Ecol. Evol.* **1**, 0159 (2017).
111. Signor, P. W. III & Lipps, J. H. in *Geological Implications of Impacts of Large Asteroids and Comets on the Earth* (eds Silver, L. T. & Schultz, P. H.) 291–296 (The Geological Society of America, Boulder, 1982).
112. White, T. D. in *Paleoclimate and Evolution, with Emphasis on Human Origins* (eds Vrba, E. S. et al.) 369–384 (Yale Univ. Press, New Haven, 1995).
113. Codron, D., Brink, J. S., Rossouw, L. & Clauss, M. The evolution of ecological specialization in southern African ungulates: competition- or physical environmental turnover? *Oikos* **117**, 344–353 (2008).
114. Wood, B. & Strait, D. Patterns of resource use in early *Homo* and *Paranthropus*. *J. Hum. Evol.* **46**, 119–162 (2004).
115. Moggi-Cecchi, J., Menter, C., Boccone, S. & Keyser, A. Early hominin dental remains from the Plio-Pleistocene site of Drimolen, South Africa. *J. Hum. Evol.* **58**, 374–405 (2010).
116. Klein, R. G., Avery, G., Cruz-Uribe, K. & Steele, T. E. The mammalian fauna associated with an archaic hominin skullcap and later Acheulean artifacts at Elandsfontein, Western Cape Province, South Africa. *J. Hum. Evol.* **52**, 164–186 (2007).
117. Brink, J. S. et al. First hominine remains from a ~1.0 million year old bone bed at Cornelia-Uitzoek, Free State Province, South Africa. *J. Hum. Evol.* **63**, 527–535 (2012).
118. Asfaw, B. et al. Remains of *Homo erectus* from Bouri, Middle Awash, Ethiopia. *Nature* **416**, 317–320 (2002).
119. Abbate, E. et al. A one-million-year-old *Homo* cranium from the Danakil (Afar) Depression of Eritrea. *Nature* **393**, 458–460 (1998).
120. Bahr, A. et al. Deciphering bottom current velocity and paleoclimate signals from contourite deposits in the Gulf of Cádiz during the last 140 kyr: an inorganic geochemical approach. *Geochem. Geophys. Geosyst.* **15**, 3145–3160 (2014).
121. Adegbie, A. T., Schneider, R. R., Röhl, U. & Wefer, G. Glacial millennial-scale fluctuations in central African precipitation recorded in terrigenous sediment supply and freshwater signals offshore Cameroon. *Palaeogeogr. Palaeoclimatol. Palaeoecol.* **197**, 323–333 (2003).
122. Dickson, A. J., Leng, M. J., Maslin, M. A. & Röhl, U. Oceanic, atmospheric and ice-sheet forcing of South East Atlantic Ocean productivity and South African monsoon intensity during MIS-12 to 10. *Quat. Sci. Rev.* **29**, 3936–3947 (2010).
123. Revel, M. et al. 20,000 years of Nile River dynamics and environmental changes in the Nile catchment area as inferred from Nile upper continental slope sediments. *Quat. Sci. Rev.* **130**, 200–221 (2015).
124. Ziegler, M. et al. Development of Middle Stone Age innovation linked to rapid climate change. *Nat. Commun.* **4**, 1905 (2013).
125. Rohling, E. J. et al. Sea-level and deep-sea-temperature variability over the past 5.3 million years. *Nature* **508**, 477–482 (2014).
126. IAEA. *Isotope Hydrology Information System, The ISOHIS Database* http://www.iaea.org/water (2006).
127. Risi, C., Bony, S. & Vimeux, F. Influence of convective processes on the isotopic composition ($\delta^{18}O$ and $\delta D$) of precipitation and water vapor in the tropics: 2. physical interpretation of the amount effect. *J. Geophys. Res.* **113**, D19306 (2008).
128. Stock, W. D., Chuba, D. K. & Verboom, G. A. Distribution of South African $C_3$ and $C_4$ species of Cyperaceae in relation to climate and phylogeny. *Austral Ecol.* **29**, 313–319 (2004).
129. Dupont, L. M. & Kuhlmann, H. Glacial-interglacial vegetation change in the Zambezi catchment. *Quat. Sci. Rev.* **155**, 127–135 (2017).
130. Schrag, D. P. et al. The oxygen isotopic composition of seawater during the Last Glacial Maximum. *Quat. Sci. Rev.* **21**, 331–342 (2002).
131. Sachse, D. et al. Molecular paleohydrology: interpreting the hydrogen-isotopic composition of lipid biomarkers from photosynthesizing organisms. *Annu. Rev. Earth Planet. Sci.* **40**, 221–249 (2012).
132. Collins, J. A. et al. Estimating the hydrogen isotopic composition of past precipitation using leaf-waxes from western Africa. *Quat. Sci. Rev.* **65**, 88–101 (2013).
133. Schefuß, E., Schouten, S., Jansen, J. H. & Sinninghe Damsté, J. S. African vegetation controlled by tropical sea surface temperatures in the mid-Pleistocene period. *Nature* **422**, 418–421 (2003).
134. Grinsted, A., Moore, J. C. & Jevrejeva, S. Application of the cross wavelet transform and wavelet coherence to geophysical time series. *Nonlinear Process. Geophys.* **11**, 561–566 (2004).
135. Schulz, M. & Mudelsee, M. REDFIT: estimating red-noise spectra directly from unevenly spaced paleoclimatic time series. *Comput. Geosci.* **28**, 421–426 (2002).
136. Imbrie, J. et al. in *Milankovitch and Climate: Understanding the Response to Astronomical Forcing* (eds Berger, A. et al.) 269–305 (Springer, Dordrecht, 1984).


© 2018 Macmillan Publishers Limited, part of Springer Nature. All rights reserved.

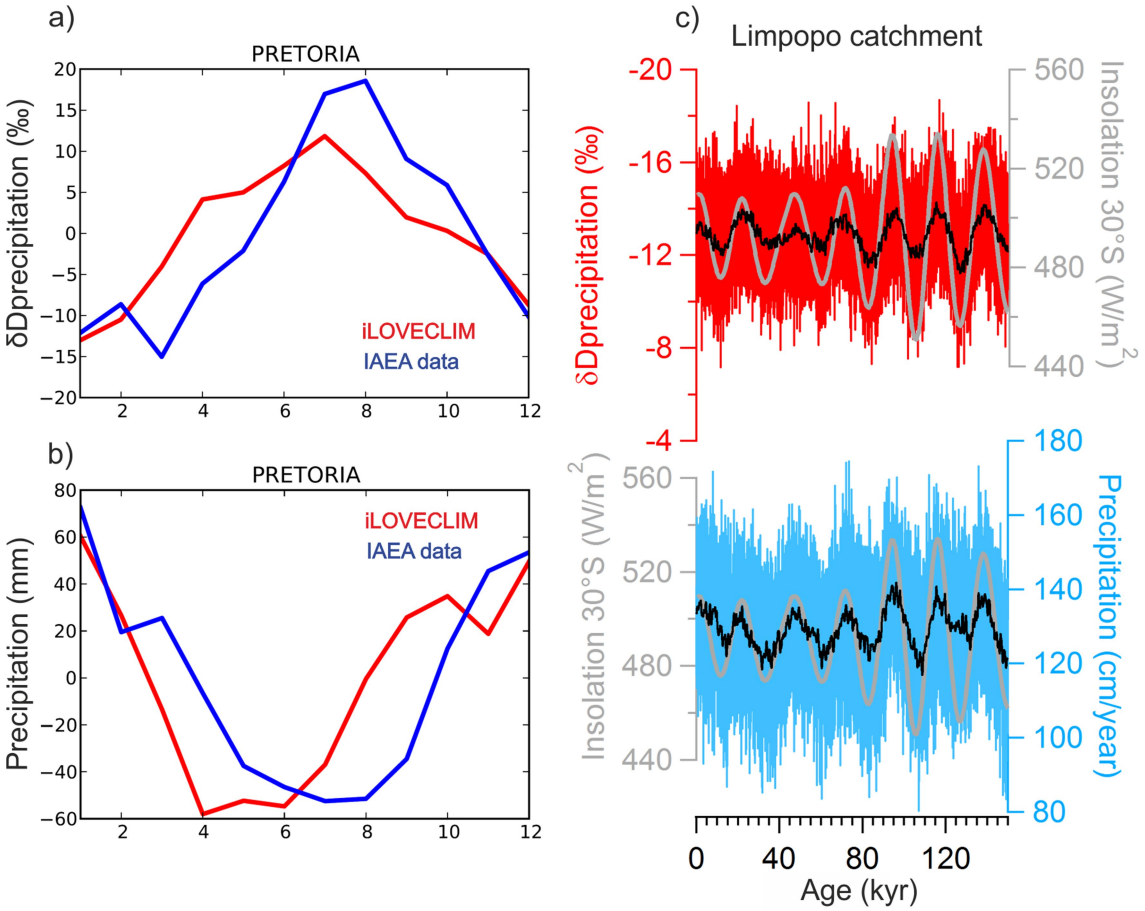
137. Dirks, P. H. et al. Geological setting and age of *Australopithecus sediba* from southern Africa. *Science* **328**, 205–208 (2010).
138. Pickering, R. et al. *Australopithecus sediba* at 1.977 Ma and implications for the origins of the genus *Homo*. *Science* **333**, 1421–1423 (2011).
139. Berger, L. R., de Ruiter, D. J., Steininger, C. M. & Hancox, J. Preliminary results of excavations at the newly investigated Coopers D deposit, Gauteng, South Africa. *S. Afr. J. Sci.* **99**, 276–278 (2003).
140. de Ruiter, D. J. et al. New *Australopithecus robustus* fossils and associated U-Pb dates from Cooper's Cave (Gauteng, South Africa). *J. Hum. Evol.* **56**, 497–513 (2009).
141. Keyser, A. W., Menter, C. G., Moggi-Cecchi, J., Rayne Pickering, T. & Berger, L. R. Drimolen: a new hominid-bearing site in Gauteng, South Africa. *S. Afr. J. Sci.* **96**, 193–197 (2000).
142. Adams, J. W., Rovinsky, D. S., Herries, A. I. R. & Menter, C. G. Macromammalian faunas, biochronology and palaeoecology of the early Pleistocene Main Quarry hominin-bearing deposits of the Drimolen Palaeocave System, South Africa. *PeerJ* **4**, e1941 (2016).
143. Thackeray, J. F., Kirschvink, J. L. & Raub, T. D. Palaeomagnetic analyses of calcified deposits from the Plio-Pleistocene hominid site of Kromdraai, South Africa: news & views. *S. Afr. J. Sci.* **98**, 537–540 (2002).
144. Herries, A. I. R., Curnoe, D. & Adams, J. W. A multi-disciplinary seriation of early *Homo* and *Paranthropus* bearing palaeocaves in southern Africa. *Quat. Int.* **202**, 14–28 (2009).
145. Herries, A. I. R & Adams, J. W. Clarifying the context, dating and age range of the Gondolin hominins and *Paranthropus* in South Africa. *J. Hum. Evol.* **65**, 676–681 (2013).
146. Braga, J., Fourvel, J.-B., Lans, B., Bruxelles, L. & Thackeray, J. F. in *Kromdraai. A Birthplace of* Paranthropus *in the Cradle of Humankind* (eds Braga, J. & Thackeray, J. F.) 1–16 (SUN, Stellenbosch, 2016).
147. Herries, A. I., Adams, J. W., Kuykendall, K. L. & Shaw, J. Speleology and magnetobiostratigraphic chronology of the GD 2 locality of the Gondolin hominin-bearing paleocave deposits, North West Province, South Africa. *J. Hum. Evol.* **51**, 617–631 (2006).
148. Adams, J. W., Herries, A. I., Kuykendall, K. L. & Conroy, G. C. Taphonomy of a South African cave: geological and hydrological influences on the GD 1 fossil assemblage at Gondolin, a Plio-Pleistocene paleocave system in the Northwest Province, South Africa. *Quat. Sci. Rev.* **26**, 2526–2543 (2007).
149. Curnoe, D. K. A. Contribution to the Question of Early *Homo* in Southern Africa: Researches into Dating, Taxonomy and Phylogeny Reconstruction. PhD thesis, Australian National University (1999).
150. Herries, A. I. & Shaw, J. Palaeomagnetic analysis of the Sterkfontein palaeocave deposits: implications for the age of the hominin fossils and stone tool industries. *J. Hum. Evol.* **60**, 523–539 (2011).
151. Granger, D. E. et al. New cosmogenic burial ages for Sterkfontein Member 2 *Australopithecus* and Member 5 Oldowan. *Nature* **522**, 85–88 (2015).
152. Gibbon, R. J. et al. Cosmogenic nuclide burial dating of hominin-bearing Pleistocene cave deposits at Swartkrans, South Africa. *Quat. Geochronol.* **24**, 10–15 (2014).
153. Curnoe, D., Grün, R., Taylor, L. & Thackeray, F. Direct ESR dating of a Pliocene hominin from Swartkrans. *J. Hum. Evol.* **40**, 379–391 (2001).
154. Pickering, R., Kramers, J. D., Hancox, P. J., de Ruiter, D. J. & Woodhead, J. D. Contemporary flowstone development links early hominin bearing cave deposits in South Africa. *Earth Planet. Sci. Lett.* **306**, 23–32 (2011).
155. Balter, V. et al. U–Pb dating of fossil enamel from the Swartkrans Pleistocene hominid site, South Africa. *Earth Planet. Sci. Lett.* **267**, 236–246 (2008).
156. Vrba, E. S. Some evidence of chronology and palaeoecology of Sterkfontein, Swartkrans and Kromdraai from the fossil Bovidae. *Nature* **254**, 301–304 (1975).
157. Vrba, E. S. in *L'environnement des hominidés au Plio-Pléistocène* (eds Beden, M. et al.) 345–369 (Masson, 1985).
158. Churcher, C. S. & Watson, V. in *Swartkrans: A Cave's Chronicle of Early Man* (ed. Brain, C. K.) 137–150 (Transvaal Museum, Pretoria, 1993).
159. Blackwell, B. A. Problems associated with reworked teeth in electron spin resonance (ESR) dating. *Quat. Sci. Rev.* **13**, 651–660 (1994).
160. Steininger, C. Local ecological profile for *Paranthropus robustus* in South Africa using stable carbon isotopes from associated bovid teeth. *Quat. Int.* **279–280**, 466 (2012).


© 2018 Macmillan Publishers Limited, part of Springer Nature. All rights reserved.



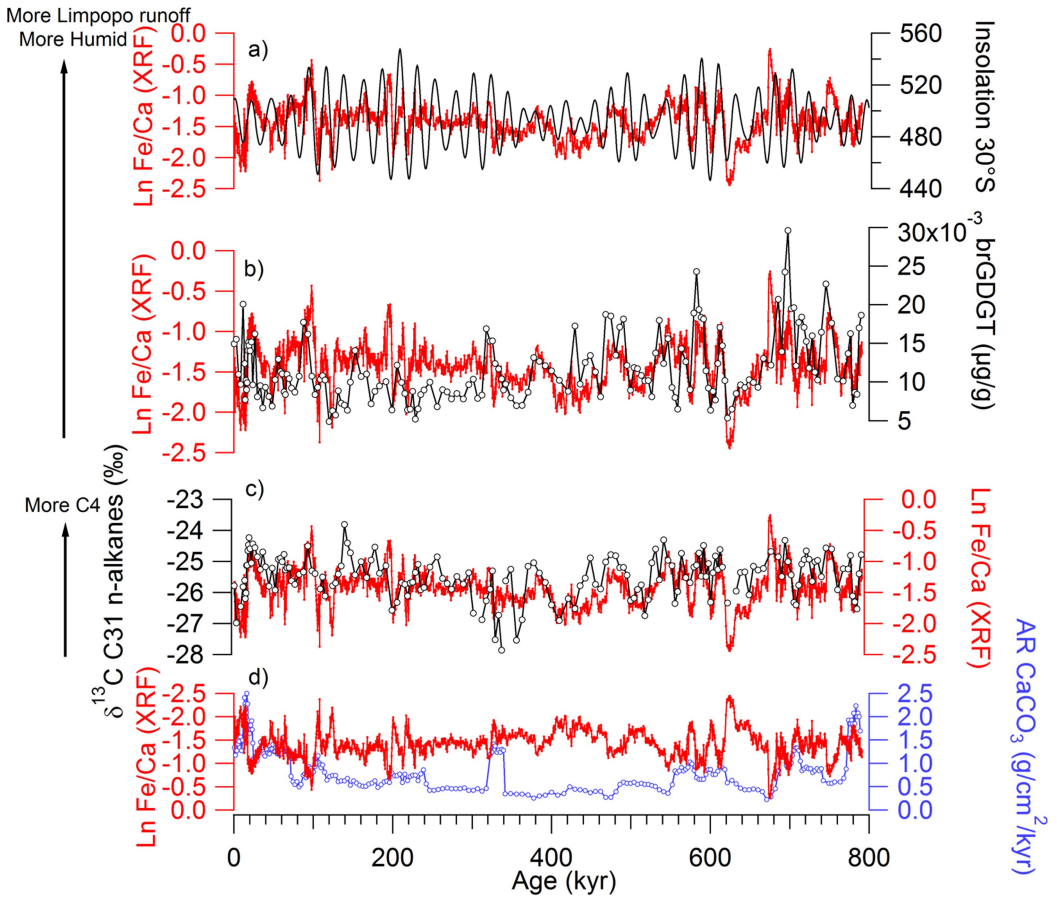

**Extended Data Fig. 1 | ln(Fe/Ca) as a proxy for Limpopo runoff.** Calcium and iron both have complex and multiple origins in marine sediments. Iron can be related to redox variations, detrital and fluvial input, among others, and calcium can be related to the biogenic fraction (foraminifera or nannofossils) and detrital input. To properly interpret the ln(Fe/Ca) ratio at our study location, we applied principal components analysis[120]. **a**, PC1 describes 66% of the total variance for the entire site MD96-2048. The negative loadings for PC1 are calcium and strontium, and all other elements (aluminium, silicon, potassium, titanium, iron and zirconium) have positive loadings. Calcium and strontium are associated with biogenic carbonate and are mainly related to presence of foraminifera. Element matrix correlation shows a strong positive linear correlation ($R > 0.70$) between iron and typically detrital elements, such as aluminium, silicon, titanium and potassium. Calcium shows negative correlation with iron ($R = -0.5$). **b**, ln(Fe/Ca) shows a strong correlation with PC1 ($R = 0.94$) and a strong relationship with Limpopo runoff proxies (Extended Data Fig. 3). Iron and titanium elements are related to terrigenous and siliciclastic components (heavy minerals and oxides) and the variation in carbonate content (calcium) is mainly due to dilution by terrigenous sediment. ln(Fe/Ca) is therefore a proxy of Limpopo runoff, consistent with previous studies in riverine basins throughout the African continent[10,121–124]. To confirm a weak influence of sea-level changes on the Fe/Ca record, we compared our ln(Fe/Ca) record with a previous reconstruction of the deep-water $\delta^{18}O$ component for relative sea level[125], (**b**, bottom). Both records are plotted against the LR04 chronology. Visual inspection and statistical testing do not support a dominant effect of sea-level changes on the ln(Fe/Ca) record ($R = 0.05$). PC3, which describes 11% of the total variance for the entire site MD96-2048, is closely related to sea-level changes. The negative loadings for PC3 are mainly strontium and, to a lesser degree, potassium and titanium, and the main positive loadings are zirconium and, to a lesser degree, silicon.

© 2018 Macmillan Publishers Limited, part of Springer Nature. All rights reserved.



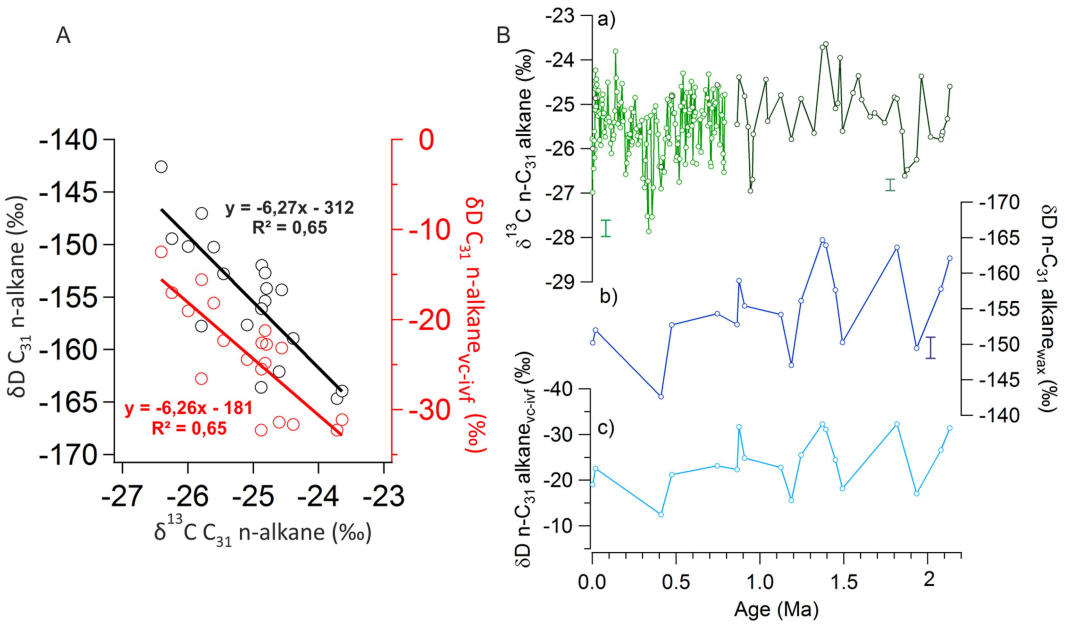

**Extended Data Fig. 2 | Control on the δD composition of precipitation in the Limpopo catchment. a**, **b**, Seasonal δD composition of precipitation (**a**) and amount of precipitation at Pretoria station[126] (**b**), in comparison to the results of the iLOVECLIM model at the corresponding latitude and longitude[48,49]. All data are centred on their annual average. Depleted δD values are indicative of increasing amounts of rainfall[127]. **c**, Results of the transient simulation with the isotope-enabled numerical climate model iLOVECLIM for the δD composition of precipitation and precipitation in the Limpopo catchment (about −27.5° S to −22° S and 30° E to 36° E), for the past 150 kyr (Methods)[51]. Black curves show the results after filtering with a low-pass filter. The δD composition of precipitation and precipitation amount in the Limpopo catchment are negatively correlated ($R = -0.63$, $P \ll 0.001$) for the past 150 kyr. Maxima of precipitation are phased with maxima in austral summer insolation at 30° S and lead to more-depleted $\delta D_{precipitation}$ (amount effect).

© 2018 Macmillan Publishers Limited, part of Springer Nature. All rights reserved.



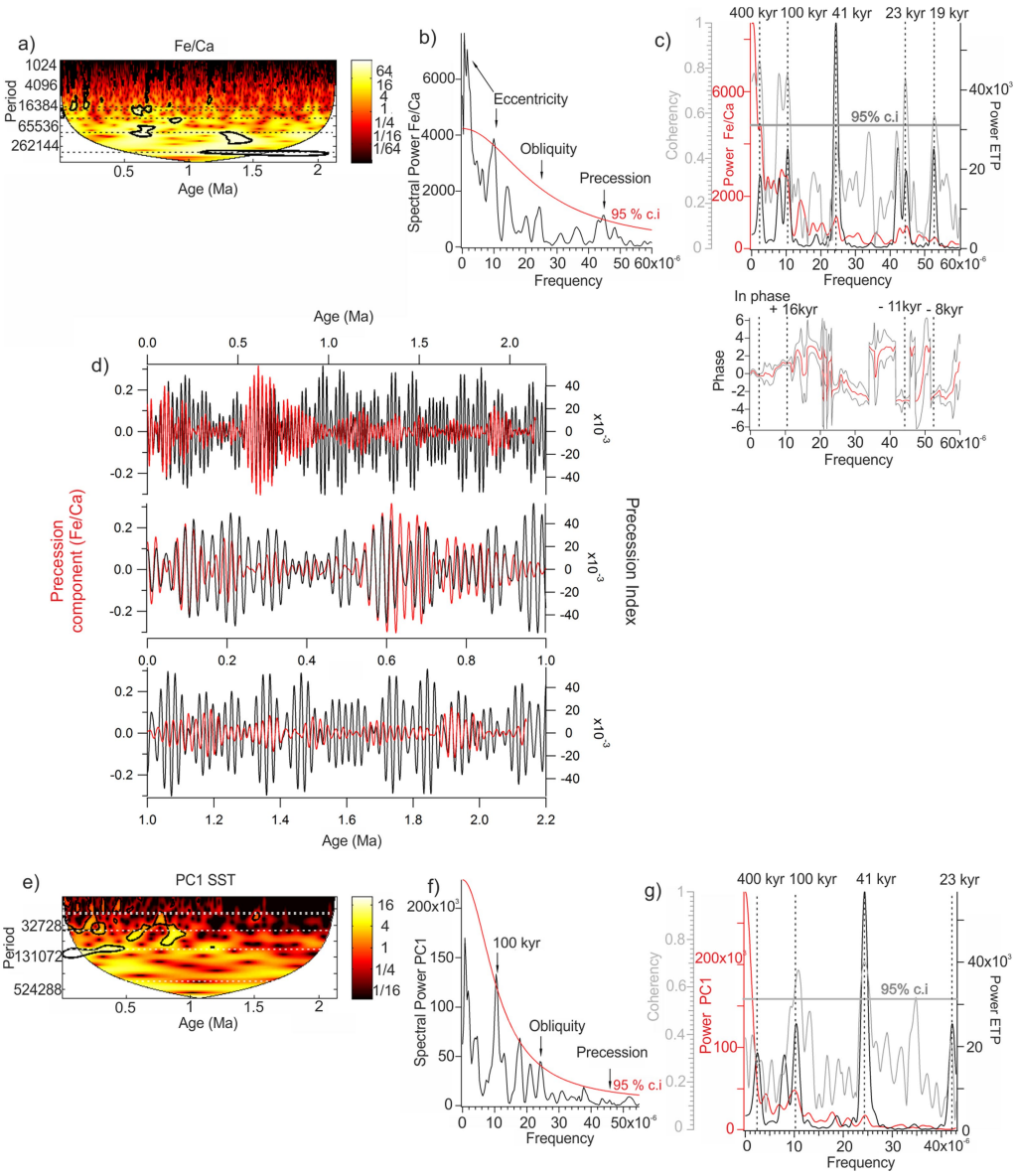

**Extended Data Fig. 3 | Relationship between Limpopo runoff, local Southern Hemisphere insolation and the $C_{31}$ *n*-alkane $\delta^{13}C$ record for the past 800 kyr. a**, Comparison between the ln(Fe/Ca) XRF signal and austral summer local insolation at 30° S[31]. **b**, Comparison between the ln(Fe/Ca) XRF signal and the brGDGT concentration in the sediment[15]. brGDGTs are commonly found in soil and can be attributed to Limpopo River runoff[15]. **c**, Comparison between the ln(Fe/Ca) XRF signal and the $C_{31}$ *n*-alkane $\delta^{13}C$ record[16]. An increased amount of Limpopo River discharge is associated with more $C_4$ plant input and an increase in austral summer insolation at 30° S. **d**, Comparison between inverted ln(Fe/Ca) XRF signal and the accumulation rate (AR) of $CaCO_3$ as a measure of biogenic carbonate. The ln(Fe/Ca) XRF record is not primarily controlled by dilution due to biological productivity ($R = 0.1$). A previous study of the past 0.8 Myr of core MD96-2048 interpreted shifts towards more-depleted $\delta^{13}C_{wax}$ as potentially reflecting more-humid conditions[16]. However, the anti-correlation between $\delta^{13}C_{wax}$ and $\delta D_{wax}$ values (Extended Data Fig. 4) in our study indicates that enriched $\delta^{13}C_{wax}$ values are associated with more-humid conditions. Because $C_4$ plants in the Limpopo catchment are dominant in the interior (Fig. 1), we propose that more-enriched $\delta^{13}C_{wax}$ values indicate a higher relative contribution from sources located farther upstream (more $C_4$ plants) during times of high runoff, compared to only downstream sources (more $C_3$ plants) during times of low discharge. In addition, humid conditions would have favoured the extension of sedge-rich vegetation (Cyperaceae, of which 20–60% are $C_4$ plants in this region[128]) in riverine swamps and floodplains along the river course, explaining the detected increase in Cyperaceae pollen at times of increased fluvial discharge (Fig. 2). Studies of sediments from the adjacent Zambezi catchment similarly suggest the extension of swampy sedge-rich vegetation—including $C_4$-Cyperaceae—when river discharge was high, and infer that more $C_4$ plant waxes are exported to the ocean when the flooding of floodplains occurs during rainfall maxima[10,129].

© 2018 Macmillan Publishers Limited, part of Springer Nature. All rights reserved.



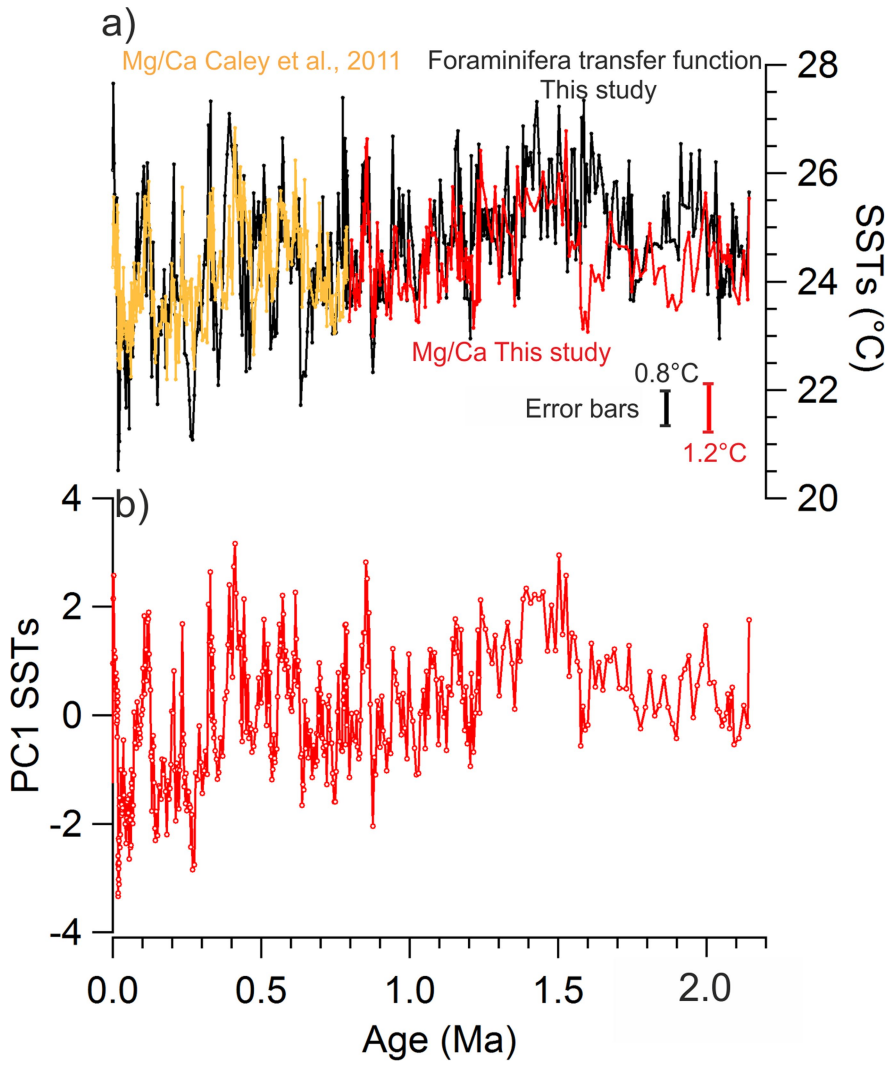

**Extended Data Fig. 4 | Relation between the $\delta^{13}C$ $C_{31}$ *n*-alkanes record and the δD $C_{31}$ *n*-alkanes record. a**, Correlation between the record of $\delta^{13}C$ $C_{31}$ *n*-alkanes and the record of δD $C_{31}$ *n*-alkanes, with or without vegetation and ice-volume correction (vc-ivf) over the past 2.14 Myr ($n = 19$ samples). An anti-correlation exists between the $\delta^{13}C$ and the δD signals of the $C_{31}$ *n*-alkanes. The $C_{31}$ *n*-alkane is used because it is the most abundant homologue in the samples. **b**, Raw $\delta^{13}C_{wax}$, $\delta D_{wax}$ data and $\delta D_{wax}$ adjusted for ice-volume and vegetation changes from core MD96-2048. Mean analytical uncertainties are indicated. Top, $\delta^{13}C_{wax}$ of the $C_{31}$ homologue (data from a previous study[16] in light green, and data from this study in dark green). Middle, $\delta D_{wax}$ of the $C_{31}$ homologue. Bottom, $\delta D_{wax}$ of the $C_{31}$ homologue adjusted for ice-volume changes (ivf) using a seawater $\delta^{18}O$ curve[125] and converting to δD assuming an increase of 7.2‰ at the Last Glacial Maximum. We use 7.2‰ because measurements of sediment pore water $\delta^{18}O$ and δD suggest that the glacial ocean δD increase has a mean value of 7.2‰[130]. We also adjusted the $\delta D_{wax}$ record for vegetation changes (vc) using published fractionation factors (−123‰ ± 31‰ for $C_3$ trees, −139‰ ± 27‰ for $C_4$ grasses[131]) and the $\delta^{13}C_{wax}$ signal following a previously published procedure[132]. End-member $\delta^{13}C_{wax}$ values used for $C_3$ and $C_4$ vegetation were −36‰ and −21.5‰, respectively[133]. The error ranges for the vegetation fractionation factors are very large[131]. They derive from the compilation of a global dataset from individual plants, which is not comparable to an ecosystem fractionation in a specific catchment (such in the Limpopo) that will fractionate with a much smaller uncertainty. However, as we do not know the exact fractionation factor in the Limpopo catchment and regard the uncertainties from the global compilation as unrealistic for a specific ecosystem we refrained from propagating this uncertainty into the vegetation corrections. The vegetation and ice-volume-adjusted $\delta D_{wax}$ record is very similar to the unadjusted record, highlighting the fact that the adjustments have a minor effect.

© 2018 Macmillan Publishers Limited, part of Springer Nature. All rights reserved.



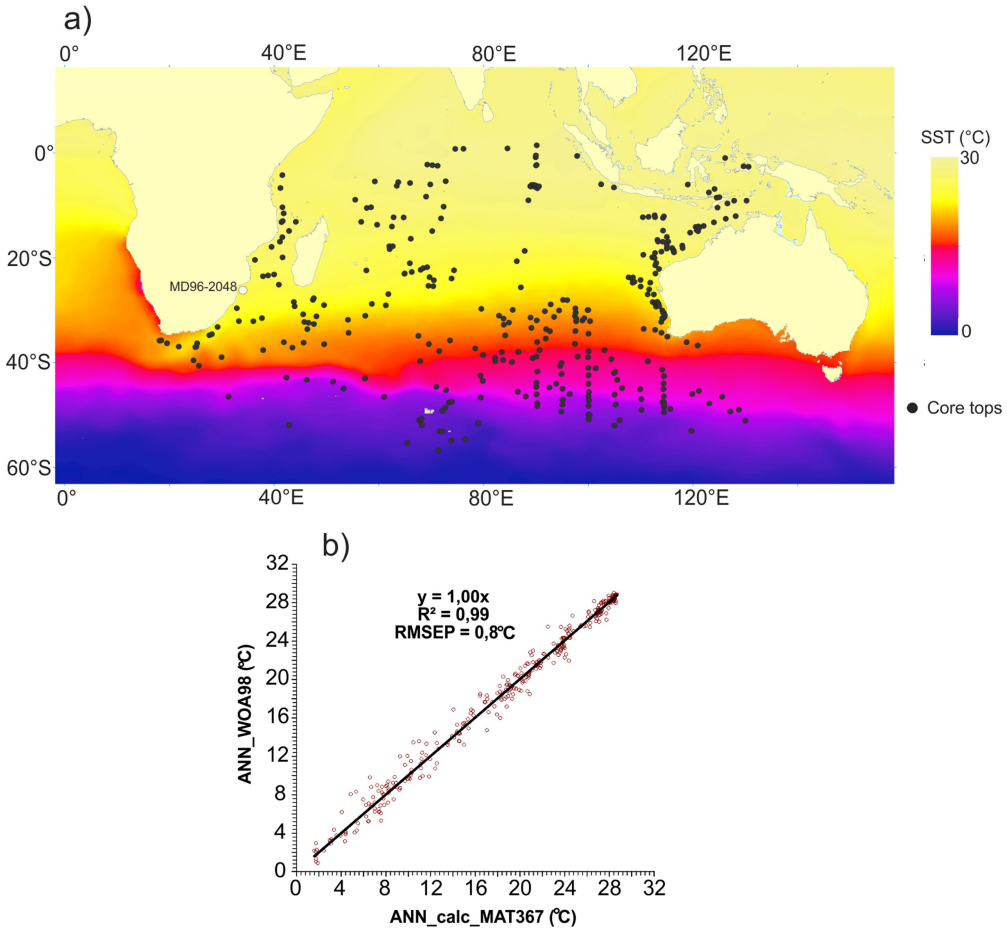

**Extended Data Fig. 5 | Statistical analyses for the ln(Fe/Ca) XRF record and PC1 SST record. a**, Spectral power for ln(Fe/Ca) by wavelet analysis realized with a previously published MatLab package[134]. The thick contour designates the 5% significance level against red noise. Dashed black lines indicate the variability at the precession, obliquity and eccentricity periods. **b**, Spectral analysis of ln(Fe/Ca) with REDFIT[135]. The red line shows the false-alarm level at the 95% confidence interval. Spectral peaks exceeding the false-alarm level can be considered significant[135]. **c**, Blackman–Tukey cross correlation between ln(Fe/Ca) XRF and eccentricity–tilt–precession (ETP) realized with the Analyseries software[37] for the past 2.14 Myr. ETP is constructed by normalizing and stacking eccentricity, tilt (obliquity) and negative precession to evaluate coherence and phase (timing) relative to orbital extremes[136]. The red curve shows the spectral power for ln(Fe/Ca) record. The black curve shows the spectral power for ETP. The coherency, which varies between 0 and 1, is represented by the grey curve and gives the interval within which the spectrum is significant. In our case, the non-zero coherency is higher than 0.55 and is significant at the 95% confidence interval (grey line). There are significant spectral peaks for eccentricity and precession but not for obliquity. The ln(Fe/Ca) XRF record and ETP are in phase at the 400-kyr period, the eccentricity leads by 16 kyr the ln(Fe/Ca) record at the 100-kyr period and the ln(Fe/Ca) record is in anti-phase with negative precession (in-phase with positive precession) at the 19- and 23-kyr periods. The three statistical analyses are consistent and indicate significant variability at the 400-, 100-, 23- and 19-kyr periods and insignificant variability at the 41-kyr period. **d**, Comparison between the precessional component of the ln(Fe/Ca) record (Gaussian filter frequency 1/23,000; bandwidth: $5 \times 10^{-6}$) obtained with the Analyseries software[37] and the precession index. Maxima of the ln(Fe/Ca) precession component are in phase with precession index maxima. The precession cycles in the ln(Fe/Ca) record appear particularly strong between about 0.9 and 0.6 Ma. **e**–**g**, The same statistical analyses as in **a**–**c**, respectively, but for the PC1 SST record. In **e**, dashed white lines indicate the variability at the precession, obliquity and eccentricity periods. The three statistical analyses indicate significant variability at the 100- and 41-kyr periods but not significant power for the 400-kyr and 23-kyr (precession) periods.

© 2018 Macmillan Publishers Limited, part of Springer Nature. All rights reserved.




**Extended Data Fig. 6 | Reconstruction using SST proxies for core MD96-2048 for the past 2.14 Myr. a**, Reconstruction of SST using two different methods: Mg/Ca reconstruction based on previous[15] and new data (Mg/Ca ratios were converted into temperature values by applying a previously established equation[40]) and foraminifera transfer function reconstruction using the modern analogue technique. Error bars represent the error on the calibrations[40] (Extended Data Fig. 7). **b**, Empirical orthogonal function analysis[47] of the two SST records for the past 2.14 Myr. PC1 contains 74% of the total variance for the past 2.14 Myr. Correlation between SST proxies and PC1 for the past 2.14 Myr is $R = 0.71$.

© 2018 Macmillan Publishers Limited, part of Springer Nature. All rights reserved.




**Extended Data Fig. 7 | Foraminifera transfer function used for core MD96-2048. a**, Location of the modern database, composed of 367 core tops from the south Indian Ocean[45] with present-day SST from the World Ocean Atlas (WOA) 2009[29]. **b**, Test for the modern database[45] yielding to a precision of 0.8 °C for the annual SST reconstructions. Modern hydrological parameters were obtained from the WOA (1998) database using a previously developed tool (http://www.geo.uni-bremen.de/geomod/Sonst/Staff/csn/woasample.html).

© 2018 Macmillan Publishers Limited, part of Springer Nature. All rights reserved.

## Extended Data Table 1 | Fossil finds, their location and associated ages.

| Site/area | Taxon | Stratigraphic unit | Methods | References | Estimated age of fossils |
|---|---|---|---|---|---|
| Malapa | *Australopithecus sediba* | | Biochronology | Dirks et al. (137) | From 1.95 Ma to 1.78 Ma |
| | | | U-Pb dating of flowstones: basal flowstone 1 at 2.026 ± 0.021 Ma; capping flowtone 2 at 2.048 ± 0.140 Ma | Pickering et al. (138) | From 2.188 Ma to 1.908 Ma |
| | | | Paleomagnetism : reversed polarity of flowstone 2, normal polarity of fossiliferous sediments | Pickering et al. (138) | Older than 1.95 Ma |
| | | | Synthesis of flowstone dating and paleomagnetism, 1.977 ± 0.002 Ma | Pickering et al. (138) | **From 1.979 to 1.975 Ma** |
| Cooper's D | *Paranthropus robustus* | | Biochronology | Berger et al. (139) | From 1.9 Ma to 1.6 Ma |
| | | | U-Pb dating of flowstones: basal flowstone CDD1 at 1.526 ± 0.088 Ma; younger flowstone CDD3, intercalated within fossiliferous sequence, at ca. 1.4 Ma (unprecise dating from 1.617 Ma to 1.413 Ma) | de Ruiter et al. (140) | **From 1.615 Ma to ca. 1.4 Ma (upper facies A and C) and younger than 1.4 Ma (lower facies A and C)** |
| Drimolen | *P. robustus* | Main Quarry Site | Biochronology | Keyser et al. (141) | From 2.0 Ma to 1.5 Ma |
| | | | Biochronology | Adams et al. (142) | **From 2.3 Ma to 1.6 Ma** |
| Kromdraai B | *P. robustus* | | Paleomagnetism of flowstone above Mb. 3, reverse polarity, older than normal Olduvai event (between 1.95 Ma and 1.78 Ma) | Thackeray et al. (143) | Older than 1. 95 Ma |
| | | | Alternative interpretation of paleomagnetic data from Thackeray et al. (2002) | Herries et al. (144); Herries & Adams (145) | From 1.78 Ma to 1.65 Ma |
| | | | Biochronology (including hominins) and paleomagnetism | Braga et al. (146) | Older than 2.18 Ma |
| Gondolin | *P. robustus* | GD2* | Biochronology and paleomagnetism (Olduvai normal polarity event of fossiliferous sediments) | Herries et al. (147) | **Slightly older than 1.78 Ma** |
| | *P. robustus* | GD1* | Biochronology and paleomagnetism (end of Olduvai normal polarity event in basal flowstone) | Adams et al. (148) | **Slightly younger than 1.78 Ma** |
| Sterkfontein | *P. robustus* | Mb. 5B "Oldowan infill" | Biochronology and lithic typology | Kuman & Clarke (106) | From 2.0 Ma to 1.7 Ma |
| | | Mb. 5B "Oldowan infill" | ESR on bovid teeth (seven dates): 1.328 ± 0.087 Ma; 1.315 ± 0.295 Ma; 1.185 ± 0.96 Ma; 1.265 ± 0.125 Ma; 1.620 ± 0.626 Ma; 0.965 ± 0.147 Ma; 1.24 ± 0.28 Ma; weighed mean = 1.32 ± 0.08 Ma | Curnoe (149) reinterpreted in Herries & Shaw (150) | From 1.40 Ma to 1.24 Ma |
| | | Mb. 5B "Oldowan infill" | Synthesis of ESR, U-Pb dating, paleomagnetism | Herries & Shaws (150) | From ca. 1.4 Ma to 1.2 Ma |
| | | Mb. 5B "Oldowan infill" | ESR on teeth from 0.965 ± 0.147 Ma to 1.328 ± 0.087 Ma ; weighted mean LU-ESR (excluding one tooth with large internal errors) = 1.223 ± 0.155 Ma | Curnoe (149) reinterpreted in Herries et al. (144) | from 1.415 Ma to 1.241 Ma (maximal); 1.112 Ma to 0.818 Ma (minimal); from 1.378 Ma to 1.223 (weighed mean) |
| | | Mb. 5B "Oldowan infill" | Cosmogenic burial ($^{26}$Al/$^{10}$Be) dating of a quartz manuport 2.18 ± 0.21 Ma | Granger et al. (151) | From 2.39 Ma to 1.97 Ma |
| | | Mb. 5B "Oldowan infill" | Synthesis of paleomagnetism, U-Pb dating, and ESR | Herries & Adams (145) | From 1.8 Ma to 1.5 Ma |
| | | Mb. 5B "Oldowan infill" | Synthesis of biochronology and ESR | Herries et al. (144) | From 1.38 Ma to 1.07 Ma |
| Swartkrans | *P. robustus* | Mb. 1 | Cosmogenic burial ($^{26}$Al/$^{10}$Be) dating on quartz 2.19 ± 0.08 Ma | Gibbon et al. (152) | From 2.27 Ma to 2.11 Ma |
| | | Mb. 1 | Cosmogenic burial ($^{26}$Al/$^{10}$Be) dating on quartz 1.80 ± 0.09 Ma | Gibbon et al. (152) | From 1.89 Ma to 1.71 Ma |
| | | Mb. 1 Hanging Remnant | Synthesis of U-Pb dating and ESR | Herries & Adams (145) | From 2.0 Ma to 1.8 Ma |
| | | Mb. 1 Hanging Remnant | ESR 2.02 ± 0.36 Ma; 2.07 ± 0.37 Ma; 1.68 ± 0.28 Ma; weighed mean = 1.96 Ma-1.70 Ma | Curnoe et al. (153) reinterpreted in Herries & Adams (145) | From 1.96 Ma to 1.70 Ma |
| | | Mb. 1 Hanging Remnant | ESR LU 1.39 ± 0.18 Ma | Herries et al. (144) | From 1.57 Ma to 1.21 Ma |
| | | Mb. 1 Hanging Remnant | ESR LU 1.92 ± 0.34 Ma | Herries et al. (144) | From 2.26 Ma to 1.58 Ma |
| | | Mb. 1 Hanging Remnant | ESR LU 1.21 ± 0.22 Ma | Herries et al. (144) | From 1.43 Ma to 0.99 Ma |
| | | Mb. 1 Lower Bank | U-Pb dating | Pickering et al. (154) | From 2.3 to 1.6 Ma |
| | | Mb. 1 | U-Pb dating on tooth 1.83 ± 1.38 Ma | Balter et al. (155) | From 3.21 to 0.45 Ma |
| | | Mb. 1 | Biochronology | Vrba (156, 157); Churcher & Watson (158) | ca. 1.7 Ma |
| | | Mb. 1 | U-Pb dating of basal flowstone 2.249 ± 0.077 Ma; top flowstone 1.706 ± 0.069 Ma ; closer to 2.0 Ma-1.8 Ma | Pickering et al. (154) | **Maximal range from 2.326 Ma to 1.637 Ma; minimal range from 2.172 Ma to 1.775 Ma** |
| Swartkrans | *P. robustus* | Mb. 2 | U-Pb dating on tooth 1.36 ± 0.29 Ma | Balter et al. (155) | **From 1.65 Ma to 1.07 Ma** |
| | | Mb. 2 | Biochronology | Vrba (156, 157); Churcher & Watson (158) | ca. 1.5 Ma |
| | | Mb. 2 | Relative position to Mb. 1 dated by U-Pb | Pickering et al. (154) | Younger than ca. 1.7 Ma |
| Swartkrans | *P. robustus* | Mb. 3 | Synthesis of U-Pb and ESR dating | Herries & Adams (145) | From 1.3 Ma to 0.6 Ma |
| | | Mb. 3 | Cosmogenic burial on quartz 0.96 ± 0.09 Ma | Gibbon et al. (152) | **From 1.05 Ma to 0.87 Ma** |
| | | Mb. 3 | ESR 0.65 ± 0.15 Ma | Cited in Herries and Adams (145) | From 0.8 Ma to 0.5 Ma |
| | | Mb. 3 | ESR 1.25 ± 0.09 Ma | Cited in Herries and Adams (145) | From 1.34 Ma to 1.16 Ma |
| | | Mb. 3 | U-Pb dating on tooth 0.83 ± 0.21 Ma | Balter et al. (155) | **From 1.04 Ma to 0.62 Ma** |
| | | Mb. 3 | Biochronology | Vrba (156, 157); Churcher & Watson (158) | ca. 1.0 Ma |
| | | Mb. 3 | ESR LU on two bovid teeth (four dates): 0.71 ± 0.90 Ma and 0.80 ± 015 Ma; 0.65 ± 0.15 Ma and 0.70 ± 0.11 Ma; mean = 0.72 ± 0.13 Ma | Blackwell (159) | From 0. 85 Ma to 0.59 Ma |
| | | Mb. 3 | Synthesis of biochronology and U-Pb | Herries et al. (144) | **From 1.04 Ma to 0.62 Ma** |

Data in this table were taken from refs[106,137–160]. We consider the ages in bold as the best estimate. The different dating methods did not yield any agreement regarding the age of Kromdraai B and Sterkfontein member 5 'Oldowan Infill'. Therefore, no estimate is highlighted in bold and the stratigraphic ranges are not shown in Fig. 3. We favour U–Pb dates and cosmogenic burial of quartz dates rather than biochronology or electron spin resonance, although dates produced using the latter two methods are generally not inconsistent with those produced using the other methods[145].*P. robustus* fossils were not found at Gondolin GD 1 and GD 2 but nearby ex situ. Given the close age between Gondolin GD 1 and GD 2 deposits and the limited extent of outcrops, it has been suggested[145] that the ex situ hominin specimens from Gondolin are dated to around 1.78 Ma.

© 2018 Macmillan Publishers Limited, part of Springer Nature. All rights reserved.

**Extended Data Table 2 | $\delta^{13}C$ enamel of hominin and contemporaneous herbivores and associated statistical parameters for different sites in the Limpopo catchment.**

| | | $\delta^{13}C$ (‰) | | | | | | | |
|---|---|---|---|---|---|---|---|---|---|
| Group | n | mean | median | mode(s) (2 ‰ interval) | SD | min | max | range | References |
| Cooper' D herbivores | 45 | -5,0 | -4,7 | int. 1: -12 to -10 ‰ ; int. 2: -2 to 0 ‰ | 3,9 | -11,5 | 2,5 | 14,0 | Steininger (101) |
| Gondolin GD2 herbivores | 21 | -2,9 | 1,0 | int. 1: -10 to -8 ‰ ; int. 2: 0 to 2 ‰ | 5,3 | -11,1 | 3,5 | 14,6 | Adams (102) |
| Swartkrans Mb. 1 herbivores | 56 | -4,8 | -3,8 | int. 1: -10 to -8 ‰ ; int. 2: -4 to 0 ‰ | 4,2 | -12,4 | 2,2 | 14,6 | Lee-Thorp et al. (99); Sponheimer et al. (83); Steininger (160) |
| Swartkrans Mb. 1 *Paranthropus* | 18 | -7,2 | -6,9 | int.: -8 to -6 ‰ | 1,2 | -9,6 | -4,9 | 4,7 | Lee-Thorp et al. (99); Sponheimer et al. (84, 83) |
| Swartkrans Mb. 1 *Homo* | 3 | -8,2 | -8,2 | int.: -10 to -8 ‰ | 0,9 | -9,2 | -7,1 | 2,1 | Lee-Thorp et al. (100) |
| Swartkrans Mb. 2 herbivores | 53 | -4,8 | -3,8 | int. 1: -12 to -10 ‰ ; int. 2: -4 to -2 ‰ | 4,4 | -12,9 | 2,2 | 15,1 | Lee-Thorp et al. (99, 100); Steininger (160) |
| Swartkrans Mb. 2 *Paranthropus* | 2 | -9,1 | -9,1 | | | -10,0 | -8,1 | 1,9 | Lee-Thorp et al. (99) |
| Swartkrans Mb. 3 herbivores | 12 | -3,8 | -2,2 | int.: -4 to 0 ‰ | 3,3 | -11,6 | -0,5 | 11,1 | Steininger (160) |
| Swartkrans Mb. 3 *Paranthropus* | 1 | -7,9 | -7,9 | | | -7,9 | -7,9 | | Lee-Thorp et al. (99) |

© 2018 Macmillan Publishers Limited, part of Springer Nature. All rights reserved.

# Article : Unveiling the anatomy of Termination 3 using water and air isotopes in the Dome C ice core, East Antarctica (Bréant et al., 2019)

Quaternary Science Reviews 211 (2019) 156–165

Contents lists available at ScienceDirect

Quaternary Science Reviews

journal homepage: www.elsevier.com/locate/quascirev

# Unveiling the anatomy of Termination 3 using water and air isotopes in the Dome C ice core, East Antarctica

Camille Bréant [a, b], Amaëlle Landais [a, *], Anaïs Orsi [a], Patricia Martinerie [b], Thomas Extier [a], Frédéric Prié [a], Barbara Stenni [c], Jean Jouzel [a], Valérie Masson-Delmotte [a], Markus Leuenberger [d]

[a] Laboratoire des Sciences Du Climat et de l'Environnement, LSCE/IPSL, CEA-CNRS-UVSQ, Université Paris-Saclay, Gif-sur-Yvette, France
[b] Univ. Grenoble Alpes, CNRS, IRD, Grenoble INP, IGE, Grenoble, 38000, France
[c] Department of Environmental Sciences, Informatics and Statistics, University Ca' Foscari of Venice, Venice, Italy
[d] Climate and Environmental Physics, Physics Institute and Oeschger Center for Climate Research, University of Bern, Sidlerstrasse, 5, 3012, Bern, Switzerland

ARTICLE INFO

*Article history:*
Received 12 December 2018
Received in revised form
12 March 2019
Accepted 19 March 2019

*Keywords:*
Termination 3
Deglaciations
Ice core
Water and air isotopes
Antarctic temperature
Firn densification model
Bipolar seesaw
Heinrich like events

ABSTRACT

Each glacial – interglacial transition of the Quaternary occurs in a different orbital context leading to various timing for the deglaciation and sequence of high vs low latitudes events. Termination 3, 250 kyears before present (ka), is an unusual deglaciation in the context of the last 9 deglaciations recorded in the old EPICA Dome C (EDC) Antarctic ice core: it exhibits a three-phase sequence, two warming phases separated by a small cooling, the last phase suggesting a particularly rapid temperature increase. We present here new high resolution $\delta^{15}N$ and deuterium excess (d-excess) data from the EDC ice core to provide a detailed temperature change estimate during this termination. Then, we combined the $\delta D$ and $\delta^{18}O$ to discuss the relationship between high and low latitude changes through the d-excess. We also provide the high vs low latitude sequence of events over this deglaciation without chronological uncertainty using low latitude ice core proxies. In agreement with previous studies based on speleothem analyses, we show that the first phase of Termination 3 (256–249 ka) is associated with small Heinrich like events linked to changes in ITCZ position, monsoon activity and teleconnections with Antarctica. In a context of minimum Northern Hemisphere insolation, this leads to a rather strong Antarctic warming, as observed in the $\delta^{15}N$ record in contrast to the relatively small $\delta D$ increase. The second warming phase occurs during the rise of the Northern hemisphere insolation, with a large Heinrich like event leading to the characteristic Antarctic warming observed in the $\delta^{15}N$ and $\delta D$ increase as for the more recent terminations.

© 2019 Elsevier Ltd. All rights reserved.

## 1. Introduction

The climate of the Quaternary is characterized by the succession of glacial and interglacial periods, with a detailed description of their characteristics thanks to a diversity of proxy records from oceanic, terrestrial and glacial archives, and dating methods (Spratt and Lisiecki, 2016; Jouzel et al., 2007; Tzedakis et al., 2017). The occurrence of glacial and interglacial periods is generally attributed to the driving effect of changes in the seasonal and latitudinal distribution of incoming solar radiation, due to changes in the Earth's astronomical characteristics (Milankovitch, 1941), as well as key Earth system feedbacks, involving ice sheet and carbon cycle dynamics (Paillard and Parrenin, 2004).

The exact mechanisms at play during glacial terminations remain however elusive, and explanations for the timing of terminations, the different magnitudes of glacial-interglacial transitions, and the interplay between multi-millennial trends and abrupt events are still incomplete. The accurate documentation of multiple terminations, taking place under different orbital contexts, is one key line of evidence (Yin and Berger, 2012; PAGES, 2016; Tzedakis et al., 2017). The important role of obliquity is directly visible on the 40 kyears (hereafter ka) periodicity of glacial – interglacial cycles occurring before the mid-Pleistocene transition and can also be dominant in the younger terminations (Huybers,

* Corresponding author.
*E-mail address:* amaelle.landais@lsce.ipsl.fr (A. Landais).

https://doi.org/10.1016/j.quascirev.2019.03.025
0277-3791/© 2019 Elsevier Ltd. All rights reserved.

2007). In parallel, a recent study using East Asian speleothems showed that deglaciations of the last 650 ka occur every 4 or 5 precession cycles, confirming the important role of precession (Cheng et al., 2016). The unfolding (or not) of a deglaciation during a precession cycle has been suggested to be related to the glacial state, such as the initial ice volume (Paillard, 1998), or integrated summer insolation (Tzedakis et al., 2017). The concentration of atmospheric greenhouse gases also plays a major role during deglaciations. Several studies have shown, within age scale uncertainties, that atmospheric $CO_2$ concentration and East Antarctic temperature started to increase synchronously at the beginning of the last two deglaciations (Pedro et al., 2012; Landais et al., 2013; Parrenin et al., 2013). The amplitude of simulated global temperature changes over deglaciations has been shown to depend jointly on the amplitude of $CO_2$ concentration increase and insolation, namely obliquity for the Southern Hemisphere and precession for the Northern Hemisphere (Yin and Berger, 2012).

The Antarctic EPICA Dome C (EDC) ice core provides very high resolution records encompassing changes in local climate (with a resolution of 20–50 years back to 430 ka) as well as changes in atmospheric composition and greenhouse gases concentrations of the last 9 terminations (EPICA Community Members, 2004; Jouzel et al., 2007; Loulergue et al., 2008; Lüthi et al., 2008; Bereiter et al., 2015). Together with the sea level record obtained from marine sediments (e.g. Röhling et al., 2014; Spratt and Lisiecki, 2016), the δD record from the EDC ice core shows that the last 5 terminations (i.e. over the last 430 ka) are generally of higher amplitude than the terminations over the period 800–430 ka. Each termination still displays different characteristics (amplitude, rate of change) that were discussed in previous studies (Röthlisberger et al., 2008; PAGES, 2016). In this context, Termination 3 seems associated with the most rapid temperature increase (increase of EDC δD at 14.8‰.ka$^{-1}$ for the period 251.5 to 247.8 ka – Fig. 1) making it a pertinent benchmark for the study of climate change on relatively short timescales.

Marine records show that terminations of at least the last 500 ka are systematically associated with the occurrence of iceberg discharges from the Laurentide ice sheet recorded as occurrence of Heinrich like events in the IRD (Ice Rafted Debris characterized by a large amount of detrital quartz in the sediment) in Atlantic marine cores (McManus et al., 1999; Hodell et al., 2008). In parallel, East Asian speleothems highlight systematic Weak Monsoon Intervals (WMI) occurring during the terminations synchronously with Heinrich like events and a rise in Northern Hemisphere summer insolation (Cheng et al., 2009, 2016). Mechanistic links exist between Heinrich like events and WMI: Heinrich like events are occurring over the same millennial periods as southward shifts of atmospheric circulation in the Northern Hemisphere and in particular with southward shifts of tropical rain belts (Chiang and Bitz, 2005). The Heinrich like events and associated lower latitudes climate changes are hence fully embedded in the dynamic of terminations (e.g. Wolff et al., 2009; Denton et al., 2010). Again, Termination 3 stands out being associated with 3 IRD peaks and 3 WMI while other terminations over the last 450 ka are associated with only 1 or 2 IRD peaks (Jiang et al., 2010; Obrochta et al., 2014, Fig. 1). The unusual sequence observed over Termination 3 between millennial events and polar temperature increase makes the study of Termination 3 key to understand the interactions between millennial events (Heinrich Stadials, WMI) and orbital change (long term increase in $CO_2$ and polar temperature).

Only few studies provided up to centennial resolution data for Termination 3, all of them highlighting millennial scale variability during the end of marine isotopic stage 8 and Termination 3, both in the Northern and in the Southern Hemispheres (i.e. between ~260 and 245 ka) (Pahnke et al., 2003; Cheng et al., 2009; Jiang et al., 2010; Pérez-Mejías et al., 2017). In Antarctic deep ice cores,

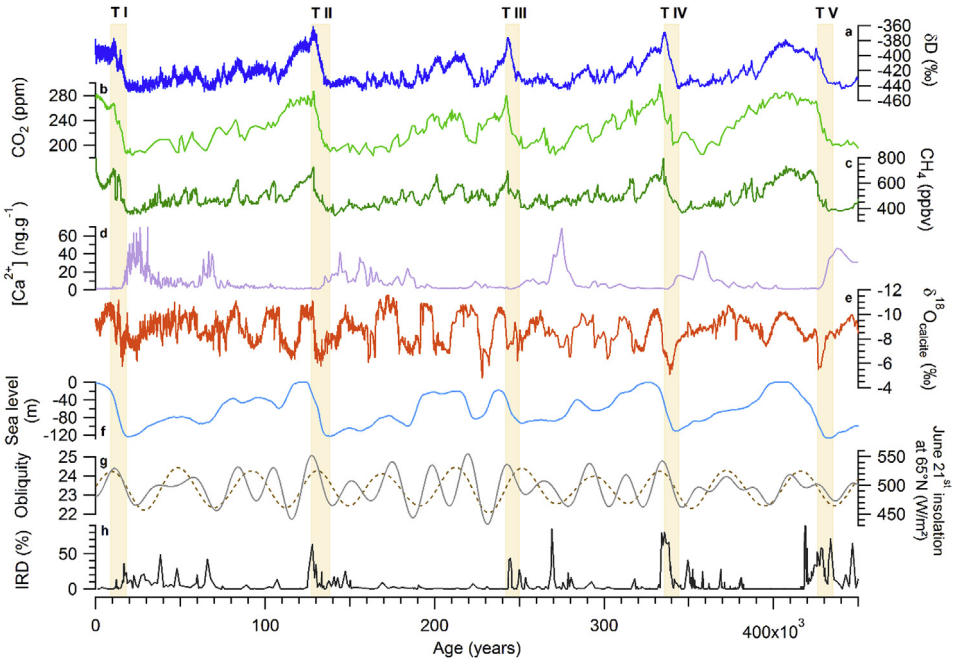



**Fig. 1.** Climatic variations over the last 450 ka. a: δD record from EDC (Jouzel et al., 2007). b: Antarctic $CO_2$ from EDC and Vostok (Lüthi et al., 2008). c: East Antarctic $CH_4$ record (Loulergue et al., 2008) d: $Ca^{2+}$ concentration in the EDC ice core (Lambert et al., 2012). e: $\delta^{18}O_{calcite}$ from East Asian speleothems (Cheng et al., 2016). f: Global sea level change estimate (Bintanja et al., 2005). g: June 21st insolation at 65°N in solid line and obliquity in dotted line (Laskar et al., 2004). h: IRD percentage at site ODP980 (McManus et al., 1999). The timing of Termination 5 (TV) to Termination 1 (TI) is indicated by yellow bars. The 4 upper records are issued from the same ice core, hence with a maximum relative uncertainty of 1 ka on the chronology. On opposite, the 4 lower curves are all on their respective timescales (absolute timescale for obliquity and precession; timescale of each archive for the others) so that uncertainties of up to 6 ka can be attached to the comparison of the different records. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the Web version of this article.)

two warming phases have been identified within Termination 3 (e.g. Watanabe et al., 2003; Röthlisberger et al., 2008), the first one being associated with a relatively slow δD increase (5.18‰.ka$^{-1}$), interpreted to reflect a gradual warming, before the fastest δD rise interpreted to reflect a fast warming.

Here, we focus on Termination 3 using new datasets from the EDC ice core. We combine water isotopes (published δD and new $\delta^{18}O$ data) with new $\delta^{15}N$ of $N_2$ trapped in air bubbles, thereafter $\delta^{15}N$. The combination of water isotopes, δD and $\delta^{18}O$ already published over the last 2 deglaciations at Dome C (Stenni et al., 2001, 2010; Masson-Delmotte et al., 2010), can indeed be very useful to discuss the relationship between local ($\delta^{18}O$ and δD at first order) and lower latitudes climatic changes (deuterium excess or d-excess defined as δD - 8*$\delta^{18}O$) (e.g. Vimeux et al., 1999; Uemura et al., 2018). $\delta^{15}N$ is a proxy of firn processes driven by changes in local accumulation and temperature (Severinghaus et al., 1998) providing an indicator of Antarctic climate change in the gas phase of the ice core records (Caillon et al., 2003; Landais et al., 2013). We briefly describe our methods, and discuss our results, including the reconstruction of site and source temperatures from water stable isotopes, and the drivers of $\delta^{15}N$ at EDC over Termination 3. We finally compare to previous records from other archives (marine sediment cores and speleothems) and discuss the sequence of events encompassing changes in Antarctic and global climate over Termination 3.

## 2. New data

### 2.1. EPICA Dome C (EDC) $\delta^{18}O$ and d-excess

Water $\delta^{18}O$ measurements of the Dome C ice core were performed along 55 cm samples at the Department of Earth Sciences of University of Parma and at the Department of Geological, Environmental and Marine Sciences of University of Trieste using a $CO_2$/water equilibration method (Meyer et al., 2000). These new measurements complete the 800 ka δD records of the EDC ice core previously obtained at Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement and published in (Jouzel et al., 2007). Home water standards were exchanged between the three institutes during the measurement period to ensure the proper comparison of the δD and $\delta^{18}O$ data series. d-excess was then calculated from the combined measurements of δD and $\delta^{18}O$ with a resulting accuracy of 1‰.

The δD and d-excess series presented on section 3 cover the time period 230 to 270 ka with an uncertainty of about 3 ka on the AICC2012 timescale (Bazin et al., 2013). This period corresponds to the depth range 2232–2381 m and extends the EDC $\delta^{18}O$ and d-excess records over the last 140 ka (Stenni et al., 2010).

As already noted, the δD record shows a two-step increase for Termination 3: a first increase of 15‰ occurs from 253 to 249 ka (phase III-a, Fig. 2). The same pattern was also observed on the other deep ice cores covering Termination 3 on which water isotopes have been measured (SOM – Fig. S1). d-excess shows a parallel increase to δD over phase III-a. d-excess and δD are then anti-correlated during the major δD increase of Termination 3 between 248 and 243 ka (phase III-b, Fig. 2). Finally, d-excess reaches a maximum during the glacial inception, i.e. when δD is decreasing from 243 to 230 ka (Fig. 2). This d-excess signal during glacial inceptions is a classical pattern also observed for other glacial inceptions in Antarctic ice cores (Vimeux et al., 1999; Stenni et al., 2010; Uemura et al., 2018): d-excess increases while δD decreases.

### 2.2. EDC $\delta^{15}N$

Three series of measurements of $\delta^{15}N$ of $N_2$ have been performed along Termination 3 on the EDC ice core (Fig. 3):

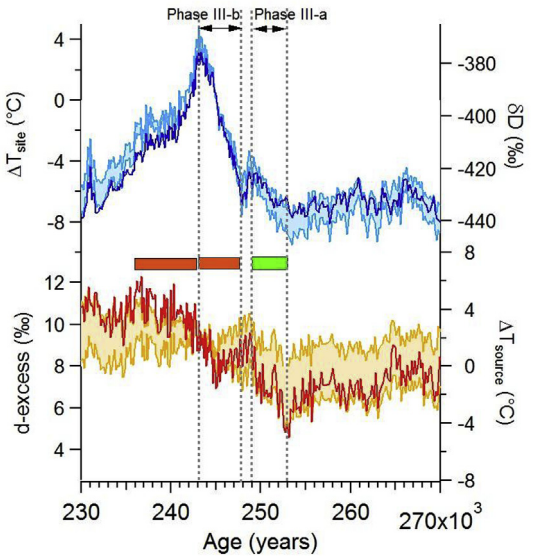



**Fig. 2.** δD (in dark blue) and d-excess (in red) measurements on Dome C ice core with highlights on the phases of correlation (green rectangle) and anti-correlation (red rectangles) between these two proxies over the Termination 3. The $\Delta T_{site}$ and $\Delta T_{source}$ reconstructions within their uncertainty ranges are displayed in shaded areas. The vertical shaded lines display the limits of phase III-a and phase III-b. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the Web version of this article.)

1 50 duplicate samples (2262–2352 m depth) were measured in 2008 at Princeton University using a semi-automated wet extraction line with associated uncertainty of 7 ppm (Dreyfus et al., 2010).
2 48 duplicate samples (2268–2348 m depth) were measured in 2013 at LSCE using a semi-automated wet extraction line with associated uncertainty of 10 ppm (method in Capron et al., 2010).
3 172 duplicate samples (1904–2580 m depth) were measured in 2015–2016 at LSCE using the same semi-automated wet extraction line and similar associated uncertainty of 10 ppm.

$\delta^{15}N$ measurements are expressed with respect to $\delta^{15}N$ of atmospheric air, with expected similar values at Princeton University and at LSCE. Still, an average shift of +0.007‰ has been found in the original Princeton values compared to the LSCE data. The source of this offset is unknown. We thus follow the correction of Dreyfus et al. (2010) and subtracted 0.007‰ from all Princeton data in the set of data presented here.

As already shown in Dreyfus et al. (2010), $\delta^{15}N$ record shows a clear and strong increase from 2350 m to 2310 m depth probably corresponding to Termination 3 according to the AICC2012 gas age timescale for EDC (Fig. 3). After a $\delta^{15}N$ maximum at 2308 m probably associated with the end of Termination 3, $\delta^{15}N$ shows a clear decrease from 2308 to 2250 m. Deeper in the core, the $\delta^{15}N$ record is more scattered, showing a general decreasing tendency from 2580 m to 2350 m with some fluctuations over the depth range 2480 m–2350 m (Fig. 3).

The main $\delta^{15}N$ increase corresponding to Termination 3 on the EDC core was also observed on the Vostok $\delta^{40}Ar$ data over the same termination (Caillon et al., 2003), $\delta^{40}Ar$ being assumed to be related to physical fractionations in the firn before bubble enclosure as for $\delta^{15}N$ (see next section). Finally, $\delta^{15}N$ deglacial increase of ~0.15‰ was also clearly observed over the other terminations at EDC (Dreyfus et al., 2010, SOM – Figs. S2 and S3).

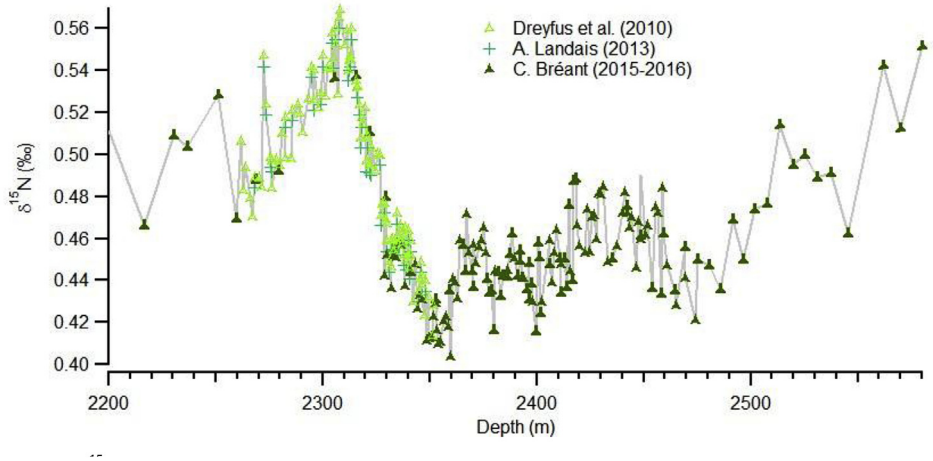



**Fig. 3.** $\delta^{15}$N data for Termination 3 of Dome C ice core using the correction for data measured in Princeton vs LSCE proposed by Dreyfus et al. (2010).

## 3. Interpretation of the d-excess and $\delta^{15}$N signals

### 3.1. Interpretation of water stable isotopes: site and source temperature

Records of d-excess in Antarctic polar ice cores have classically been used to infer changes in moisture sources/evaporation conditions following the studies of Vimeux et al. (1999), Stenni et al. (2001), Vimeux et al. (2001), Masson-Delmotte et al. (2010), Markle et al. (2016) and Uemura et al. (2018). In surface water vapour, at synoptic timescales, d-excess variations are mainly influenced by variations in relative humidity controlling the relative influence of kinetic and equilibrium effects (Merlivat and Jouzel, 1979; Gat and Matsui, 1991). This influence is however muted when looking at the d-excess evolution in polar regions and on longer timescales. Moreover d-excess is strongly modified during distillation from the source to the polar precipitation regions through two effects: (1) the dependence of equilibrium fractionation coefficient at condensation with temperature and (2) the decrease of the slope δD vs $\delta^{18}$O when both δD and $\delta^{18}$O decrease toward very negative values (e.g. Jouzel and Merlivat, 1984; Touzeau et al., 2016). This effect becomes predominant in very cold regions of East Antarctica, for extremely low δD and $\delta^{18}$O. In these circumstances, local cooling leads to a d-excess increase not linked to moisture source characteristics (Uemura et al., 2012). Alternative definitions of d-excess using a logarithm formulation have thus been proposed to circumvent this site temperature signal (e.g. Uemura et al., 2012; Markle et al., 2016; Dütsch et al., 2017). However, the ln(δD+1) vs ln($\delta^{18}$O+1) slope is not as constant as the $\delta^{18}$O vs δD slope for large $\delta^{18}$O − δD ranges, hence leading to variable slope as a function of $\delta^{18}$O values when defining the excess with a logarithm definition. Here, we made the choice to show the d-excess curves keeping the classical d-excess definition. This choice of definition does not affect the reconstructions displayed below.

Following earlier studies of EDC d-excess, the combination of δD and d-excess can be used to reconstruct the local temperature ($T_{site}$) and the moisture source temperature ($T_{source}$). The moisture sources for precipitation at Dome C are located mainly in the temperate area of the Indian ocean (Masson-Delmotte et al., 2010). Here, we use the values for the $T_{site}$ and $T_{source}$ reconstructions for the EDC site given by Stenni et al. (2010) based on the use of a theoretical, mixed cloud isotopic model and the assumption that relative humidity is constant:

$$\Delta T_{site} = 0.16 \times \Delta\delta D_{corr} + 0.44 \times \Delta d - excess_{corr} \quad (1)$$

$$\Delta T_{source} = 0.06 \times \Delta\delta D_{corr} + 0.93 \times \Delta d - excess_{corr} \quad (2)$$

The $\Delta$ symbol stands for the difference at each level between the measured or reconstructed parameter and the average of this parameter for the recent period (we performed the average over the last 2000 years for the reference to "the recent period"). $\Delta dD_{corr}$ and $\Delta d - excess_{corr}$ were calculated following Jouzel et al. (2003) using the $\delta^{18}O_{sea\ water}$ obtained in Bintanja et al. (2005) synchronized on EDC timescale (Parrenin et al., 2007):

$$\delta D_{corr} = \left[\delta D - 8 \times \delta^{18}O_{sea\ water} \times \left(1 + \frac{\delta D}{1000}\right)\right] \div \left[1 + 8 \times \left(\frac{\delta^{18}O_{sea\ water}}{1000}\right)\right] \quad (3)$$

$$\delta^{18}O_{corr} = \left[\delta^{18}O - \delta^{18}O_{sea\ water} \times \left(1 + \frac{\delta^{18}O}{1000}\right)\right] \div \left[1 + \left(\frac{\delta^{18}O_{sea\ water}}{1000}\right)\right] \quad (4)$$

$$\Delta\delta D_{corr} = \delta D_{corr} - \delta D_{average} \quad (5)$$

$$\Delta\delta^{18}O_{corr} = \delta^{18}O_{corr} - \delta^{18}O_{average} \quad (6)$$

$$\Delta d - excess_{corr} = \Delta\delta D_{corr} - 8 \times \Delta\delta^{18}O_{corr} \quad (7)$$

These temperature reconstructions are based on the use of a mixed cloud isotopic model (Ciais and Jouzel, 1994) describing the evolution of water isotopic composition along a trajectory toward Antarctica and run over a large range of $T_{site}$ and $T_{source}$. Different tunings of this model can however lead to significant variations in the coefficients of equations (1) and (2). Alternative reconstructions have thus been proposed (e.g. Uemura et al., 2012 for a complete study) enabling one to provide the uncertainty range to the $T_{site}$ and $T_{source}$ reconstructions displayed on Fig. 2. These alternative reconstructions do not affect the shape of the reconstructed $T_{site}$ and $T_{source}$ variations but the amplitudes of variations over Termination

3 are significantly affected, especially for the $T_{source}$ reconstruction (Fig. 2).

The $T_{site}$ and $T_{source}$ reconstructions for Dome C are presented on Fig. 2. While the evolution of $T_{site}$ is mainly parallel to the δD evolution and share many similarities with it, some differences are observed. Over phase III-a, $T_{site}$ displays an increase equivalent to 2/5 of the main $T_{site}$ increase over Termination 3 occurring during phase III-b. Over the same period (phase III-a, 253 to 249 ka), δD only shows an increase of 1/4 of the main δD increase over phase III-b. The fact that the increase of EDC δD over phase 1 of Termination 3 is relatively smaller than the corresponding $T_{site}$ increase is probably because δD is not only sensitive to the local temperature but rather to the temperature gradient between the evaporative site and the precipitation site (i.e. between the first and final point of the distillation trajectory). The $T_{source}$ reconstruction based on d-excess data shows an increase over phase III-a on Termination 3, in parallel to the $T_{site}$ increase (Fig. 2). Since both $T_{site}$ and $T_{source}$ increase by similar amplitude, we expect that the result is the small δD signal observed on the EDC record. Over phase III-b, $T_{source}$ is not varying much (slight decrease) so that the dynamic of δD increase is directly reflected in the $T_{site}$ increase. $T_{source}$ evolution is very different from the $T_{site}$ evolution over glacial inception: it follows the d-excess signal which remains at a relatively high level. This signal was already largely discussed in Vimeux et al. (1999) and following studies: it reflects the fact that the temperature of moisture source remains high during glacial inception favoring evaporation in temperate latitudes and hence significant transport of moisture toward polar area to contribute to the growing of glacial ice sheets.

The $T_{site}$ and δD signals exhibit some differences during the glacial inception with the $T_{site}$ signal decreasing less rapidly than the δD signal. While this relatively slower decrease of $T_{site}$ compared to δD is also observed for other glacial inceptions and on the Vostok and Dome C ice cores (Vimeux et al., 2001; Stenni et al., 2010; SOM – Fig. S1), the differences in the $T_{site}$ vs δD behaviours observed over Termination 3 is less obvious for the other terminations. Finally, note that the δD vs $T_{site}$ differences are much less visible at the Dome F site, the δD signal at Dome F sharing more variability with the $T_{site}$ signal than at Dome C or Vostok (SOM – Table T1).

### 3.2. Interpretation of the $\delta^{15}N$ signal

In a previous study (Bréant et al., 2017), we summarized the different possible influences on the $\delta^{15}N$ in Antarctic ice core. $\delta^{15}N$ is directly related to the depth of the firn diffusive zone through gravitational fractionation as $\delta^{15}N_{grav} = gz/RT$ at first order approximation with z the depth of the diffusive zone, g the gravity acceleration constant, R the gas constant and T the mean temperature. Note that a second order thermal effect is also expected in Antarctica when temperature gradients occur in the firn following the equation $\delta^{15}N_{therm} = \Omega \times \Delta T$ with Ω the thermal fractionation coefficient for stable isotopes of nitrogen (Grachev and Severinghaus, 2003) and ΔT the temperature gradient between the top and the bottom of the firn. The depth of the firn diffusive zone is the difference between the lock-in depth (LID) at the bottom of the firn and the depth of the convective zone at the top of the firn. Previous studies based on dating constraints have shown that the existence of large convective zones at Dome C during glacial periods is highly improbable (Parrenin et al., 2012; Bazin et al., 2013; Veres et al., 2013) so that we concentrate here on the different influences on the firn LID.

The firn LID increases with increasing accumulation rate and decreases with increasing temperature (increasing metamorphism speed). On the timescale of a deglaciation, both temperature and accumulation increase so that LID is influenced by two opposite processes: LID decreases through temperature increase and LID increases through accumulation increase. In addition, it has been suggested that the concentration of impurities (taken into account through the $Ca^{2+}$ concentration for this purpose) can increase the densification speed in the firn (Hörhold et al., 2012; Freitag et al., 2013). Since impurity concentration, as indicated by EDC calcium record (Röthlisberger et al., 2008), systematically decreases during deglaciation, it should lead to an increase of LID and hence $\delta^{15}N$. While these three effects can be accounted for in firn densification models (Freitag et al., 2013; Bréant et al., 2017), reproducing the evolution of $\delta^{15}N$ over deglaciations in cold sites of East Antarctica with firn densification models has long been a challenge (Sowers et al., 1992; Landais et al., 2006; Capron et al., 2013; Bréant et al., 2017). In general, modeled $\delta^{15}N$ systematically decreases over terminations, while ice core data indicate an increase of $\delta^{15}N$ during these periods. The temperature effect is thus dominating the LID and $\delta^{15}N$ evolutions in the model at very cold sites, a feature which is not supported by ice core records. In a recent firn model development (new IGE – previously LGGE – firn model), we resolved the model-data mismatch by assuming that the creeping mechanism is different at very low temperature (around −60 °C) from the creeping mechanism at higher temperature (around −30 °C) (Bréant et al., 2017), a behavior supported by evidence from hot ceramic sintering (Wilkinson and Ashby, 1975; Bernache-Assolant, 2005).

Despite these firn model improvements, disentangling the effects of temperature, accumulation rate and impurity concentration on the $\delta^{15}N$ evolution over deglaciations is challenging due to the common co-variations of these parameters (SOM – Fig. S2). Indeed, the reconstruction of snow accumulation in ice cores from the East Antarctic plateau is based at first order on its relationship to local temperature and inferred from water stable isotopic records (e.g. Parrenin et al., 2004). While this assumption is challenged in coastal areas for centennial and millennial variability (e.g. Fudge et al., 2016), the thermodynamic effect dominates at glacial to interglacial transitions. This reconstruction can then be further refined using dated horizons and thinning scenarios from glaciological models as done for example during the construction of the coherent ice core chronology AICC2012 (Bazin et al., 2013; Veres et al., 2013). However, even with the constraints inferred from the dated horizons and thinning scenarios, the accumulation rate increases significantly in parallel to δD and $T_{site}$ over deglaciations in Antarctica (SOM – Fig. S2). In contrast, the link between temperature, accumulation rate and $Ca^{2+}$ is not always as strong. In particular, Termination 3 displays the strongest $Ca^{2+}$ concentration decrease observed 20 to 30 ka before the main accumulation rate and temperature increase, themselves parallel to the δD signal (Fig. 1, SOM – Fig. S2). This makes Termination 3 a unique deglaciation to disentangle the influences of impurity and temperature (accumulation).

EDC $\delta^{15}N$ increase over Termination 3 is in two steps, the first one (+0.06‰) between 256 and 248 ka and the second one (+0.11‰) between 248 and 243 ka. These increases occur more than 15 ka later than the main impurity decrease, i.e. a temporal lag much larger than the maximum 1 ka uncertainty in the relative chronology between gas age (on which $\delta^{15}N$ is displayed) and ice age (on which $Ca^{2+}$ and δD are displayed) (Bazin et al., 2013; Veres et al., 2013). Only a small decrease in $\delta^{15}N$ (less than 0.06‰) is observed around 270 ka corresponding to the major $Ca^{2+}$ concentration peak (Fig. 4) with no significant changes in temperature and accumulation as inferred from the δD record. All together, these observations suggest that impurity concentration is not the major driver of the $\delta^{15}N$ evolution over Termination 3.

In order to address this result more quantitatively, we have run

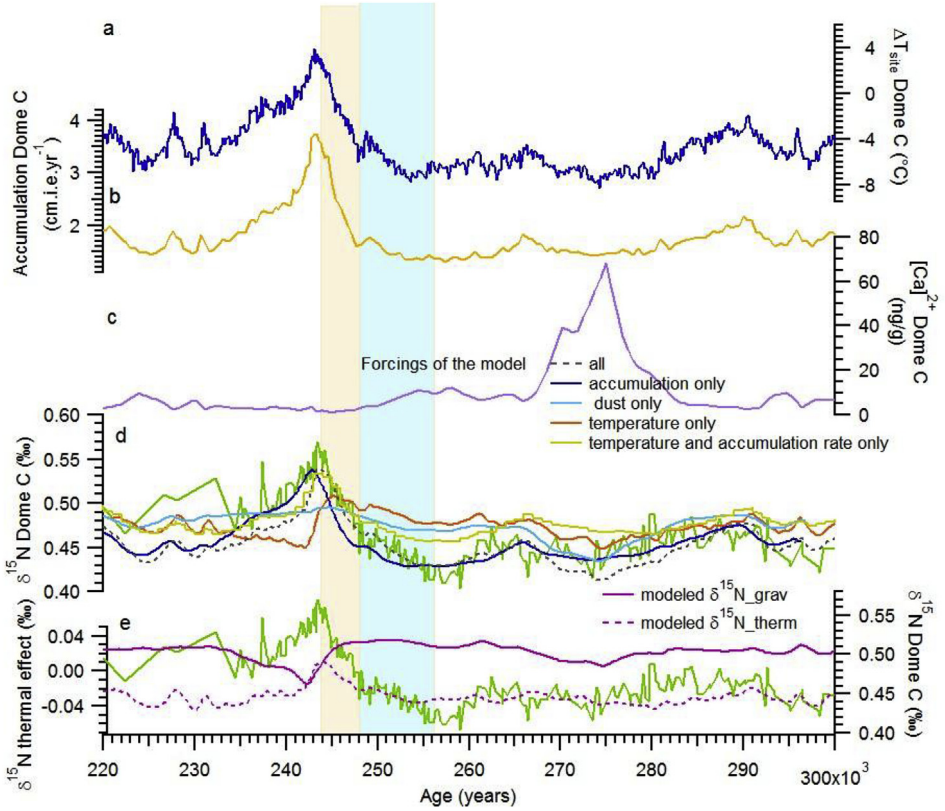



**Fig. 4.** Comparison between EDC $\delta^{15}$N data with $\delta^{15}$N simulations run with the IGE firn densification model. a: scenario for temperature forcing (difference with present-day surface temperature). b: accumulation rate scenario (from AICC2012 – the modeled $\delta^{15}$N is not significantly modified when using the accumulation rate reconstructed from water isotopes as in Parrenin et al., 2007). c: $Ca^{2+}$ concentration used as input scenario for the firn densification model. d: comparison of measured (green) and modeled $\delta^{15}$N for different configurations of the IGE firn densification model (all forcing in dark blue dashed line, only accumulation forcing in dark blue, only dust forcing in light blue, only temperature forcing in red, temperature and accumulation rate forcing in yellow). e: the purple lines on the lower panel show the outputs of the IGE model forced by temperature only for both its gravitational part (solid line, right y-axis) and its thermal part (dashed line, left y-axis). The blue rectangle indicates phase 1 and the yellow rectangle indicates phase 2. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the Web version of this article.)

the IGE firn densification model equipped with impurity effect parameterization (Bréant et al., 2017) over the sequence of Termination 3 making the assumption that only impurity concentration is varying, hence keeping constant average values for temperature and accumulation rate. At EDC where the $\delta^{15}$N record is the longest, the model produces a $\delta^{15}$N decrease of 0.04‰ (compared to slightly less than 0.06‰ in the measurements) over the major impurity concentration peak at 270 ka. Over the Termination 3 period where the main $\delta^{15}$N increase is observed (256–244 ka), the model forced by impurity concentration only simulates a +0.03‰ $\delta^{15}$N increase while the measured $\delta^{15}$N increases by 0.16‰ (Fig. 4). The impurity effect is hence not able to explain the $\delta^{15}$N increase corresponding to Termination 3.

Most of the $\delta^{15}$N increase over Termination 3 should thus be explained by changes in accumulation rate and temperature. Increase in accumulation rate leads to increase in LID and then in $\delta^{15}$N through gravitational fractionation. At first order, the increase in $\delta^{15}$N due to accumulation is thus expected to be parallel with the increase in δD. To check such an hypothesis, we have simulated the $\delta^{15}$N evolution over the Termination 3 using the IGE firn densification model (Bréant et al., 2017) forced by the AICC2012-derived accumulation rate only (i.e. with constant temperature and $Ca^{2+}$ concentration). A $\delta^{15}$N increase of 0.103‰ is modeled between 253 and 243 ka (Fig. 4). This change is smaller but of the same order than the 0.16‰ increase of measured $\delta^{15}$N. However, the modeled $\delta^{15}$N is delayed by 2 ka compared to the measured $\delta^{15}$N. This shows that an additional effect also influences the $\delta^{15}$N signal.

The temperature effect is more complicated to infer than the accumulation rate effect. Indeed, temperature can influence the $\delta^{15}$N evolution either through the thermal effect or through the gravitational effect because of a change of the LID induced by temperature variations. The temperature increase during the deglaciation leads to a decrease of the LID because of increasing firn metamorphism. This effect was dominating the modeled $\delta^{15}$N evolution in cold sites in previous firn densification models. However, this effect is muted in the new version of the IGE firn densification model. Running this model over Termination 3 (Fig. 4) with $T_{site}$ forcing only leads to a $\delta^{15}$N decrease of 0.058‰ between 246 and 241 ka, this decrease integrating both the thermal and the gravitational effects. The thermal effect leads to a slow increase of the modeled $\delta^{15}$N between 256 ka and 244 ka (total increase of 0.044‰, Fig. 4). On opposite, the gravitational effect shows a mostly late decrease of 0.05‰ between 246 and 241 ka, linked to the decrease of the firn depth. Combined to a thermal $\delta^{15}$N decrease between 244 and 241 ka (Fig. 4), it is responsible for the global modeled $\delta^{15}$N decrease of 0.058‰ between 246 and 241 ka.

Summarizing and based on our model-data comparison, we are now able to better explain the drivers of the $\delta^{15}$N increase over the two increasing phases of Termination 3 (blue and yellow bars on Fig. 4). During the first $\delta^{15}$N increasing phase (blue on Fig. 4), the $\delta^{15}$N increase is explained by a combination of thermal fractionation and accumulation effects, with a negligible contribution of impurity concentration. During the second $\delta^{15}$N increasing phase (yellow on Fig. 4), the $\delta^{15}$N increase is essentially driven by the

increasing accumulation rate, itself mainly related to increasing temperature. The direct temperature effect plays a role in the early $\delta^{15}N$ increase over the second phase. However a few ka after the beginning of this second $\delta^{15}N$ increasing phase, increasing thermal $\delta^{15}N$ and decreasing gravitational $\delta^{15}N$ effects compensate each other so that the total effect is nil. When taking into account the influence of temperature, accumulation rate and impurity concentration in the firn densification model as adjusted for cold and low accumulation sites of East Antarctica (Bréant et al., 2017), we observe a total modeled $\delta^{15}N$ signal in very good agreement with our data for Dome C Termination 3 as was already observed for Termination 1 (Bréant et al., 2017). This is an additional validation of the firn model development performed by Bréant et al. (2017) since the phasing between changes in temperature and changes in impurity concentrations is strongly different in Termination 1 and Termination 3. This good result can also be extended to the whole 800 ka record (SOM – Fig. S3).

## 4. Discussion – East Antarctic climate dynamic over Termination 3

One of the characteristics of Termination 3 on the EDC δD record is the succession of two increasing phases (a first minor one followed by a larger one) between 253 and 244 ka with an interruption at 248–249 ka. The existence of these two δD increasing phases are confirmed by the $\delta^{15}N$ measurements and $T_{site}$ reconstruction. Indeed, the $\delta^{15}N$ increase over the first phase of Termination 3 at EDC is mainly influenced by local temperature and accumulation rate, itself partly related to temperature through thermodynamic effects on multi-millennial timescale. The $\delta^{15}N$ and $T_{site}$ data hence show that the first phase of Termination 3 is of larger amplitude than suggested by the δD record and probably started earlier (at 256 ka instead of 253 ka as suggested by the $\delta^{15}N$ signal).

### 4.1. Specificity of Termination 3 in other climatic records

This feature of Termination 3 is also strongly expressed in other records from relatively high latitudes of the Southern Hemisphere, such as the $\delta^{18}O_{planktonic}$ record of Pahnke et al. (2003) in the Southern Ocean, close to the east of New Zealand (Chatham Rise), reflecting either a local climatic and hydrologic modification or a front shift during the first phase of Termination 3 (Fig. 5). Note that this record can be paralleled to the $T_{source}$ reconstruction over the first phase of Termination 3 reflecting either an increase of the oceanic temperature or a shift of the source evaporative region toward lower latitudes.

In the Northern Hemisphere, several records highlighted a succession of millennial events occurring prior to the main deglaciation signal of Termination 3 (Jiang et al., 2010; Obrochta et al., 2014; Cheng et al., 2009, 2016; Pérez-Mejías et al., 2017). The fingerprints of Heinrich-like events have been identified over this period (McManus et al., 2004), through cold periods in the Northern Atlantic (Obrochta et al., 2014), dry events in Southern Europe (Pérez-Mejías et al., 2017) and WMI in East Asian speleothems (Jiang et al., 2010; Cheng et al., 2009, 2016) (Fig. 5). In particular, Cheng et al. (2009) proposed a three-phase sequence of Termination 3, the first and last phases corresponding to weak monsoon intervals. A parallel is proposed between the intermediate phase and the slight Antarctic cooling between the two Antarctic warming phases III-a and III-b displayed on Fig. 2. The bipolar seesaw mechanism is expected to synchronize Greenland stadials with Southern ocean and Antarctic warming (Blunier and Brook, 2001; Stocker and Johnsen, 2003; EPICA Community members, 2006; Barker et al., 2009; Landais et al., 2015; Pedro et al., 2018). Within the chronological uncertainties of AICC2012 and age models of other archives (larger than 2 ka each), we follow Cheng et al. (2009) and propose that the Antarctic warming during phase III-a of Termination 3 coincides with the Heinrich-like event at 250 ka and WMI-III-a, and the Antarctic warming during phase III-b of Termination 3 corresponds to the Heinrich like event at 245 ka and WMI-III-b. To keep coherency with the notation first introduced by Cheng et al. (2009), we thus refer to T III-a and T III-b for the two Antarctic warming phases over Termination 3, these warming phases corresponding very likely to WMI III-a and WMI III-b.

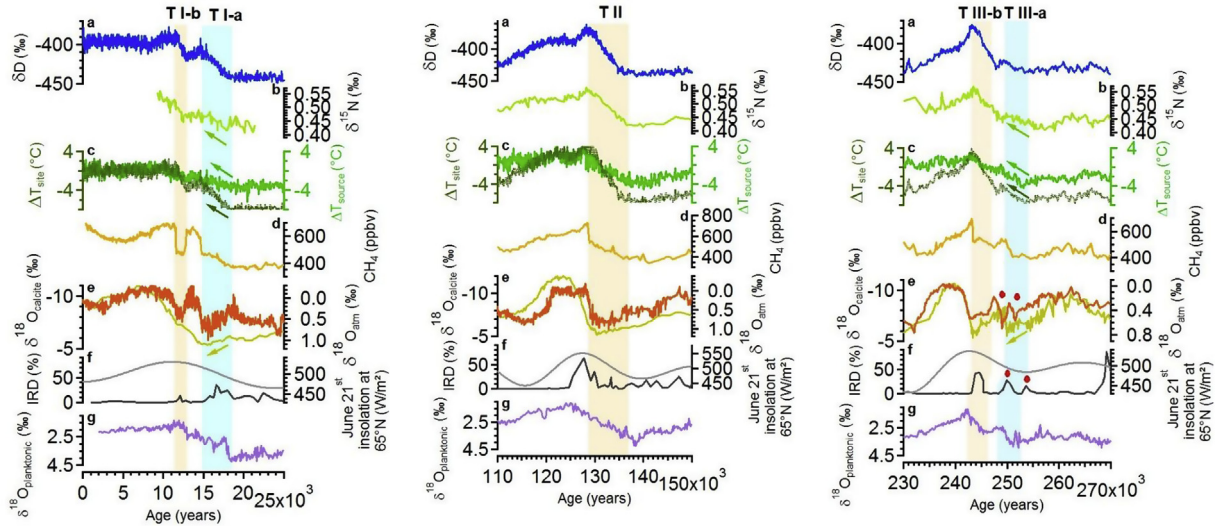



**Fig. 5.** Millennial variability during the Terminations 1 (left), 2 (middle) and 3 (right). a: EDC δD record (Jouzel et al., 2007). b: measured EDC $\delta^{15}N$ (Dreyfus et al., 2010; Landais et al., 2013; this study). c: EDC $\Delta T_{site}$ (dark green) and $\Delta T_{source}$ (green) reconstructions. d: EDC $CH_4$ (Loulergue et al., 2008). e: $\delta^{18}O_{calcite}$ from East Asian speleothems in red (Cheng et al., 2016) and EDC $\delta^{18}O_{atm}$ in yellow (Extier et al., 2018). f: IRD percentage from site ODP980 in black (McManus et al., 1999) and June 21st insolation at 65°N in grey (Laskar et al., 2004). g: $\delta^{18}O_{planktonic}$ of core MD97-2120 (Pahnke et al., 2003). All ice core data are presented on the AICC2012 timescale, the Δage estimate in AICC2012 between the gas and ice timescales being in excellent agreement (maximum difference of 400 years) with the Δage obtained with the IGE firnification model presented here. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the Web version of this article.)

### 4.2. The sequence of Termination 3 on a coherent chronology using ice core proxies

A way to circumvent the chronological issue between Antarctic records and lower latitude records and to confirm the hypothesis proposed above and by Cheng et al. (2009) is to make a direct comparison between the high latitude proxies ($\delta^{15}N$, $T_{site}$, $\delta D$) and low latitude proxies ($\delta^{18}O_{atm}$, $CH_4$ as indirect tracers of the low latitude cycle, see below) all measured on the same EDC ice core. There is thus no relative chronology uncertainty between the records except the maximum 1 ka uncertainty (inferred from AICC2012) between records displayed on the gas timescale ($\delta^{15}N$, $\delta^{18}O_{atm}$, $CH_4$) and those displayed on the ice timescale ($\delta D$, $T_{site}$). The $\delta^{18}O_{atm}$ signal shares many similarities with East Asian $\delta^{18}O_{calcite}$ records at both orbital and millennial timescales (Wang et al., 2008; Severinghaus et al., 2009; Extier et al., 2018) because it is directly influenced by the low latitude meteoric water $\delta^{18}O$ signal transmitted to the atmosphere through photosynthesis (e.g. Bender et al., 1994; Landais et al., 2010; Seltzer et al., 2017). Moreover, Reutenauer et al. (2015) used a model approach to show that Heinrich events are associated with synchronous millennial variability of both $\delta^{18}O_{calcite}$ in East Asia and $\delta^{18}O_{atm}$. $CH_4$ can also provide information of low latitudes climate of the Northern Hemisphere since the main $CH_4$ sources are located in wetlands of the low latitudes during glacial periods (Brook et al., 2000). Still, high latitudes of the Northern Hemisphere may strongly contribute to the $CH_4$ atmospheric signal especially when the high latitude continental areas are free of ice in warm periods (Yu et al., 2013).

$\delta^{18}O_{atm}$ shows two increases over phases T III-a and T III-b (Fig. 5). An interruption ($\delta^{18}O_{atm}$ decrease) is observed between the two phases, i.e. in phase with the slight decrease in $T_{site}$ and $\delta^{15}N$. This interruption at ~248 ka, also observed in the $\delta^{18}O_{calcite}$ and associated with the strengthening of the East Asian Monsoon, could be linked to an Antarctic Cold Reversal as already observed over the last deglaciation (Zhang et al., 2016) and suggested by Cheng et al. (2009). The correspondence between $\delta^{15}N$ and $\delta^{18}O_{atm}$ is free from any chronological uncertainty since they are measured on exactly the same air samples. This record hence supports a synchronicity between cold events in the Northern Hemisphere (associated with Heinrich events and WMI) and warming in Antarctica over phases T III-a and T III-b.

The $CH_4$ record is of relatively low resolution (400 years) and probably bears a significant influence of the high latitude Northern Hemisphere during deglaciations. Still, it shows a clear increase over phase T III-a peaking at 250 ka before a low level over phase T III-b. This increase is difficult to link to a warming of the high latitudes since it corresponds to a minimum of summer insolation at 65°N (despite high obliquity). Another possible interpretation of this signal is to link it to millennial-scale variability. A previous study performed over the last climatic cycle and last deglaciation showed that a $CH_4$ increase of several tenths of ppb is observed at the time of iceberg discharge in the North Atlantic in relationship with a shift of the tropical rain belts (Rhodes et al., 2015). The occurrence of a Heinrich event and associated WMI over phase T III-a may hence explain this early $CH_4$ peak. The main increase of $CH_4$ then occurs at the end of phase T III-b similarly to what is observed for the other deglaciations (Figs. 1 and 5).

Our new measurements hence permit to refine the sequence of events for Termination 3 including Antarctica without relative chronological uncertainty. During phase T III-a occurring during a minimum of the summer insolation at 65°N, Heinrich like events are associated with a southward shift of the Northern Hemisphere polar front and of the tropical rain belts linked with the ITCZ (Intertropical Convergence Zone). This shift is observed in the increases of $\delta^{18}O_{atm}$, East Asia $\delta^{18}O_{calcite}$ and $CH_4$ and is associated with the weak monsoon interval referred as WMI-III-a. Connected to this Northern Hemisphere change through atmospheric and oceanic teleconnections linked to the bipolar seesaw, the Antarctic temperature increases as shown by the $T_{site}$ and $\delta^{15}N$ records. Despite evidences for the Northern Hemisphere vs Antarctica correspondences, our records also show that the sub-millennial variability recorded in the IRD and Chinese $\delta^{18}O_{calcite}$ records over phase T III-a (2 IRD peaks, 2 positive $\delta^{18}O_{calcite}$ excursions, red points in Fig. 5) is not seen in the Antarctic records which record only one monotonous temperature increase.

Phase T III-b occurs during the rise of 65°N summer insolation and is characterized by a Heinrich like event of larger amplitude, which is also associated with WMI III-b, a southward shift of the ITCZ and of the Northern Hemisphere polar front. In a context of high Northern Hemisphere insolation and similarly to other deglaciations in the same insolation context (e.g. the most recent and well dated Terminations 1 and 2, cf Fig. 1), the Antarctic temperature increases faster than during phase T III-a.

Finally, the sequence of events over Termination 3 can be compared with the sequences observed on Termination 1 and Termination 2 where dating constraints are strong enough (Fig. 5). In particular, Fig. 5 shows that we systematically have parallel increase of $\delta^{15}N$, $T_{site}$ and $T_{source}$ at Dome C over the one or two Antarctic warming phases of the terminations. These warming phases are also systematically associated with IRD peaks as well as increasing phases in the $\delta^{18}O_{calcite}$ and $\delta^{18}O_{atm}$. The Antarctic warmings during the last 3 deglaciations are thus systematically correlated with the occurrence of WMI and iceberg discharges in the North Atlantic, hence a southward shift of the ITCZ. However, the peculiarity of Termination III is the fact that the warming over phase T III-a occurs during a minimum in June 21st insolation at 65°N while all Antarctic warming phases occur during a phase of increase in the June 21st insolation at 65°N. This may explain why phase T III-a is associated with a much smaller $\delta D$ and $T_{site}$ increase than phase TI-a. The occurrence of phase T III-a of Termination 3 in a context of low summer insolation at 65°N hence appears as an anomaly and suggests that other factors than the increase in summer insolation in the Northern Hemisphere may play a role in the triggering of the deglaciation in Antarctica. These factors may be local insolation (i.e. Southern Hemisphere summer insolation) or occurrence of millennial scale variability related to changes in the ITCZ locations.

## 5. Conclusions and perspectives

We presented a high resolution record of $\delta^{15}N$ over Termination 3 on the Dome C ice core together with a reconstruction of $T_{site}$ and $T_{source}$ from the combination of $\delta D$ and d-excess on the same ice core. $\delta^{15}N$ and $T_{site}$ display early increases as soon as 256 and 253 ka while the $\delta D$ record is mostly stable until 251 ka. Based on a thorough data – firn model comparison, we demonstrated that impurity concentration does not influence the $\delta^{15}N$ signal over Termination 3 and that the major part of the $\delta^{15}N$ increase from 256 ka to the end of Termination 3 should better be related (directly or indirectly through accumulation) to local temperature. It follows from this multiproxy analysis that the Antarctic temperature increase over the first phase of Termination 3 is stronger than inferred from $\delta D$ only.

Using a comparison with other climatic archives as well as indication for the timing of Weak Monsoon Intervals in the EDC ice core and change in the low latitude water cycle through the $\delta^{18}O_{atm}$ proxy, we confirm a sequence of events suggested by Cheng et al. (2009): the two phases of Antarctic temperature increase over Termination 3 are related to Heinrich like events with a bipolar seesaw mechanism at play. The first phase occurs during a

minimum of summer Northern Hemisphere insolation with the bipolar seesaw associated with Heinrich like events being the major explanation for Antarctic temperature increase while the second phase is associated with both Heinrich like event and increase in summer Northern Hemisphere insolation. This contrasts with the two younger terminations when the first Antarctic warming phase is in phase with increased in summer insolation at 65°N.

This study confirms that using δD from the EDC ice core for reconstructing temperature evolution should be done carefully. Indeed, millennial scale events can induce synchronous cooling of source and site temperatures resulting in a stable δD. Multiproxy studies like the one performed here are thus desirable and should be applied to other terminations such as Termination 4 associated with a strong millennial variability at the end of MIS 10. This study opens perspective for deciphering the role of orbital forcing and millennial variability in the onset and amplitude of a deglaciation.

## Acknowledgments

The research leading to these results has received funding from the European Research Council under the European Union's Seventh Framework Programme (FP7/2007–2013)/RC agreement number 306045. It was also received funding from INSU/CNRS LEFE project NEVE-CLIMAT. Finally, this work is a contribution to the European Project for Ice Coring in Antarctica (EPICA).

## Appendix A. Supplementary data

Supplementary data to this article can be found online at https://doi.org/10.1016/j.quascirev.2019.03.025.

## References

Barker, S., Diz, P., Vautravers, M.J., Pike, J., Knorr, G., Hall, I.R., Broecker, W.S., 2009. Interhemispheric Atlantic seesaw response during the last deglaciation. Nature 457, 1097–1102.

Bazin, L., Landais, A., Lemieux-Dudon, B., Toyé Mahamadou Kele, H., Veres, D., Parrenin, F., Martinerie, P., Ritz, C., Capron, E., Lipenkov, V., Loutre, M.-F., Raynaud, D., Vinther, B., Svensson, A., Rasmussen, S.O., Severinghaus, M., Blunier, T., Leuenberger, M., Fischer, H., Masson-Delmotte, V., Chappellaz, J., Wolff, E., 2013. An optimized multi-proxy, multi-site Antarctic ice and gas orbital chronology (AICC2012): 120-800 ka. Clim. Past 9, 1715–1731.

Bender, M.L., Sowers, T., Labeyrie, L., 1994. The Dole effect and its variations during the last 130,000 years as measured in the Vostok ice core. Glob. Biogeochem. Cycles 8, 363–376.

Bereiter, B., Eggleston, S., Schmitt, J., Nehrbass-Ahles, C., Stocker, T.F., Fischer, H., Kipfstuhl, S., Chappellaz, J., 2015. Revision of the EPICA Dome C $CO_2$ record from 800 to 600 kyr before present. Geophys. Res. Lett. 42, 542–549.

Bernache-Assollant, D., 2005. Frittage : aspects physico-chimiques Partie 2 : frittage en phase liquide.

Bintanja, R., van de Wal, R.S.W., Oerlemans, J., 2005. Modelled atmospheric temperatures and global sea levels over the past million years. Nature 437, 125–128.

Blunier, T., Brook, E.J., 2001. Timing of millennial-scale climate change in Antarctica and Greenland during the last glacial period. Science 291 (5501), 109–112.

Bréant, C., Martinerie, P., Orsi, A., Laurent, A., Landais, A., 2017. Modelling firn thickness evolution during the last deglaciation: constraints on sensitivity to temperature and impurities. Clim. Past 13 (7), 833–853.

Brook, E.J., Harder, S., Severinghaus, J., Steig, E.J., Sucher, C.M., 2000. On the origin and timing of rapid changes in atmospheric methane during the Last Glacial Period. Glob. Biogeochem. Cycles 14 (2), 559–572.

Caillon, N., Severinghaus, J.P., Jouzel, J., Barnola, J.M., Kang, J., Lipenkov, V.Y., 2003. Timing of atmospheric $CO_2$ and Antarctic temperature changes across Termination III. Science 299, 1728–1731.

Capron, E., Landais, A., Lemieux-Dudon, B., Schilt, A., Masson-Delmotte, V., Buiron, D., Chappellaz, J., Dahl-Jensen, D., Johnsen, S., Leuenberger, M., Loulergue, L., Oerter, H., 2010. Synchronising EDML and NorthGRIP ice cores using $\delta^{18}O$ of atmospheric oxygen ($\delta^{18}O_{atm}$) and $CH_4$ measurements over MIS5 (80–123 kyr). Quat. Sci. Rev. 29, 222–234.

Capron, E., Landais, A., Buiron, D., Cauquoin, A., Chappellaz, J., Debret, M., Jouzel, J., Leuenberger, M., Martinerie, P., Masson- Delmotte, V., Mulvaney, R., Parrenin, F., Prié, F., 2013. Glacial–interglacial dynamics of Antarctic firn columns: comparison between simulations and ice core air-$\delta^{15}N$ measurements. Clim. Past 9, 983–999.

Ciais, P., Jouzel, J., 1994. Deuterium and oxygen 18 in precipitation: isotopic model, including mixed cloud processes. J. Geophys. Res.: Atmosphere 99, 16793–16803.

Cheng, H., Edwards, R.L., Broecker, W.S., Denton, G.H., Kong, X., Wang, Y., et al., 2009. Ice age terminations. Science 326 (5950), 248–252. https://doi.org/10.1126/science.1177840.

Cheng, H., Edwards, R.L., Sinha, A., Spötl, C., Yi, L., Chen, S., Kelly, M., Kathayat, G., Wang, X., Li, X., Kong, X., Wang, Y., Ning, Y., Zhang, H., 2016. The Asian monsoon over the past 640,000 years and ice age terminations. Nature 534, 640–646.

Chiang, J.C.H., Bitz, C.M., 2005. Influence of high latitude ice cover on the marine Intertropical Convergence Zone. Clim. Dyn. 25, 477–496.

Denton, G.H., Anderson, R.F., Toggweiler, J.R., Edwards, R.L., Schaefer, J.M., Putnam, A.E., 2010. The last glacial termination. Science 328, 1652–1656.

Dreyfus, G.B., Jouzel, J., Bender, M.L., Landais, A., Masson-Delmotte, V., Leuenberger, M., 2010. Firn processes and $\delta^{15}N$: potential for a gas-phase climate proxy. Quat. Sci. Rev. 29, 28–42.

Dütsch, M., Pfahl, S., Sodemann, H., 2017. The impact of nonequilibrium and equilibrium fractionation on two different deuterium excess definitions. J. Geophys. Res.: Atmosphere 122, 12732–12746.

EPICA Community Members, 2004. Eight glacial cycles from an Antarctic ice core. Nature 429, 623–628.

EPICA Community Members, 2006. One-to-one coupling of glacial climate variability in Greenland and Antarctica. Nature 444, 195–198.

Extier, T., Landais, A., Bréant, C., Prié, F., Bazin, L., Dreyfus, G., Roche, D.M., Leuenberger, M., 2018. On the use of $\delta^{18}O_{atm}$ for ice core dating. Quat. Sci. Rev. 185, 244–257.

Fudge, T.J., Markle, B.R., Cuffey, K.M., Buizert, C., Taylor, K.C., Steig, E.J., Waddington, E.D., Conway, H., Koutnik, M., 2016. Variable relationship between accumulation and temperature in West Antarctica for the past 31,000 years. Geophys. Res. Lett. 43, 3795–3803.

Freitag, J., Kipfstuhl, S., Laepple, T., Wilhelms, F., 2013. Impurity-controlled densification: a new model for stratified polar firn. J. Glaciol. 59 (218), 1163–1169.

Gat, J.R., Matsui, E., 1991. Atmospheric water balance in the Amazon basin: an isotopic evapotranspiration model. J. Geophys. Res. 96, 13179–13188.

Grachev, A.M., Severinghaus, J.P., 2003. Determining the thermal diffusion factor for Ar-40/Ar-36 in air to aid paleoreconstruction of abrupt climate change. J. Phys. Chem. 107, 4636–4642.

Hodell, D.A., Channell, J.E.T., Curtis, J.H., Romero, O.E., Röhl, U., 2008. Onset of "hudson strait" Heinrich events in the eastern North Atlantic at the end of the middle pleistocene transition (~640 ka)? Paleoceanography 23, PA4218.

Hörhold, M.W., Laepple, T., Freitag, J., Bigler, M., Fischer, H., Kipfstuhl, S., 2012. On the impact of impurities on the densification of polar firn. Earth Planet. Sci. Lett. 325, 93–99.

Huybers, P., 2007. Glacial variability over the last two million years: an extended depth-derived agemodel, continuous obliquity pacing, and the Pleistocene progression. Quat. Sci. Rev. 26 (1–2), 37–55.

Jiang, X., Kong, X., Wang, Y., Cheng, H., Wu, J., Chen, S., 2010. Orbital-and millennial-scale variability of the Asian monsoon during MIS8 from Sanbao cave at mount Shennongjia, central China. Chin. Sci. Bull. 55 (11), 1041–1046.

Jouzel, J., Merlivat, L., 1984. Deuterium and oxygen-18 in precipitation: modeling of the isotopic effects during snow formation. J. Geophys. Res. 89 (D7), 11749–11757.

Jouzel, J., Vimeux, F., Caillon, N., Delaygue, G., Hoffmann, G., Masson-Delmotte, V., Parrenin, F., 2003. Magnitude of isotope/temperature scaling for interpretation of central Antarctic ice cores. J. Geophys. Res. 108 (D12), 4361.

Jouzel, J., Masson-Delmotte, V., Cattani, O., Dreyfus, G., Falourd, S., Hoffmann, G., Minster, B., Nouet, J., Barnola, J.M., Chappellaz, J., Fischer, H., Gallet, J.C., Johnsen, S., Leuenberger, M., Loulergue, L., Luethi, D., Oerter, H., Parrenin, F., Raisbeck, G., Raynaud, D., Schilt, A., Schwander, J., Selmo, E., Souchez, R., Spahni, R., Stauffer, B., Steffensen, J.P., Stenni, B., Stocker, T.F., Tison, J.L., Werner, M., Wolff, E.W., 2007. Orbital and millennial Antarctic climate variability over the past 800,000 years. Science 317, 793–796.

Lambert, F., Bigler, M., Steffensen, J.P., Hutterli, M., Fischer, H., 2012. Centennial mineral dust variability in high-resolution ice core data from Dome C, Antarctica. Clim. Past 8, 609–623.

Landais, A., Barnola, J.M., Kawamura, K., Caillon, N., Delmotte, M., Van Ommen, T., Dreyfus, G., Jouzel, J., Masson-Delmotte, V., Minster, B., Freitag, J., Leuenberger, M., Schwander, J., Huber, C., Etheridge, D., Morgan, V., 2006. Firn-air $\delta^{15}N$ in modern polar sites and glacial–interglacial ice: a model-data mismatch during glacial periods in Antarctica? Quat. Sci. Rev. 25, 49–62.

Landais, A., Dreyfus, G., Capron, E., Masson-Delmotte, V., Sanchez-Goñi, M.F., Desprat, S., Hoffmann, G., Jouzel, J., Leuenberger, M., Johnsen, S., 2010. What drives the millennial and orbital variations of $\delta^{18}O_{atm}$? Quat. Sci. Rev. 29, 235–246.

Landais, A., Dreyfus, G., Capron, E., Jouzel, J., Masson-Delmotte, V., Roche, D.M., Prié, F., Caillon, N., Chappellaz, J., Leuenberger, M., Lourantou, A., Parrenin, F., Raynaud, D., Teste, G., 2013. Two-phase change in $CO_2$, Antarctic temperature and global climate during Termination II. Nat. Geosci. 6, 1062–1065.

Landais, A., Masson-Delmotte, V., Stenni, B., Selmo, E., Roche, D.M., Jouzel, J., Lambert, F., Guillevic, M., Bazin, L., Arzel, O., Vinther, B., Gkinis, V., Popp, T., 2015. A review of the bipolar seesaw from synchronized and high resolution ice core water stable isotope records from Greenland and East Antarctica. Quat. Sci. Rev. 114, 18–32.

Laskar, J., Robutel, P., Joutel, F., Gastineau, M., Correia, A.C.M., Levrard, B., 2004. A long-term numerical solution for the insolation quantities of the Earth. Astron. Astrophys. 428, 261–285.

Loulergue, L., Schilt, A., Spahni, R., Masson-Delmotte, V., Blunier, T., Lemieux, B.,

Barnola, J.-M., Raynaud, D., Stocker, T.F., Chappellaz, J., 2008. Orbital and millennial-scale features of atmospheric $CH_4$ over the past 800,000 years. Nature 453, 383–386.
Lüthi, D., Le Floch, M., Bereiter, B., Blunier, T., Barnola, J.-M., Siegenthaler, U., Raynaud, D., Jouzel, J., Fischer, H., Kawamura, K., Stocker, T.F., 2008. High-resolution carbon dioxide concentration record 650,000–800,000 years before present. Nature 453, 379–382.
Markle, B.R., Steig, E.J., Buizert, C., Schoenemann, S.W., Bitz, C.M., Fudge, T.J., Pedro, J.B., Ding, Q., Jones, T.R., White, J.W.C., Todd, S., 2016. Global atmospheric teleconnections during Dansgaard-Oeschger events. Nat. Geosci. 10, 36–40.
Masson-Delmotte, V., Stenni, B., Blunier, T., Cattani, O., Chappellaz, J., Cheng, H., Dreyfus, G., Edwards, R.L., Falourd, S., Govin, A., Kawamura, K., Johnsen, S.J., Jouzel, J., Landais, A., Lemieux-Dudon, B., Lourantou, A., Marshall, G., Minster, B., Mudelsee, M., Pol, K., Röthlisberger, R., Selmo, E., Waelbroeck, C., 2010. Abrupt change of Antarctic moisture origin at the end of Termination II. Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. 107, 12091–12094.
McManus, J.F., Oppo, D.W., Cullen, J.L., 1999. A 0.5 million-year record of millennial scale climate variability in the North Atlantic. Science 283, 971–975.
McManus, J.F., Francois, R., Gherardi, J.M., Keigwin, L.D., Brown-Leger, S., 2004. Collapse and rapid resumption of Atlantic meridional circulation linked to deglacial climate changes. Nature 428, 834–837.
Merlivat, L., Jouzel, J., 1979. Global climatic interpretation of the deuterium-oxygen–18 relationship or precipitation. J. Geophys. Res. 84, 5029–5033.
Meyer, H., Schönicke, L., Wand, U., Hubberten, H.-W., Friedrichsen, H., 2000. Isotope studies of hydrogen and oxygen in ground ice-experiences with the equilibration technique. Isot. Environ. Health Stud. 36 (2), 133–149.
Milankovitch, M., 1941. History of radiation on the Earth and its use for the problem of the ice ages. K. Serb. Akad. Beogr.
Obrochta, S.P., Crowley, T.J., Channell, J.E., Hodell, D.A., Baker, P.A., Seki, A., Yokoyama, Y., 2014. Climate variability and ice-sheet dynamics during the last three glaciations. Earth Planet. Sci. Lett. 406, 198–212.
Past Interglacials Working Group of PAGES, 2016. Interglacials of the last 800,000 years. Rev. Geophys. 54, 162–219.
Pahnke, K., Zahn, R., Elderfield, H., Schulz, M., 2003. 340,000 year centennial-scale marine record of Southern Hemisphere climatic oscillation. Science 301, 948–952.
Paillard, D., 1998. The timing of Pleistocene glaciations from a simple multiple-state climate model. Nature 391, 378–381.
Paillard, D., Parrenin, F., 2004. The Antarctic ice sheet and the triggering of deglaciations. Earth Planet. Sci. Lett. 227, 263–271.
Parrenin, F., Remy, F., Ritz, C., Siegert, M., Jouzel, J., 2004. New modelling of the Vostok ice flow line and implication for the glaciological chronology of the Vostok ice core. J. Geophys. Res. 109, D20102.
Parrenin, F., Barnola, J.-M., Beer, J., Blunier, T., Castellano, E., Chappellaz, J., Dreyfus, G., Fischer, H., Fujita, S., Jouzel, J., Kawamura, K., Lemieux-Dudon, B., Loulergue, L., Masson-Delmotte, V., Narcisi, B., Petit, J.-R., Raisbeck, G., Raynaud, D., Ruth, U., Schwander, J., Severi, M., Spahni, R., Steffensen, J.P., Svensson, A., Udisti, R., Waelbroeck, C., Wolff, E., 2007. The EDC3 chronology for the EPICA Dome C ice core. Clim. Past 3, 485–497.
Parrenin, F., Barker, S., Blunier, T., Chappellaz, J., Jouzel, J., Landais, A., Masson-Delmotte, V., Schwander, J., Veres, D., 2012. On the gas-ice depth difference (Δdepth) along the EPICA Dome C ice core. Clim. Past 8, 1239–1255.
Parrenin, F., Masson-Delmotte, V., Kohler, P., Raynaud, D., Paillard, D., Schwander, J., Barbante, C., Landais, A., Wegner, A., Jouzel, J., 2013. Synchronous change of atmospheric $CO_2$ and Antarctic temperature during the last deglacial warming. Science 339, 1060–1063.
Pedro, J.B., Rasmussen, S.O., van Ommen, T.D., 2012. Tightened constraints on the time-lag between Antarctic temperature and $CO_2$ during the last deglaciation. Clim. Past 8, 1213–1221.
Pedro, J.B., Jochum, M., Buizert, C., He, F., Barker, S., Rasmussen, S.O., 2018. Beyond the bipolar seesaw: toward a process understanding of interhemispheric coupling. Quat. Sci. Rev. 192, 27–46.
Pérez-Mejías, C., Moreno, A., Sancho, C., Bartolomé, M., Stoll, H., Cacho, I., Cheng, H., Edwards, R.L., 2017. Abrupt climate changes during termination III in southern Europe. Proc. Natl. Acad. Sci. Unit. States Am. 114, 10047–10052.
Reutenauer, C., Landais, A., Blunier, T., Bréant, C., Kageyama, M., Woillez, M.-N., Risi, C., Mariotti, V., Braconnot, P., 2015. Quantifying molecular oxygen isotope variations during a Heinrich stadial. Clim. Past 11, 1527–1551.
Rhodes, R.H., Brook, E.J., Chiang, J., Blunier, T., Maselli, O., McConnel, J.R., Romanini, D., Severinghaus, J., 2015. Enhanced tropical methane production in response to iceberg discharge in the North Atlantic. Science 348 (6238), 1016–1019.
Röhling, E.J., Foster, G.L., Grant, K.M., Marino, G., Roberts, A.P., Tamisiea, M.E., Williams, F., 2014. Sea-level and deep-sea-temperature variability over the past 5.3 million years. Nature 508, 477–482.
Röthlisberger, R., Mudelsee, M., Bigler, M., de Angelis, M., Fisher, H., Hansson, M., Lambert, F., Masson-Delmotte, V., Sime, L., Udisti, R., Wolff, E.W., 2008. The Southern Hemisphere at glacial terminations: insights from the Dome C ice core. Clim. Past 4, 345–356.
Seltzer, A.M., Buizert, C., Baggenstos, D., Brook, E.J., Ahn, J., Yang, J.-W., Severinghaus, J.P., 2017. Does d18O of O2 record meridional shifts in tropical rainfall? Clim. Past 13, 1323–1338.
Severinghaus, J.P., Sowerst, T., Alleyt, R.B., 1998. Timing of abrupt climate change at the end of the Younger Dryas interval from thermally fractionated gases in polar ice. Nature 39, 141–146.
Severinghaus, J.P., Beaudette, R., Headly, M.A., Taylor, K., Brook, E.J., 2009. Oxygen-18 of $O_2$ records the impact of abrupt climate change on the terrestrial biosphere. Science 324, 1431–1434.
Sowers, T., Bender, M.L., Raynaud, D., Korotkevich, Y.S., 1992. $^{15}N$ of $N_2$ in air trapped in polar ice: a tracer of gas transport in the firn and a possible constraint on ice age–gas age differences. J. Geophys. Res. 97 (15), 697, 683–15.
Spratt, R.M., Lisiecki, L.E., 2016. A Late Pleistocene sea level stack. Clim. Past 12, 1079–1092.
Stenni, B., Masson-Delmotte, V., Johnsen, S., Jouzel, J., Longinelli, A., Monnin, E., Röthlisberger, R., Selmo, E., 2001. An oceanic cold reversal during the last deglaciation. Science 293, 2074–2077.
Stenni, B., Masson-Delmotte, V., Selmo, E., Oerter, H., Meyer, H., Röthlisberger, R., Jouzel, J., Cattani, O., Falourd, S., Fisher, H., Hoffmann, G., Lacumin, P., Johnsen, S.J., Minster, B., Udisti, R., 2010. The deuterium excess records of EPICA Dome C and Maud Land ice cores (East Antarctica). Quat. Sci. Rev. 29, 146–159.
Stocker, T.F., Johnsen, S.J., 2003. A minimum thermodynamic model for the bipolar seesaw. Paleoceanography 18, 1087.
Touzeau, A., Landais, A., Stenni, B., Uemura, R., Fukui, K., Fujita, S., 2016. Acquisition of isotopic composition for surface snow in East Antarctica and the links to climatic parameters. Cryosphere 10 (2), 837–852.
Tzedakis, P.C., Crucifix, M., Mitsui, T., Wolff, E.W., 2017. A simple rule to determine which insolation cycles lead to interglacials. Nature 542, 427–432.
Uemura, R., Masson-Delmotte, V., Jouzel, J., Landais, A., Motoyama, H., Stenni, B., 2012. Ranges of moisture-source temperature estimated from Antarctic ice cores stable isotope records over glacial–interglacial cycles. Clim. Past 8 (3), 1109–1125.
Uemura, R., Motoyama, H., Masson-Delmotte, V., Jouzel, J., Kawamura, K., Goto-Azuma, K., Fujita, S., Kuramoto, T., Hirabayashi, M., Miyake, T., Ohno, H., Abe-Ouchi, A., Iizuka, Y., Horikawa, S., Igarashi, M., Suzuki, K., Suzuki, T., Fujii, Y., 2018. Asynchrony between Antarctic temperature and $CO_2$ associated with obliquity over the past 720,000 years. Nat. Commun. 9 (961).
Veres, D., Bazin, L., Landais, A., Toyé Mahamadou Kele, H., Lemieux-Dudon, B., Parrenin, F., Martinerie, P., Blayo, E., Blunier, T., Capron, E., Chappellaz, J., Rasmussen, S.O., Severi, M., Svensson, A., Vinther, B., Wolff, E.W., 2013. The Antarctic ice core chronology (AICC2012): an optimized multi-parameter and multi-site dating approach for the last 120 thousand years. Clim. Past 9, 1733–1748.
Vimeux, F., Masson, V., Jouzel, J., Stievenard, M., Petit, J.R., 1999. Glacial–interglacial changes in ocean surface conditions in the Southern Hemisphere. Nature 398, 410–413.
Vimeux, F., Masson, V., Jouzel, J., Petit, J.R., Steig, E.J., Stievenard, M., Vaikmae, R., White, J.W.C., 2001. Holocene hydrological cycle changes in the southern hemisphere documented in East Antarctic deuterium excess records. Clim. Dyn. 17, 503–513.
Wang, Y.J., Cheng, H., Edwards, R.L., Kong, X., Shao, X., Chen, S., Wu, J., Jiang, X., Wang, X., An, Z., 2008. Millennial- and orbital-scale changes in the East Asian monsoon over the past 224,000 years. Nature 451, 1090–1093.
Watanabe, O., Jouzel, J., Johnsen, S., Parrenin, F., Shoji, H., Yoshida, N., 2003. Homogeneous climate variability across East Antarctica over the past three glacial cycles. Nature 422, 509–512.
Wilkinson, D.S., Ashby, M.F., 1975. Pressure sintering by power law creep. Acta Metall. 23, 1277–1285.
Wolff, E.W., Fischer, H., Rothlisberger, R., 2009. Glacial terminations as southern warmings without northern control. Nat. Geosci. 2, 206–209.
Yin, Q.Z., Berger, A., 2012. Individual contribution of insolation and $CO_2$ to the interglacial climates of the past 800,000 years. Clim. Dyn. 38, 709–724.
Yu, Z., Loisel, J., Turetsky, M.R., Cai, S., Zhao, Y., Frolking, S., MacDonald, G.M., Bubier, J.L., 2013. Evidence for elevated emissions from high-latitude wetlands contributing to high atmospheric $CH_4$ concentration in the early Holocene. Glob. Biogeochem. Cycles 27, 131–140.
Zhang, H., Griffiths, M.L., Huang, J., Cai, Y., Wang, C., Zhang, F., Cheng, H., Ning, Y., Hu, C., Xie, S., 2016. Antarctic link with East Asian summer monsoon variability during the Heinrich Stadial–Bølling interstadial transition. Earth Planet. Sci. Lett. 453, 243–251.

# Article : Exceptionally high biosphere productivity at the beginning of Marine Isotopic Stage 11 (Brandon et al., en revue dans Nature Communications)

**Title:** Exceptionally high biosphere productivity at the beginning of Marine Isotopic Stage 11

**Order of Authors:** Margaux Brandon*[a,b], Amaelle Landais[a], Stéphanie Duchamp-Alphonse[b], Violaine Favre[a], Léa Schmitz[a], Héloïse Abrial[a], Frédéric Prie[a], Thomas Extier[a], Thomas Blunier[c]

**Author Affiliation :**

[a]Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, LSCE/IPSL, CEA-CNRS-UVSQ, Université Paris-Saclay, 91191, Gif-sur-Yvette, France

[b]GEOPS, Univ. Paris-Sud, CNRS, Université Paris-Saclay, 91405 Orsay, France

[c]Copenhagen Univ., Niels Bohr Institute, Centre for Ice and Climate, Juliane Maries Vej 30, DK-2100 Copenhagen, Denmark

***Corresponding author:** Margaux Brandon

Address : GEOPS, Univ. Paris-Sud, CNRS, Université Paris-Saclay, 91405 Orsay, France

Phone number: 33 (1) 69 15 61 26

E-mail address: margaux.brandon@u-psud.fr

## Abstract

Biosphere productivity is associated with important fluxes of $CO_2$ through photosynthesis and respiration. Quantifying the variations of global biosphere productivity over deglaciations is thus key for a better comprehension of the variations of atmospheric $CO_2$ over glacial-interglacial cycles. Termination V occurs at a key moment for glacial-interglacial cycles of the last 800,000 years, corresponding to the first termination with a large $CO_2$ amplitude followed by the longest interglacial (~30 ka). Using the first high resolution record of $\Delta^{17}O$ of $O_2$ over Termination V and Marine Isotopic Stage 11, we are able to reconstruct the past global biosphere productivity over this period. We show that the global oxygen biosphere productivity at the end of Termination V is 20% higher compared to the younger deglaciations. A comparison with $\delta^{18}O_{atm}$ and regional terrestrial and marine records indicates that higher biosphere productivity was due to extended period of strong terrestrial productivity during this interval.


## INTRODUCTION

The largest pre-anthropogenic changes in atmospheric $CO_2$ concentration of the last 800,000 years are observed during deglaciations with increases of up to 100 ppm in a few thousand years[1]. Deglacial increases in atmospheric $CO_2$ have no univocal cause and likely involve changes in both oceanic and terrestrial carbon reservoirs. The biosphere productivity on land and in the ocean modulates atmospheric $pCO_2$ through photosynthesis and respiration, with a more important contribution of terrestrial biosphere over marine biosphere at present-day[2]. Moreover, $CO_2$ degassing from the ocean can be induced by increases of sea-surface temperature (solubility pump)[3] and increases of exchanges between ocean surface and atmosphere due to sea-ice melting[4], as well as greater Southern Ocean ventilation associated

with enhanced upwelling (physical pump)[5]. On land, deglaciating permafrost creates an additional potential source of $CO_2$ to the atmosphere[6]. We will address the variations and role of global biosphere productivity on $CO_2$ concentration changes over glacial to interglacial transitions.

Models of gross or net productivity including modules for terrestrial vegetation and the oceanic biosphere provide widely varying estimates with substantial uncertainties[7,8]. In the marine realm, some models predict a higher oceanic net primary productivity during the glacial times compared to present[9] but also lower glacial oceanic net productivity has been predicted[10]. In parallel, quantifying changes in continental productivity over deglaciations has been a challenge because of compensating effects: as an example, while the deglacial increase of sea level leads to disappearance of high productive continental areas in low latitudes, deglaciating land in the northern high latitudes leaves new soils for vegetation. Empirical constraints are strongly needed to test the validity of modelled biological productivity changes.

In the ocean, two biological processes linked to the carbon cycle are considered together within the Biological Carbon Pump (BCP): the net export of organic carbon to the deep ocean, that contributes to decrease atmospheric $CO_2$, and the production and export of $CaCO_3$ that has the opposite effect[11]. Over deglaciations, the Southern Ocean (SO), and more specifically the Subantarctic Zone (SAZ), is expected to represent one of the key oceanic region because of iron (Fe) limitation in surface waters, impacting the primary productivity[12]. However, while micropaleontological and geochemical analyses of marine cores from the SO are powerful tools to infer changes in productivity and biological pump efficiency, it should be noted that they can only provide local to regional information and no estimate of the global change of oceanic productivity over deglaciations.

On continents, variations in vegetation cover and type can be related, although indirectly, to variations of the biosphere productivity. Pollen counting or Total Organic Content (TOC) are

useful for such approach[13,14] but as for marine records, this provides only regional records and numerous data points are required to have a worldwide overview. The isotopic signature in $\delta^{13}C$ of benthic foraminifera and atmospheric $CO_2$ can be used to estimate the evolution of the terrestrial carbon storage related to continental productivity[7,15]. This method requires global vegetation reconstruction and explicit modelling of $\delta^{13}C$ of $CO_2$ in Earth System Model but large uncertainties are associated with the numerous $^{13}C/^{12}C$ fractionation processes in the Earth system.

A total estimate of the global biospheric oxygen fluxes and their variations can be obtained from measurements of $\Delta^{17}O$ of $O_2$ ($\ln(\delta^{17}O+1)-0.516*\ln(\delta^{18}O+1)$) in ice cores[16,17]. $\Delta^{17}O$ of $O_2$ measures the variation of the triple isotopic composition of atmospheric $O_2$ with respect to modern oxygen so that by definition, $\Delta^{17}O$ of $O_2$ is nil today. Previous experimental studies showed that $\Delta^{17}O$ of $O_2$ increases in a closed biospheric system when the exchanges with the stratosphere are prevented: the biological productivity leads to $\Delta^{17}O$ of $O_2$ increase while photochemical reactions occurring in the stratosphere have the effect of decreasing $\Delta^{17}O$ of $O_2$. Such properties open a new way to infer the relative proportion of oxygen fluxes issued from biosphere processes and from the exchanges between the stratosphere and the troposphere. For paleoproductivity reconstructions, measurements of the evolution of $\Delta^{17}O$ of $O_2$ in ancient air trapped in the Vostok and GISP2 ice cores already provided information on the evolution of global biosphere productivity over the last 400 ka[17]. The results show a systematic larger productivity during interglacial than during glacial periods with interglacial levels remaining close to the current biosphere productivity.

Over the last 9 deglaciations where $CO_2$ concentration was measured, Termination V, occurring about 420 ka before present, is probably the most intriguing. This is the first after the Mid-Brunhes event marking a fundamental change in the climate system from milder to hotter warm periods with associated lower to higher $CO_2$ concentrations and larger to smaller ice volumes.

Termination V is framed by the particularly long and strong glacial Marine Isotopic Stage 12 (MIS 12) followed by the long and warm interglacial MIS 11, characterised by a higher than present sea level[18]. While the $CO_2$ level at MIS 11 is not exceptionally high compared to the following warm periods[19], the $CO_2$ fluxes during Termination V and MIS 11 need to be investigated, especially those associated with biosphere productivity. Indeed, MIS 11 displays an unusual increase in carbonate storage in low-latitude neritic[20] and high-latitude pelagic environments[21]. While they are associated with a major phase in coral reef expansion[22] and a potential climax in calcareous phytoplankton productivity respectively[23], their patterns and their specific relationships with atmospheric $pCO_2$ are not understood. On the continents, MIS 11 exhibits a strong and long increase in terrestrial productivity in the high latitudes of the Northern Hemisphere recorded in lake and marine sediments by the rise in pollen content[14,24].

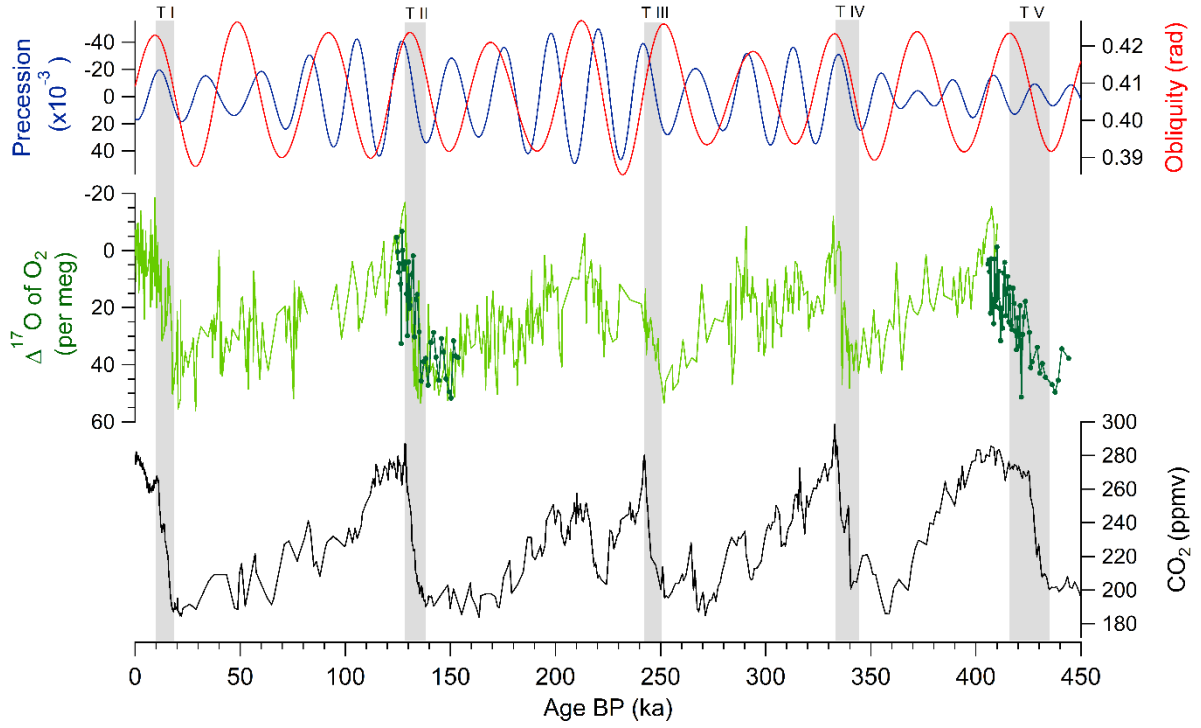
Here we present the first measurements of the triple isotopic composition of atmospheric oxygen ($\Delta^{17}O$ of $O_2$) over Termination V. Using these measurements and new correction factors compared to the previous record of Blunier et al., (2012)[17], we reconstruct the fluxes associated with biosphere productivity over the last 445 ka, and compare our reconstruction with recent regional records of marine and continental productivity to provide the first local vs global perspective.

## RESULTS

### A unique record of $\Delta^{17}O$ of $O_2$ during Termination V and the beginning of MIS 11

The Antarctic EPICA Dome C (EDC) ice core (75°06'S; 123°21'E, 3233 m above sea level) covers the last 800 ka. We measured $\Delta^{17}O$ of $O_2$ over the depth range 2735 m to 2797 m, corresponding to an age between 405.7 and 444.1 ka with an average resolution of 780 years (50 samples) (Figure 1). The raw data were corrected for several effects (Methods): values of

120 the atmospheric air $\Delta^{17}O$ of $O_2$ were corrected from gravitational fractionation, air bubble
121 trapping fractionation and gas loss fractionation. Compared to the previous records[16,17,25],
122 several corrections were addressed for the first time here (gas loss and air bubble trapping
123 effects). To check the coherency between the previous records that did not take into account
124 these corrections, and the new one obtained on EDC, we measured $\Delta^{17}O$ of $O_2$ over Termination
125 II on the EDC ice core and compared our corrected $\Delta^{17}O$ of $O_2$ curve with the previous record
126 obtained by Blunier et al. (2012)[17] on the Vostok ice core (Figure 1). The two records are in
127 agreement, displaying the same 51 ppm decrease over Termination II without any shift in the
128 mean $\Delta^{17}O$ of $O_2$ value because of compensating effects in the different corrections (see
129 Methods). We thus conclude that our new record over Termination V can directly be used to
130 complete the previous $\Delta^{17}O$ of $O_2$ record from Blunier et al. (2012)[17] and provide a full record
131 of $\Delta^{17}O$ of $O_2$ over the last 5 deglaciations.



132

133 **Figure 1**: Record of $\Delta^{17}O$ of $O_2$ over the last 450 ka compared to evolution of $CO_2$ and orbital
134 parameters. Top panel: Precession (dark blue) and obliquity (red)[26]; middle panel: $\Delta^{17}O$ of $O_2$
135 (light green: records presented in Blunier et al. (2012)[17] covering the last 400 ka; dark green:

136 new records); bottom panel: $CO_2$ atmospheric variations over the last 450 ka[19]. The ice core
137 records are presented on the AICC2012 timescale[27,28].

138

139 Termination V displays a decrease in $\Delta^{17}O$ of $O_2$ (56 ppm) of similar amplitude than the younger
140 deglaciations (53, 35, 51 and 55 ppm for Terminations IV, III, II and I, respectively). The main
141 difference with previous terminations is on the duration and timing of the $\Delta^{17}O$ of $O_2$ decreases.
142 For the four youngest terminations, the $\Delta^{17}O$ of $O_2$ decreases are in parallel to the $CO_2$ increases
143 [17]. Over Termination V, the main decrease of $\Delta^{17}O$ of $O_2$ is more than twice as long as the $CO_2$
144 increase (from 434.8 to 410.2 ka and from 434.8 to 424.8 ka, i.e. 24.6 ka and 10 ka respectively,
145 Figure 1). This result contrasts with previous studies covering the last four deglaciations[17] with
146 a slope of the $\Delta^{17}O$ of $O_2$ vs $CO_2$ anti-correlation which is 2 or 3 times lower for Termination
147 V than for the younger Terminations (Supplementary Fig. 1 and 2).

148

149 Focusing on the last 5 deglaciations, only 2 cases can be identified with a significant deviation
150 between the $CO_2$ and the $\Delta^{17}O$ of $O_2$ evolutions from the beginning of the deglaciation to the
151 peak of atmospheric $CO_2$ rise (red arrows on Figure 2): (a) at the very end of Termination III,
152 between 240 and 245 ka, when the short peak in atmospheric $CO_2$ concentration does not
153 correspond to a sharp decrease in $\Delta^{17}O$ of $O_2$ and (b) over Termination V, between 430 and 415
154 ka, when the maximum in $CO_2$ concentration is reached more than 10 ka before the minimum
155 in $\Delta^{17}O$ of $O_2$. Contrary to the case of Termination III where the deviation of the $\Delta^{17}O$ of $O_2$
156 signal from the $CO_2$ optimum is based on only 3 points hence questioning the robustness of this
157 signal, the mismatch between $CO_2$ and $\Delta^{17}O$ of $O_2$ evolutions over Termination V is clear,
158 relying on 40 data points of $\Delta^{17}O$ of $O_2$. Our new data show that the systematic use of $\Delta^{17}O$ of

$O_2$ to infer $CO_2$ value when $CO_2$ measurements are not available or possible[29] is not systematically a valid approach (Supplementary Fig. 1) .

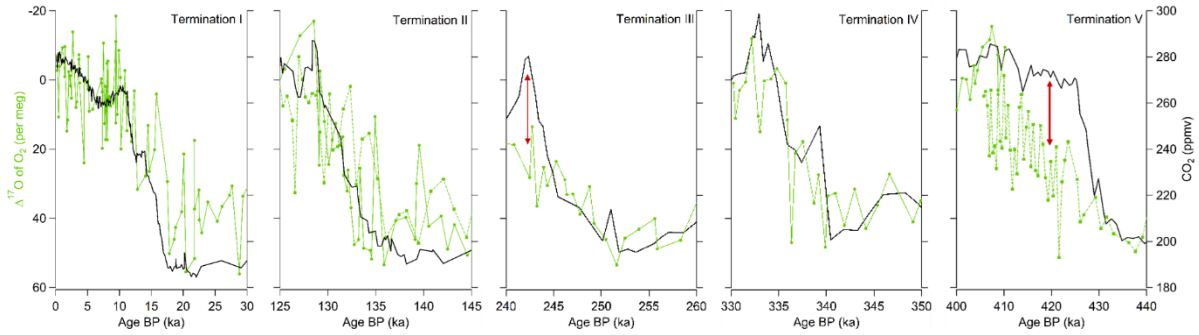



**Figure 2:** Comparison of $CO_2$ (black)[19] and $\Delta^{17}O$ of $O_2$ evolutions (combining new data (Termination II and Termination V, dotted green line) and data from Blunier et al., 2012[17] (solid green line)) over the last 5 terminations. The red arrows indicate the strongest differences between the $CO_2$ and $\Delta^{17}O$ of $O_2$ evolutions during interglacial periods.

The general anti-correlations between $CO_2$ and $\Delta^{17}O$ of $O_2$ over terminations are explained at first order by stratospheric reactions. These reactions are leading to formation of ozone from the dioxygen reservoir and are associated with mass independent isotopic fractionations. These fractionations lead to an isotopic anomaly of ozone that can be transmitted to $CO_2$. There is eventually a correspondence between the $\Delta^{17}O$ of $CO_2$ and the $\Delta^{17}O$ of $O_2$, and it has been assumed that this anomaly transmission is limited by the abundance of $CO_2$[16]. As a consequence, an increase in $CO_2$ in the absence of changes in biosphere productivity should be associated with a decrease in $\Delta^{17}O$ of $O_2$. The increase of biosphere productivity comes as an opposite effect: it produces oxygen with mass dependent isotopic fractionation which has the effect of increasing $\Delta^{17}O$ of $O_2$. The similar $CO_2$ and $\Delta^{17}O$ of $O_2$ anti-correlation observed over

179 the latest terminations is hence an indication that biosphere productivity variations are parallel
180 to the variations of atmospheric concentration in $CO_2$ and that a constant relationship exists
181 between the amplitudes of biosphere productivity variation and the amplitudes of atmospheric
182 $CO_2$ variations. As a consequence, the deviation of the classical $CO_2$ vs $\Delta^{17}O$ of $O_2$ anti-
183 correlation toward unexpectedly high $\Delta^{17}O$ of $O_2$ values should be interpreted as an anomalous
184 increase in biosphere productivity compared to the situation for other terminations. We thus
185 propose that the anomalously strong difference in the $CO_2$ and $\Delta^{17}O$ of $O_2$ evolution over the
186 first part of MIS 11 at the end of Termination V is associated with a stronger biosphere
187 productivity compared to the onset of the 4 last interglacial periods. We are aware that
188 alternative propositions can be suggested such as a decrease in the stratospheric ozone in
189 agreement with relatively high $N_2O$ atmospheric concentration (sink of ozone) during MIS 11
190 [30]. However, similarly high $N_2O$ atmospheric concentration is observed over the first part of
191 MIS 9 without associated decoupling between atmospheric $CO_2$ increase and $\Delta^{17}O$ of $O_2$
192 decrease. In the following, we thus favor the interpretation in term of an anomalous change of
193 paleoproductivity during Termination V compared to younger terminations.

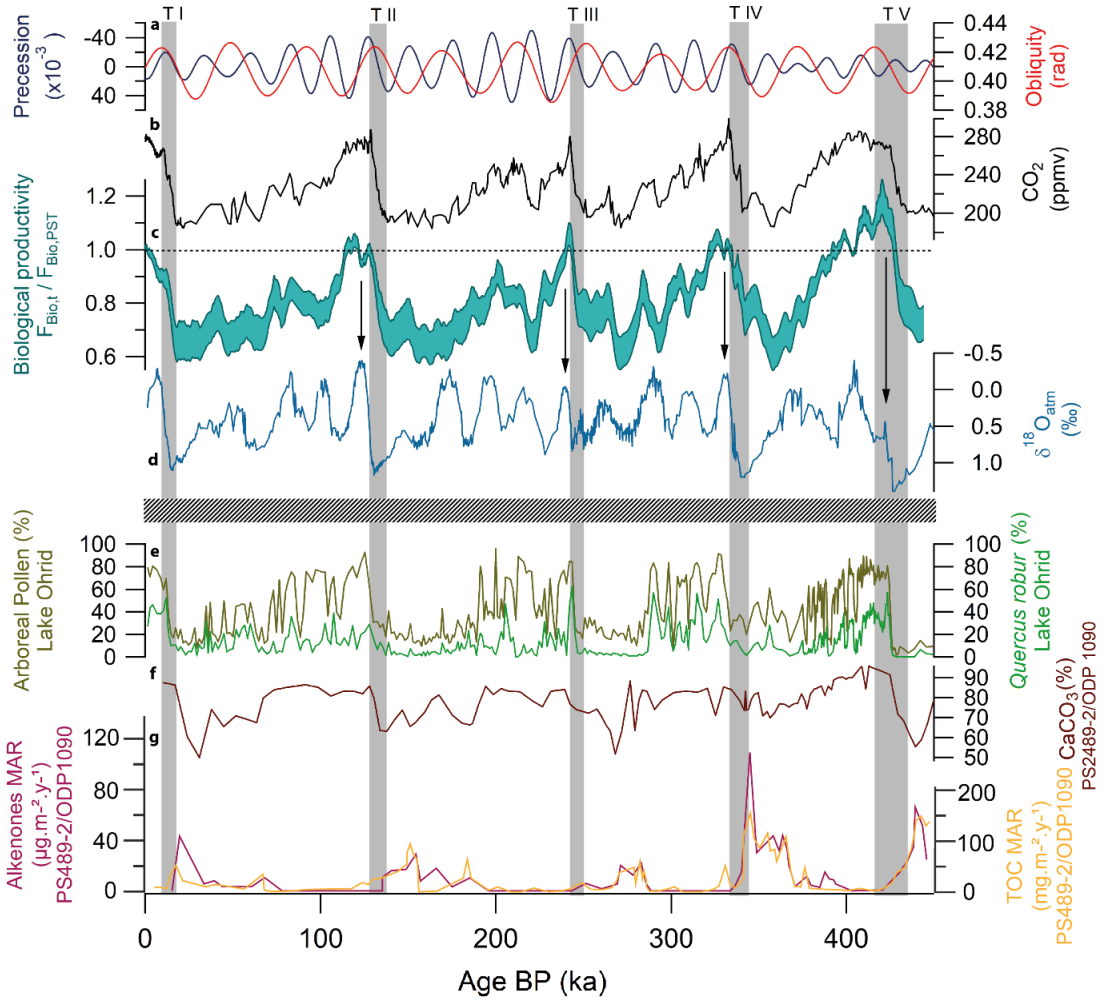
194 **Reconstruction of the global oxygen biosphere productivity**

195 For a more quantitative reconstruction of paleoproductivity based on the classical use of $\Delta^{17}O$
196 of $O_2$, we followed the approach detailed in Landais et al. (2007)[31]. This study estimates the
197 $\Delta^{17}O$ of $O_2$ values produced by the terrestrial and oceanic biospheres based on published values
198 of oxygen fractionation coefficients for the different biologic processes of oxygen uptake and
199 production[32]. Because of different proportions of C3 vs C4 plants or terrestrial vs oceanic
200 biosphere productivity ratios, the global $\Delta^{17}O$ of $O_2$ value produced by the biosphere displays
201 strong variations between glacial and interglacial periods. The triple isotopic composition of
202 oxygen produced by terrestrial and marine biosphere was estimated to vary between 157 ± 33
203 ppm and 195 ± 39 ppm for the Last Glacial Maximum and the pre-industrial period respectively,

being mainly associated with uncertainties in the fractionation coefficients for the different biospheric processes[31]. Combining these estimates with the covariation of $CO_2$ concentration and flux of negative $\Delta^{17}O$ of $O_2$ anomaly from the stratosphere, we converted the full $\Delta^{17}O$ of $O_2$ record over the last 450 ka into an estimate for the evolution of the global oxygen productivity (Fig. 3). In general, and in line with Blunier et al. (2012)[17] (Supplementary Fig. 3), the global productivity is reduced by 60-80% during glacial periods compared to interglacials. At the beginning of most interglacial periods, the global productivity remains close to the preindustrial level. The major exception to this general behavior is the strong productivity at the end of Termination V with 20% higher than pre-industrial oxygen fluxes.

## DISCUSSION

Complementary information on the origin and specificity of the $\Delta^{17}O$ of $O_2$ signal over Termination V can be obtained from the ice core $\delta^{18}O_{atm}$ (or $\delta^{18}O$ of $O_2$) record over the last 800 ka[33] (Figure 3). $\delta^{18}O_{atm}$ is a complex parameter resulting from both biosphere productivity and low latitude water cycle[34]. In particular, it has been shown that Weak Monsoon Intervals observed during Heinrich events lead to increases in $\delta^{18}O_{atm}$ via changes in the low latitude water cycle[35]. Another way to increase the $\delta^{18}O_{atm}$ is to increase the ratio between terrestrial and marine biosphere productivity[7,34]. This effect is however probably lower than initially proposed since recent finding suggests that the values of $\delta^{18}O$ of $O_2$ produced by marine and terrestrial biosphere are similar[36].




224

225 **Figure 3:** Global and regional productivity records since 450 ka; **a** Precession (dark blue) and
226 Obliquity (red)[26]; **b** $CO_2$ record[19]; **c** Ratio between global biosphere productivity and pre-
227 industrial biosphere productivity with uncertainty bars deduced from uncertainties in the value
228 of $\Delta^{17}O$ of $O_2$ produced by the earth biosphere; **d** $\delta^{18}O_{atm}$ record from the EDC ice core[33,37–41];
229 **e** Arboreal and Quercus robur pollen records (%) from Lake Ohrid, Balkan Peninsula[42,43]; **f**
230 $CaCO_3$ (%) record at Site PS2489-2/ODP1090, Atlantic Southern Ocean[44]; **g** Alkenones MAR
231 ($\mu g.m^{-2}.y^{-1}$) and TOC MAR ($mg.m^{-2}.y^{-1}$) record at Site PS2489-2/ODP1090[45]. Above the
232 horizontal hatched bar are shown the ice core records presented on the AICC2012 timescale
233 [27,28] and under are shown the terrestrial and oceanic records presented on the age model of each
234 core respectively.

As for $\Delta^{17}O$ of $O_2$, $\delta^{18}O_{atm}$ shows a particular behavior over Termination V. First, while $\delta^{18}O_{atm}$ variations over the terminations of the last 800 ka do not exhibit variations larger than 1.5 ‰ [33], the $\delta^{18}O_{atm}$ decrease over Termination V is of 1.8 ‰. The highest level of $\delta^{18}O_{atm}$ (1.43 ‰) is reached during Termination V at the beginning of the main increase of productivity inferred from $\Delta^{17}O$ of $O_2$. In contrast with the other interglacial periods where the maximum in biosphere productivity corresponds to a minimum of $\delta^{18}O_{atm}$, there is no minimum of $\delta^{18}O_{atm}$ observed at the beginning of MIS 11 (~420 ka) (Figure 3). The minimum in $\delta^{18}O_{atm}$ actually occurs toward the end of MIS 11, i.e. around 405 ka. The anomalously high $\delta^{18}O_{atm}$ at the time of peak biosphere productivity inferred from $\Delta^{17}O$ of $O_2$ cannot be explained by a weak monsoon period in opposite to an explanation given for high $\delta^{18}O_{atm}$ levels observed over the last 800 ka[46]. Indeed, data from other archives rather show a relatively strong East Asia monsoon activity during MIS 11 similarly to what is observed over the last 4 interglacial periods [47,48]. Instead, this strong $\delta^{18}O_{atm}$ values should be interpreted as an increase of the terrestrial vs marine productivity ratio expressed in flux of oxygen.

In most cases, continental records are too short and not well dated enough to study the dynamic of vegetation and TOC over this termination. Moreover, hiatus of pollen data from marine records often prevent to study Termination V with high resolution. The best regional information on the terrestrial productivity covering the last 450 ka can be recovered from palynological studies of sediments from Ohrid[42,43], El'gygytgyn[14] and Tenaghi Philippon[13] lakes, and from marine cores (e.g. IODP Site U1385[49]). Pollen records can be used as indirect information on terrestrial biosphere productivity knowing the primary productivity associated with each ecosystem[50]. From this, the aforementioned records from the Northern Hemisphere suggest an increase in terrestrial productivity during Termination V until mid-MIS 11 through the growth of plants associated with high productivity (Arboreal pollen, *Quercus robur*, Figure 3). This increase is similar in percentage to the largest terminations of the last 400 ka (e.g.

Termination II is similar to Termination V in term of rise in pollen percentage) but the pollen peak lasts longer (Supplementary Fig. 4). In parallel, the very high and long-lasting TOC accumulation recorded in lake sediments[14,51] is the consequence of a strong and longer deglacial productivity[13,14,42,43]. These regional indications of terrestrial productivity are in agreement with the increase in global productivity inferred from $\Delta^{17}O$ of $O_2$ and increase in the terrestrial vs oceanic productivity ratio inferred from $\delta^{18}O_{atm}$.

Several factors could explain the higher terrestrial productivity recorded during Termination V and MIS 11 compared to other younger terminations. First, the relatively slow sea level rise over Termination V[52] leaves some emerged vegetated terrestrial platforms (e.g. Sunda plate) at the very beginning of MIS 11. Then, terrestrial biosphere productivity could be favoured in a context of low eccentricity leading to less pronounced seasonality. In addition, the melting of greater ice sheet volumes in the Northern Hemisphere during MIS 11 led to more available lands[14,51], favouring plant development/productivity. Some also suggest a more humid and warm climate, with higher precipitation (100 to 300 mm higher) compared to MIS 1[14,51].

In the Ocean, only one component of the Biological Carbon Pump is expected to impact the $\Delta^{17}O$ of $O_2$: the net export of organic carbon produced by phytoplankton from the sunlit ocean to the deep ocean (Soft-Tissue Pump). The production of calcium carbonate by calcifying plankton and its export to the deep ocean (Carbonate Counter Pump) has an impact on atmospheric $pCO_2$ but does not affect oxygen fluxes. Because very few data of productivity exist spanning the last 450 ka (in particular in the SAZ of the Southern Ocean expected to show significant variations over terminations), we discuss here information from both biological pumps that are inferred from sedimentary TOC, alkenone mass accumulation rate (MAR) and $CaCO_3$ percentages respectively. At site PS2489-2/ODP1090, located within the Atlantic sector of the Subantarctic Southern Ocean, the records show decreases in alkenones and TOC MARs correlated with increases in $CaCO_3$ percentages during the Terminations V to I (Figure 3)[44,45].

285 Termination V displays variations with the largest amplitudes. The sharp decrease in organic
286 matter can be interpreted as a significant decrease in biological productivity in the SAZ of the
287 Southern Ocean associated with oxygen flux, hence in agreement with the increase of terrestrial
288 vs oceanic productivity over Termination V inferred from $\delta^{18}O_{atm}$. The abrupt rise in $CaCO_3$
289 content, associated with the exceptional production and accumulation of the coccolith
290 *Gephyrocapsa caribbeanica* worldwide[21] and particularly within the SAZ of the Southern
291 Ocean [23] at the beginning of, and during Termination V, is more difficult to interpret
292 straightforwardly in term of increased biological productivity but supports the exceptional
293 biological context over Termination V.

294

295 Finally, in the low-latitude ocean, and the period around MIS 11 is marked by a strong increase
296 in reef carbonate accumulation. The sea level rise documented at that time immersed platforms
297 and partly enabled the strong coral production[22]. This worldwide increase in carbonate
298 production and preservation is in phase with the rise in atmospheric $CO_2$ concentration at the
299 beginning of Termination V. This effect is indeed expected to increase considerably the
300 atmospheric $CO_2$ concentration[23,53]. However, and opposite to the evolution of atmospheric
301 $CO_2$ concentration over the other interglacial periods, the onset of MIS 11 is not associated with
302 the highest $CO_2$ level of the whole interglacial period. The maximum in atmospheric $CO_2$
303 concentration is actually observed more than 10 ka after the onset of MIS 11, i.e. at the time
304 when global biosphere productivity as inferred from $\Delta^{17}O$ of $O_2$ is decreasing. We thus propose
305 that the strong peak of terrestrial productivity over Termination V, mainly driven by terrestrial
306 biosphere, might slow down the increase of atmospheric $CO_2$ concentration induced by the
307 carbonate production.

308

## CONCLUSION

Our new record of $\Delta^{17}O$ of $O_2$ over Termination V reveals a very different picture from the evolution observed over the last 4 terminations: $\Delta^{17}O$ of $O_2$ is not strongly anti-correlated with $CO_2$ which should be interpreted as an anomalous evolution of the biosphere productivity during Termination V and beginning of MIS 11. The global oxygen biosphere productivity is larger by about 20% at the beginning of MIS 11 compared to the productivity observed at the onset of the younger interglacial periods. Comparison with the $\delta^{18}O_{atm}$ record over the last 800 ka and the few available data on continent and ocean shows that this exceptional productivity increase is mainly due to an increase in terrestrial productivity. In parallel, the exceptional change in the carbonate cycle in marine environment also suggests that this peak in biosphere productivity may have contributed to maintain the atmospheric $CO_2$ concentration at relatively low level at the beginning of MIS 11 while strong carbonate export would have the opposite tendency of increasing it.

Finally, this important result on the global productivity calls for future studies, especially at the regional scale through measurements of productivity proxies in marine and continental scales over Termination V. This study should also be extended to other terminations and refines over recent Terminations (e.g. Termination III where $\Delta^{17}O$ of $O_2$ resolution is very low). The comparisons of high resolution records of $CO_2$ and $\Delta^{17}O$ of $O_2$ should permits to study the coupled dynamic of biosphere productivity and carbon cycle associated with large climate changes.

# Method

## Material

The ice samples used for this study come from bag samples allocated to gas consortium (A cut) of the EPICA Dome C 2 ice core. They were stored after drilling (2002-2003) in France (Fontanil) at -20°C before being transported to LSCE, Gif sur Yvette in December 2017 for analysis in first semester of 2018. In total, 53 ice samples were analyzed but 3 samples were lost due to an excess of pressure in the line.

## Extraction of air trapped in bubble from ice

Extraction of air trapped in bubbles of ice was performed using a semi-automatic extraction and separation line. A 5 mm-thick section of ice was removed from each sample prior to measurement to prevent any contamination from ambient air or drilling fluid. The sample is then introduced in a frozen flask (-20°C) attached to the extraction line together with 5cc flasks of outside air (standard for isotopic composition of oxygen). For each daily sequence, 2 flasks of exterior air and 3 duplicated ice samples (i.e. 6 ice samples) were analyzed. After pumping the line 40 minutes with samples kept at -20°C, the ice samples are melted to extract the air trapped in the bubble from the melted ice. The air then goes through $H_2O$ and $CO_2$ traps immersed in ethanol cooled at -90°C and in liquid nitrogen (-196°C) respectively. The gas sample is transferred in a molecular sieve at -196°C, then in a chromatographic column (1m*2mm) to separate $O_2$ and Ar from $N_2$ and finally goes through another molecular sieve to purify $O_2$ and Ar from remaining He. The extracted air is then trapped in stainless-steel tubes in an 8 port collection manifold immerged in liquid helium (4,13 K). The method follow description from Barkan and Luz (2003)[54] except that the chromatographic column is longer (1 m instead of 20 cm) and kept at higher temperature (0°C instead of -90°C).

**Mass spectrometer measurements**

Measurements of $^{18}O/^{16}O$, $^{17}O/^{16}O$ and $^{32}O_2/^{40}Ar$ ($\delta O_2/Ar$) were performed using a multi-collector mass spectrometer Thermo Scientific MAT253 run in dual inlet mode. For each extracted air sample, 3 runs of 24 dual inlet measurements were performed against a laboratory standard gas obtained by mixing commercial $O_2$ and commercial Ar in atmospheric concentration. The mean of the three runs were calculated for each sample and the standard mean deviation is calculated as the pooled standard deviation over all duplicate samples hence integrating the variability associated with extraction, separation and mass spectrometry analysis.

The resulting pooled standard deviations before the corrections are 0.05‰, 0.02‰, 6.4‰ and 6 per meg for $\delta^{18}O_{atm}$, $\delta^{17}O_{atm}$, $\delta O_2/Ar$ measurements and $\Delta^{17}O$ of $O_2$ calculation, respectively.

**Corrections on $\Delta^{17}O$ of $O_2$**

**Atmospheric air calibration.** Every day, $\delta^{18}O$, $\delta^{17}O$ and $\delta O_2/Ar$ of atmospheric air are measured and are then used to calibrate our measurements following:

$$\delta^{18}O_{ext\ air\ corr} = \left[\frac{\left(\delta^{18}O_{sample}/1000\right)+1}{\left(\delta^{18}O_{ext\ air}/1000\right)+1} - 1\right] * 1000$$

$$\delta^{17}O_{ext\ air\ corr} = \left[\frac{\left(\delta^{17}O_{sample}/1000\right)+1}{\left(\delta^{17}O_{ext\ air}/1000\right)+1} - 1\right] * 1000$$

The $\delta^{18}O_{ext}$ air and $\delta^{17}O_{ext}$ air were constant during the two measurement periods so that we used the average values over the two corresponding periods to correct the raw data. The daily correction was the same every day during each period.

**Correction due to fractionation in the firn column**

- **Gravitational fractionation**

Gravitational fractionation operates in firn due to Earth gravity field. $\delta^{18}O$ and $\delta^{17}O$ were corrected from this diffusive process using $\delta^{15}N$ in neighboring samples[55]. The correction applied depends on the difference of mass between the two isotopes considered so that:

$$\delta^{18}O_{gravitational\ corr} = \delta^{18}O_{measured} - 2 * \delta^{15}N$$

$$\delta^{17}O_{gravitational\ corr} = \delta^{17}O_{measured} - 1 * \delta^{15}N$$

- **Thermal fractionation**

In the firn column, diffusive processes operate due to changes in temperature or because of the Earth gravity. These processes lead to isotopic fractionation of $O_2$ that was taken into account for $\delta^{18}O_{atm}$ reconstruction in the NGRIP ice core over abrupt temperature changes of the last glacial period[56].

To check the effect of thermal fractionation on $\Delta^{17}O$ of $O_2$, we performed measurements of $\Delta^{17}O$ of $O_2$ over the top 20 m of the EastGRIP firn were a strong seasonal gradient is present. However, the resulting $\Delta^{17}O$ of $O_2$ was not showing any significant deviation from the atmospheric value hence suggesting that thermal fractionation does not modify the $\Delta^{17}O$ of $O_2$ of the atmosphere in the firn column. Moreover, in Antarctica, surface temperature variations are much lower than in Greenland during deglaciations or climatic variability of the last glacial period so that thermal fractionation is not expected to have a significant effect on the isotopic composition of trapped oxygen.

- **Pore close-off effect**

Pore close-off at the bottom of the firn has been shown to affect $\delta O_2/N_2$, $\delta Ar/N_2$ with potential effects on $\delta^{15}N$ and $\delta^{40}Ar$ in certain cases[57]. We checked this possible effect on $\Delta^{17}O$ of $O_2$ by comparing $\Delta^{17}O$ of $O_2$ in bubbly ice at the top of the NEEM ice core. After correction of gravitational effect, we found a systematic enrichment of 13 per meg which could potentially bias the reconstruction of atmospheric $\Delta^{17}O$ of $O_2$ from $\Delta^{17}O$ of $O_2$ in trapped air.

**Gas loss correction.** During storage, $O_2$ in ice samples is subject to gas loss fractionation due to diffusion processes [58] and $O_2/N_2$ ratio is systematically lower by several % in ice samples stored several years at -20°C than ice samples stored at -50°C[59]. Such gas loss effect is also associated with isotopic fractionation of oxygen, $\delta^{18}O_{atm}$ trapped in the ice being higher when $\delta O_2/N_2$ decreases with a slope for the relationship of -0.01 ($\delta^{18}O_{atm}$ vs $\delta O_2/N_2$)[33,60–62]. We thus expect that $\delta^{17}O$ can also be affected by this gas loss process and that it may create an anomaly of $\Delta^{17}O$ of $O_2$. To check this effect, measurements of $\delta^{17}O$, $\delta^{18}O_{atm}$, $\Delta^{17}O$ of $O_2$ and $\delta O_2/Ar$ have been performed on 3 samples of GRIP ice core (clathrate ice stored during more than 20 years at -20°C). Each of the 3 ice samples have been cut in order to analyse the interior and the exterior of the sample separately. $\delta O_2/N_2$ measurements could not be performed on exactly the same samples so that we used the $\delta O_2/Ar$ measurements to estimate the amount of oxygen loss. Argon is also known to be affected by gas loss[58,61] but in a smaller extend than oxygen[63] so that the decrease of $\delta O_2/Ar$ is still a good indication of larger gas loss.

Data show a systematic lower $\Delta^{17}O$ of $O_2$ value in the "exterior" sample compared to the "interior" sample, paralleling the lower $\delta O_2/Ar$ value in the "exterior" sample compared to the "interior" sample as expected by gas loss (Table S1). This systematic relationship and the $\Delta^{17}O$

of $O_2$ and $\delta O_2/Ar$ values can be used to propose a correction for the $\Delta^{17}O$ of $O_2$ that takes into account the gas loss effect:

$$\Delta^{17}O_{gas\ loss\ corr} = \Delta^{17}O_{sample} - 0.3945 * [(\delta O_2/Ar)_{sample} - (\delta O_2/Ar)_{std}]$$

**Comparison of EDC $\Delta^{17}O$ of $O_2$ with previous $\Delta^{17}O$ of $O_2$ record.** Previous $\Delta^{17}O$ of $O_2$ measurements only took into account correction linked with gravitational fractionation. As a consequence, we checked the consistency of previous record performed on the GISP2 and Vostok ice core with our new EDC data by measuring again $\Delta^{17}O$ of $O_2$ over Termination 2 using EDC samples and integrating the aforementioned correction. The comparison is displayed in Supplementary Fig. 2.

**Calculation of the flux of oxygen associated with biosphere productivity**. We follow here the calculation of the flux of oxygen associated with biosphere productivity described in Landais et al. (2007)[31].

Since the atmospheric $\Delta^{17}O$ of $O_2$ ($\square^{17}O_{atm}$) is influenced by the exchanges with biosphere and stratosphere, it is possible to write the following equation in a 3-box system at equilibrium (biosphere –bio -, atmosphere – atm-, stratosphere – strat-):

$$F_{bio} * (\Delta^{17}O_{bio} - \Delta^{17}O_{atm}) = F_{strat} * (\Delta^{17}O_{strat} - \Delta^{17}O_{atm})$$

Where $F_{bio}$ is the flux of oxygen exchanged by photosynthesis and respiration (both fluxes being considered at equilibrium) and $F_{strat}$ is the flux of oxygen exchanged between the lower

448 atmosphere (or troposphere) and the stratosphere (fluxes in and out of the stratosphere are
449 assumed equal).

450

451 To reconstruct past biospheric fluxes between terrestrial/oceanic biosphere and atmosphere
452 based on $\Delta^{17}O$ of $O_2$, it is necessary to know the evolution of the stratospheric flux as well as
453 of the $\square^{17}O_{strat}$. Luz et al (1999)[16] and Blunier et al. (2012)[17] showed that a good assumption is
454 to consider that the production rate of depleted $O_2$ in the stratosphere can be related to the
455 atmospheric $CO_2$ concentration. It is then possible to express the evolution of biosphere oxygen
456 flux in the past compared to pre-industrial from the following equation:

457

458 $$\frac{F_{bio,t}}{F_{bio,pre-industrial}} = \frac{(CO_2)_t}{(CO_2)_{pre-industrial}} * \frac{\Delta^{17}O_{bio,pre-industrial}}{\Delta^{17}O_{bio,t} - \Delta^{17}O_{atm,t}}$$

459

460 Where $F_{bio,t}$ is the biosphere oxygen flux at a given time, $F_{bio,pre\text{-}industrial}$ is the present time
461 biosphere oxygen flux, $(CO_2)_t$ and $(CO_2)_{pre\text{-}industrial}$ correspond to the atmospheric $CO_2$
462 concentration at a given time and at the pre-industrial period respectively, $\Delta^{17}O_{bio,pre\text{-}industrial}$ and
463 $\Delta^{17}O_{bio,t}$ are the values of $\Delta^{17}O$ of $O_2$ in an atmosphere that would only be influenced by
464 exchanges with the biosphere at the present time and at a given time respectively. $\Delta^{17}O_{atm,t}$ is
465 the $\Delta^{17}O$ of $O_2$ of the atmosphere at a given time measured in the air trapped in ice core. We
466 refer to pre-industrial period because of the long residence time of oxygen in the atmosphere (>
467 1000 years), $\Delta^{17}O$ of $O_2$ isn't exhibiting any significant variation over the last centuries.

468

$\Delta^{17}O_{bio}$ can be calculated from the fractionation coefficients associated with the different processes leading to oxygen fluxes in the biosphere (mainly photosynthesis, dark respiration and photorespiration). Detailed calculations of $\Delta^{17}O_{bio}$ at the LGM and pre-industrial periods were obtained in Landais et al. (2007)[31] taking into account uncertainties in the determination of the fractionation coefficients[32] as well as on the relative fluxes of oxygen (Supplementary Table 2). We are aware that more recent estimates of fractionation coefficients within the oxygen cycle are available[36,64] as well as updated versions of the vegetation model used in Landais et al. (2007)[31,35,65] Incorporating these recent estimates is the subject of a separated on-going study with incorporation of oxygen in a coupled vegetation – climate model. It is beyond the current study and does not affect our main conclusions since large uncertainties are already taken into account in Table S2.

From the calculation of $\Delta^{17}O_{bio,\ pre\text{-}industrial}$ and $\Delta^{17}O_{bio,LGM}$ (Supplementary Table 2), it is possible to calculate $\Delta^{17}O_{bio,t}$ through a scaling on the variations of $CO_2$ concentration between pre-industrial period (280 ppmv) and the LGM (190 ppmv)[66] such as:

$$\Delta^{17}O_{bio,t} = \Delta^{17}O_{bio,pre-industrial} + \left(\Delta^{17}O_{bio,LGM} - \Delta^{17}O_{bio,pre-industrial}\right) * \left(\frac{280 - (CO_2)_t}{90}\right)$$

A validation of our calculation comes from the comparison with the oxygen biosphere productivity variations obtained by Blunier et al. (2012)[17] over the last 4 terminations using a different vegetation model and assumption of variations in the triple isotopic composition of oxygen in water between glacial and interglacial periods (Supplementary Fig 3). The smaller difference in the oxygen flux associated with oxygen productivity between glacial and

interglacial periods in Blunier et al. (2012)[17] mainly comes from the variations in the triple isotopic composition of oxygen in water between glacial and interglacial periods not taken into account in Landais et al. (2007)[31]. We also did not take this variation into account here. Indeed, while these variations were observed in the ice core of the extremely cold site of Vostok[67], they were not observed in other Antarctic and Greenland ice cores[68,69].

## References


1. Lüthi, D. *et al.* High-resolution carbon dioxide concentration record 650,000–800,000 years before present. *Nature* **453**, 379–382 (2008).
2. Ciais, P. *et al.* Carbon and other biogeochemical cycles. in *Climate change 2013: the physical science basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* 465–570 (Cambridge University Press, 2014).
3. Volk, T. & Hoffert, M. I. Ocean Carbon Pumps: Analysis of Relative Strengths and Efficiencies in Ocean-Driven Atmospheric CO 2 Changes. in *Geophysical Monograph Series* 99–110 (1985).
4. Stephens, B. B. & Keeling, R. F. The influence of Antarctic sea ice on glacial-interglacial CO 2 variations. *Nature* **404**, 171–175 (2000).
5. Menviel, L. *et al.* Southern Hemisphere westerlies as a driver of the early deglacial atmospheric CO2 rise. *Nature Communications* **9**, (2018).
6. Crichton, K. A., Bouttes, N., Roche, D. M., Chappellaz, J. & Krinner, G. Permafrost carbon as a missing link to explain CO 2 changes during the last deglaciation. *Nature Geoscience* **9**, 683–686 (2016).
7. Ciais, P. *et al.* Large inert carbon pool in the terrestrial biosphere during the Last Glacial Maximum. *Nature Geoscience* **5**, 74–79 (2012).

8. Brovkin, V. *et al.* Comparative carbon cycle dynamics of the present and last interglacial. *Quaternary Science Reviews* **137**, 15–32 (2016).
9. Tagliabue, A. *et al.* Quantifying the roles of ocean circulation and biogeochemistry in governing ocean carbon-13 and atmospheric carbon dioxide at the last glacial maximum. *Climate of the Past* **5**, 695–706 (2009).
10. Toggweiler, J. R. Variation of atmospheric $CO_2$ by ventilation of the ocean's deepest water. *Paleoceanography* **14**, 571–588 (1999).
11. Duchamp-Alphonse, S. *et al.* Enhanced ocean-atmosphere carbon partitioning via the carbonate counter pump during the last deglacial. *Nature Communications* **9**, (2018).
12. Martínez-Garcia, A. *et al.* Southern Ocean dust–climate coupling over the past four million years. *Nature* **476**, 312–315 (2011).
13. Tzedakis, P. C., Hooghiemstra, H. & Pälike, H. The last 1.35 million years at Tenaghi Philippon: revised chronostratigraphy and long-term vegetation trends. *Quaternary Science Reviews* **25**, 3416–3430 (2006).
14. Melles, M. *et al.* 2.8 Million Years of Arctic Climate Change from Lake El'gygytgyn, NE Russia. *Science* **337**, 315–320 (2012).
15. Schmitt, J. *et al.* Carbon Isotope Constraints on the Deglacial CO2 Rise from Ice Cores. *Science* **336**, 711–714 (2012).
16. Luz, B., Barkan, E., Bender, M. L., Thiemens, M. H. & Boering, K. A. Triple-isotope composition of atmospheric oxygen as a tracer of biosphere productivity. *Nature* **400**, 547–550 (1999).
17. Blunier, T., Bender, M. L., Barnett, B. & von Fischer, J. C. Planetary fertility during the past 400 ka based on the triple isotope composition of $O_2$ in trapped gases from the Vostok ice core. *Climate of the Past* **8**, 1509–1526 (2012).

18. Raymo, M. E. & Mitrovica, J. X. Collapse of polar ice sheets during the stage 11 interglacial. *Nature* **483**, 453–456 (2012).
19. Siegenthaler, U. Stable Carbon Cycle-Climate Relationship During the Late Pleistocene. *Science* **310**, 1313–1317 (2005).
20. Cabioch, G. *et al.* The chronology and structure of the western New Caledonian barrier reef tracts. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology* **268**, 91–105 (2008).
21. Barker, S. *et al.* Globally increased pelagic carbonate production during the Mid-Brunhes dissolution interval and the CO2 paradox of MIS 11. *Quaternary Science Reviews* **25**, 3278–3293 (2006).
22. Husson, L. *et al.* Reef Carbonate Productivity During Quaternary Sea Level Oscillations. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems* **19**, 1148–1164 (2018).
23. Saavedra-Pellitero, M., Baumann, K.-H., Ullermann, J. & Lamy, F. Marine Isotope Stage 11 in the Pacific sector of the Southern Ocean; a coccolithophore perspective. *Quaternary Science Reviews* **158**, 1–14 (2017).
24. de Vernal, A. & Hillaire-Marcel, C. Natural Variability of Greenland Climate, Vegetation, and Ice Volume During the Past Million Years. *Science* **320**, 1622–1625 (2008).
25. Blunier, T., Barnett, B., Bender, M. L. & Hendricks, M. B. Biological oxygen productivity during the last 60,000 years from triple oxygen isotope measurements. *Global Biogeochemical Cycles* **16**, 3-1-3–13 (2002).
26. Laskar, J. *et al.* A long-term numerical solution for the insolation quantities of the Earth. *Astronomy & Astrophysics* **428**, 261–285 (2004).
27. Bazin, L. *et al.* An optimized multi-proxy, multi-site Antarctic ice and gas orbital chronology (AICC2012): 120-800 ka. *Clim. Past* **9**, 1715–1731 (2013).

28. Veres, D. *et al.* The Antarctic ice core chronology (AICC2012): an optimized multi-parameter and multi-site dating approach for the last 120 thousand years. *Clim. Past* **9**, 1733–1748 (2013).
29. Yau, A. M., Bender, M. L., Marchant, D. R. & Mackay, S. L. Geochemical analyses of air from an ancient debris-covered glacier, Antarctica. *Quaternary Geochronology* **28**, 29–39 (2015).
30. Schilt, A. *et al.* Glacial–interglacial and millennial-scale variations in the atmospheric nitrous oxide concentration during the last 800,000 years. *Quaternary Science Reviews* **29**, 182–192 (2010).
31. Landais, A., Lathiere, J., Barkan, E. & Luz, B. Reconsidering the change in global biosphere productivity between the Last Glacial Maximum and present day from the triple oxygen isotopic composition of air trapped in ice cores. *Global Biogeochemical Cycles* **21**, GB1025 (2007).
32. Helman, Y., Barkan, E., Eisenstadt, D., Luz, B. & Kaplan, A. Fractionation of the Three Stable Oxygen Isotopes by Oxygen-Producing and Oxygen-Consuming Reactions in Photosynthetic Organisms. *Plant Physiol.* **138**, 2292 (2005).
33. Extier, T. *et al.* On the use of δ 18 O atm for ice core dating. *Quaternary Science Reviews* **185**, 244–257 (2018).
34. Bender, M., Sowers, T. & Labeyrie, L. The Dole Effect and its variations during the last 130,000 years as measured in the Vostok Ice Core. *Global Biogeochemical Cycles* **8**, 363–376 (1994).
35. Reutenauer, C. *et al.* Quantifying molecular oxygen isotope variations during a Heinrich stadial. *Climate of the Past* **11**, 1527–1551 (2015).
36. Luz, B. & Barkan, E. The isotopic composition of atmospheric oxygen. *Global Biogeochemical Cycles* **25**, GB3001 (2011).

589 37. Petit, J. R. *et al.* Climate and atmospheric history of the past 420,000 years from the
590 Vostok ice core, Antarctica. **399**, 8 (1999).
591 38. Dreyfus, G. B. *et al.* Anomalous flow below 2700 m in the EPICA Dome C ice core
592 detected using δ18O of atmospheric oxygen measurements. *Clim. Past* 13 (2007).
593 39. Dreyfus, G. B. *et al.* An ice core perspective on the age of the Matuyama–Brunhes
594 boundary. *Earth and Planetary Science Letters* **274**, 151–156 (2008).
595 40. Landais, A. *et al.* Two-phase change in CO2, Antarctic temperature and global climate
596 during Termination II. *Nature Geoscience* **6**, 1062–1065 (2013).
597 41. Bazin, L. *et al.* Phase relationships between orbital forcing and the composition of air
598 trapped in Antarctic ice cores. *Climate of the Past* **12**, 729–748 (2016).
599 42. Sadori, L. *et al.* Pollen-based paleoenvironmental and paleoclimatic change at Lake Ohrid
600 (south-eastern Europe) during the past 500 ka. *Biogeosciences* **13**, 1423–1437 (2016).
601 43. Kousis, I. *et al.* Centennial-scale vegetation dynamics and climate variability in SE
602 Europe during Marine Isotope Stage 11 based on a pollen record from Lake Ohrid.
603 *Quaternary Science Reviews* **190**, 20–38 (2018).
604 44. Diekmann, B. & Kuhn, G. Sedimentary record of the mid-Pleistocene climate transition in
605 the southeastern South Atlantic (ODP Site 1090). *Palaeogeography, Palaeoclimatology,*
606 *Palaeoecology* **182**, 241–258 (2002).
607 45. Martínez-Garcia, A. *et al.* Links between iron supply, marine productivity, sea surface
608 temperature, and $CO_2$ over the last 1.1 Ma. *Paleoceanography* **24**, PA1207 (2009).
609 46. Landais, A. *et al.* What drives the millennial and orbital variations of δ18Oatm?
610 *Quaternary Science Reviews* **29**, 235–246 (2010).
611 47. Cheng, H. *et al.* The Asian monsoon over the past 640,000 years and ice age terminations.
612 *Nature* **534**, 640–646 (2016).

48. Gallagher, S. J. *et al.* East Asian Monsoon History and Paleoceanography of the Japan Sea Over the Last 460,000 Years. *Paleoceanography and Paleoclimatology* (2018).
49. Oliveira, D. *et al.* The complexity of millennial-scale variability in southwestern Europe during MIS 11. *Quaternary Research* **86**, 373–387 (2016).
50. Whittaker, R. Communities and Ecosystems. 2-ed. New York, Mac. (1975).
51. Prokopenko, A. A., Bezrukova, E. V., Khursevich, G. K., Solotchina, E. P. & Kuzmin, M. I. Climate in continental interior Asia during the longest interglacial of the past 500 000 years: the new MIS 11 records from Lake Baikal, SE Siberia. *Climate of the Past Discussions* **5**, 1951–1988 (2009).
52. Spratt, R. M. & Lisiecki, L. E. A Late Pleistocene sea level stack. *Clim. Past* **12**, 1079–1092 (2016).
53. Droxler, A. W., Alley, R. B., Howard, W. R., Poore, R. Z. & Burckle, L. H. Unique and exceptionally long interglacial marine isotope stage 11: Window into Earth warm future climate. in *Geophysical Monograph Series* **137**, 1–14 (2003).
54. Barkan, E. & Luz, B. High-precision measurements of17O/16O and18O/16O of O2 and O2/Ar ratio in air. *Rapid Communications in Mass Spectrometry* **17**, 2809–2814 (2003).
55. Dreyfus, G. B. *et al.* Firn processes and δ15N: potential for a gas-phase climate proxy. *Quaternary Science Reviews* **29**, 28–42 (2010).
56. Landais, A. *et al.* The glacial inception as recorded in the NorthGRIP Greenland ice core: timing, structure and associated abrupt temperature changes. *Climate Dynamics* **26**, 273–284 (2005).
57. Severinghaus, J. & Battle, M. Fractionation of gases in polar ice during bubble close-off: New constraints from firn air Ne, Kr and Xe observations. *Earth and Planetary Science Letters* **244**, 474–500 (2006).

637 58. Bender, M., Sowers, T. & Lipenkov, V. On the concentrations of $O_2$ , $N_2$ , and Ar in
638 trapped gases from ice cores. *Journal of Geophysical Research* **100**, 18651 (1995).
639 59. Ikeda-Fukazawa, T. *et al.* Effects of molecular diffusion on trapped gas composition in
640 polar ice cores. *Earth and Planetary Science Letters* **229**, 183–192 (2005).
641 60. Landais, A. A tentative reconstruction of the last interglacial and glacial inception in
642 Greenland based on new gas measurements in the Greenland Ice Core Project (GRIP) ice
643 core. *Journal of Geophysical Research* **108**, (2003).
644 61. Severinghaus, J. P., Beaudette, R., Headly, M. A., Taylor, K. & Brook, E. J. Oxygen-18
645 of O2 Records the Impact of Abrupt Climate Change on the Terrestrial Biosphere.
646 *Science* **324**, 1431–1434 (2009).
647 62. Capron, E. L'air piégé dans les glaces polaires: Contraintes chronologiques et
648 caractérisation de la variabilité climatique rapide.
649 63. Kobashi, T. *et al.* Post-bubble close-off fractionation of gases in polar firn and ice cores:
650 effects of accumulation rate on permeation through overloading pressure. *Atmospheric*
651 *Chemistry and Physics* **15**, 13895–13914 (2015).
652 64. Angert, A. *et al.* The contribution of respiration in tree stems to the Dole Effect.
653 *Biogeosciences* **9**, 4037–4044 (2012).
654 65. Qiu, C. *et al.* ORCHIDEE-PEAT (revision 4596), a model for northern peatland CO2,
655 water, and energy fluxes on daily to annual scales. *Geoscientific Model Development* **11**,
656 497–519 (2018).
657 66. Barnola, J.-M., Raynaud, D., Korotkevich, Y. S. & Lorius, C. Vostok ice core provides
658 160,000-year record of atmospheric CO2. *Nature* **329**, 408 (1987).
659 67. Landais, A., Barkan, E. & Luz, B. Record of $\delta^{18}$ O and $^{17}$ O-excess in ice from Vostok
660 Antarctica during the last 150,000 years. *Geophysical Research Letters* **35**, (2008).

68. Winkler, R. *et al.* Deglaciation records of $^{17}O$-excess in East Antarctica: reliable reconstruction of oceanic normalized relative humidity from coastal sites. *Climate of the Past* **8**, 1–16 (2012).
69. Landais, A. *et al.* Ice core evidence for decoupling between mid-latitude atmospheric water cycle and Greenland temperature during the last deglaciation. *Climate of the Past Discussions* 1–24 (2018).

## Acknowledgments

This work benefited from funding from the ANR program HUMI17 as well as the CNRS-LEFE program BIOCOD. M.B. receives an IDEX-IDI PhD grant from Paris-Saclay. It is a contribution to the European Project for Ice Coring in Antarctica (EPICA). It is a pleasure to thank also Jean Jouzel, Jochen Schmitt and Michael Bender for useful discussions. We also thank Gregory Teste involved in cutting EDC samples.

## Author contributions

A.L., S.D.A and M.B. designed this study. M.B, F.P., V.F, H.A and L.S performed the $\Delta^{17}O$ of $O_2$ measurements. M.B and A.L. corrected the data and calculated the flux of oxygen biosphere productivity with the help of T.B.. M.B., A.L. and S.D.A. wrote the manuscript with the contribution of T.B and T.E.

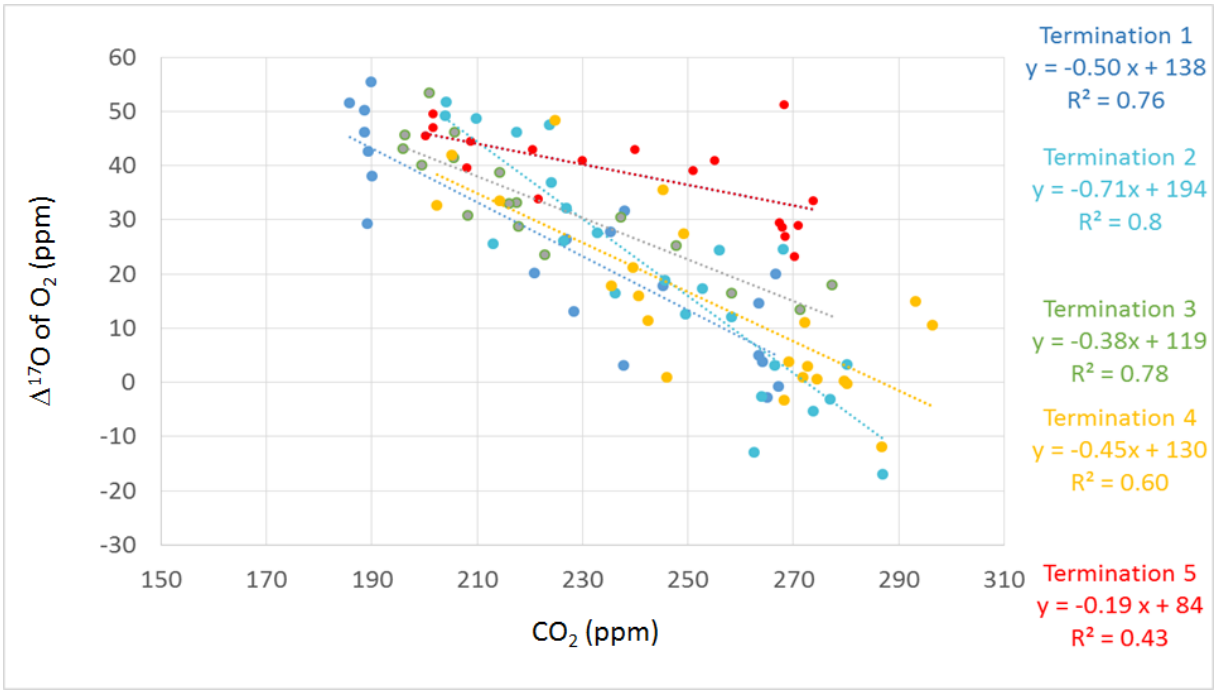
**Competing interests:** The authors declare no competing interests.

686 Exceptionally high biosphere productivity at the beginning of Marine Isotopic Stage 11

687

688 SUPPLEMENTARY INFORMATION

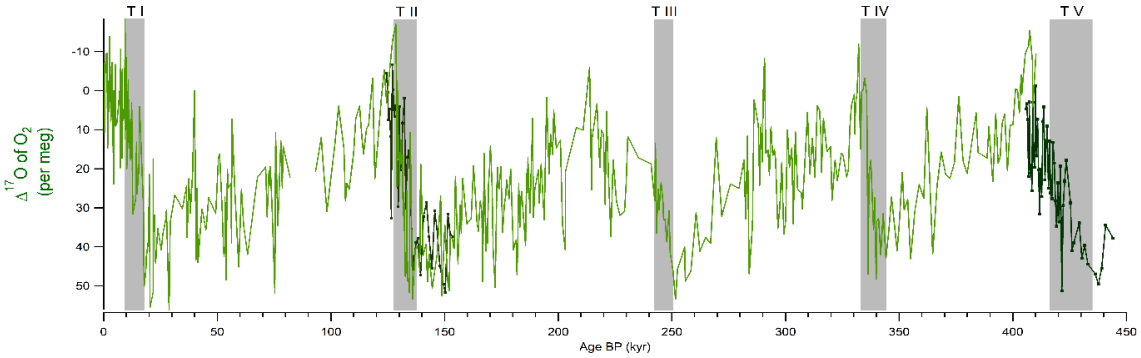
689



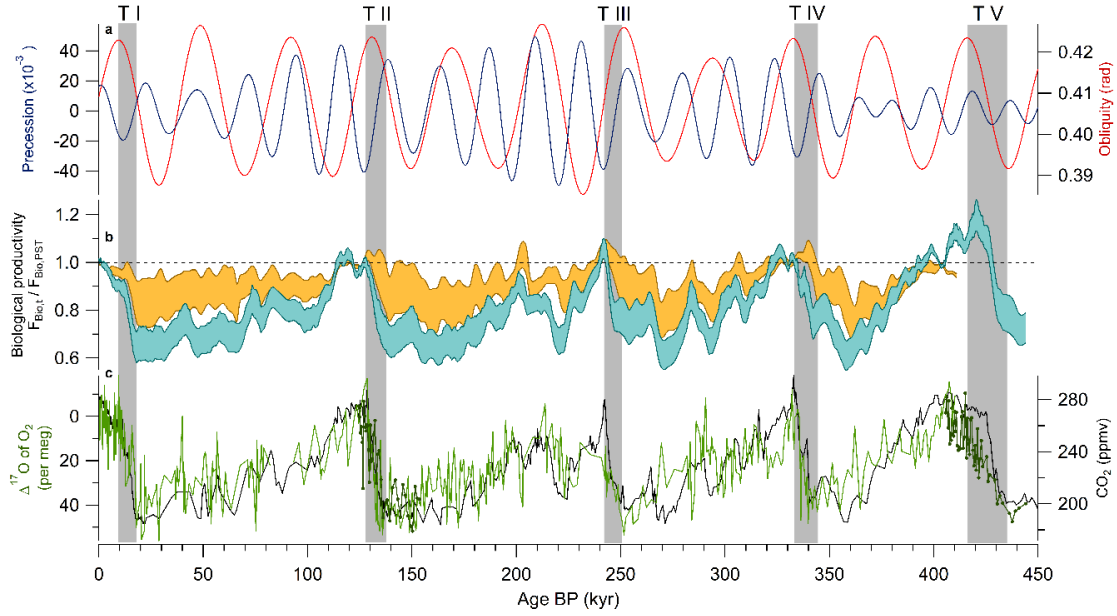

690

691

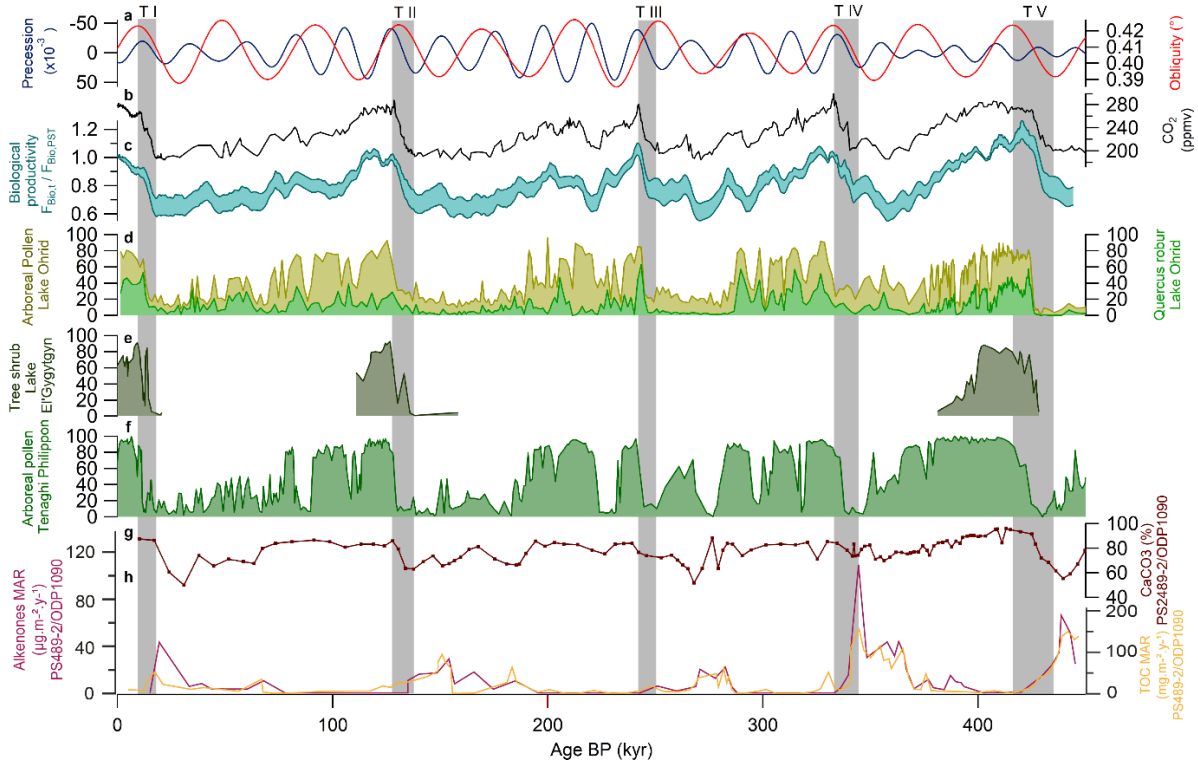
692 **Supplementary Figure 1. Relationship between $CO_2$[1] and $\Delta^{17}O$ of $O_2$[2 and this study] for Termination I to**
693 **V.** The slope of the $\Delta^{17}O$ of $O_2$ vs $CO_2$ anti-correlation is much lower over Termination V than for
694 Terminations I-IV. The correlation coefficient is also lower for Termination V than for younger
695 Terminations.




**Supplementary Figure 2. Comparison of EDC $\Delta^{17}O$ of $O_2$ with previous $\Delta^{17}O$ of $O_2$ record.** In light green: $\Delta^{17}O$ of $O_2$ measured on GISP2 and Vostok ice cores[2,3]. In dark green: measurements on EDC ice core (this study).




**Supplementary Figure 3. Comparison of the oxygen biosphere productivity variations obtained in this study and in Blunier et al., 2012 for the last 400 ka. a** Precession (dark blue) and Obliquity (red)[4]; **b** Ratio of global biospheric productivity between the time considered and pre-industrial. For the blue lines (this study), the envelop is obtained from uncertainties in the estimate of $\Delta^{17}O_{bio,\ LGM}$ and $\Delta^{17}O_{bio,pre\text{-}industrial}$ (Supplementary Table 2). For the yellow lines, the envelop is deduced from uncertainties in $\Delta^{17}O_{bio}$ estimates based on different scenarios with various C4 partitions (40-70%) and a modern ocean water to atmosphere implementation of 173 and 223 per meg (yellow: Blunier et al.[2]); **c** $\Delta^{17}O$ of $O_2$ (dark green with dots: this study; light green: Blunier et al.[2]) and atmospheric $CO_2$ (dark[1]).




712

713 **Supplementary Figure 4. Variation of the oxygen biosphere productivity compared with pollen and**
714 **marine records.** a Precession and Obliquity[4]; b atmospheric $CO_2$[1]; c global oxygen biosphere
715 productivity (this study); d Arboreal and Quercus robur pollen records (%) from Lake Ohrid, Balkan
716 Peninsula[5,6]; e Tree shrubs pollen record (%) from El'Gygytgyn Lake[7]; f Arboreal pollen record (%) from
717 Tenaghi Philippon Lake[8]; g $CaCO_3$ (%) record from Site PS2489-2/ODP1090, Atlantic sector of the
718 Southern Ocean[9]; h alkenone mass accumulation rate (MAR) (µg.m$^{-2}$.y$^{-1}$) and TOC MAR (mg.m$^{-2}$.y$^{-1}$)
719 records at Site PS2489-2/ODP1090[10].

720 Figure S3 combines well-dated palynological and geochemical data covering the last five deglaciations
721 and related to terrestrial and oceanic biological productivities, respectively. The age-model of Lake
722 Ohrid record[5,6] is based on tephrochronology on 11 tephra layers[11] and on a second order on the tuning
723 of biogeochemical proxy data to orbital parameters[12]. El'Gygytgyn core age model is based, in first
724 order, on magnetostratigraphy and in second and third orders on the correlation between sedimentary
725 proxy data to the LR04 stack[13] and insolation patterns[4]. The Tenaghi Philippon core age-model is based
726 on the correlation between vegetation changes and March and June perihelion configuration. The age-

727 models of PS2489-2 and ODP Site 1090 were calculated using the correlation between the alkenone-
728 based SST with the EDC ice core temperature record[9]. Decreases in TOC and alkenone MARs from
729 PS2489-2/ODP 1090 are correlated, indicating that TOC decrease is not a consequence of the increase
730 in $CaCO_3$ in the sediment.

731

732

| Sample | Interior sample | | Exterior sample | |
|---|---|---|---|---|
| | $\delta O_2/Ar$ | $\Delta^{17}O$ of $O_2$ | $\delta O_2/Ar$ | $\Delta^{17}O$ of $O_2$ |
| **GRIP Sample 1** | -74 | 29 | -146 | 13 |
| **GRIP Sample 2** | -82 | 50 | -134 | 13 |
| **GRIP Sample 3** | -94 | 50 | -156 | 26 |

733

734 **Supplementary Table 1. Comparison of $\delta O_2/Ar$ and $\Delta^{17}O$ of $O_2$ values between the interior and the**

735 **exterior part of the ice core**

736

| $F_{oce,pre-industrial}/F_{terr,pre-industrial}$ | $\Delta^{17}O_{bio,pre-industrial}$ | $F_{oce,LGM}/ F_{terr,LGM}$ | $\Delta^{17}O_{bio, LGM}$ |
|---|---|---|---|
| **0.45** | 124 | 0.56 | 156 |
| | | 1.08 | 178 |
| | 182 | 0.56 | 211 |
| | | 1.08 | 227 |
| **0.59** | 145 | 0.73 | 177 |
| | | 1.41 | 205 |
| | 189 | 0.73 | 217 |
| | | 1.41 | 234 |

737

738 **Supplementary Table 2. Estimates of $\Delta^{17}O_{bio}$ for pre-industrial and Last Glacial Maximum (LGM) from**
739 **Landais et al., 2007[14].** The different $\Delta^{17}O_{bio}$ values arise from uncertainties in the determination of the
740 fractionation coefficients as well as uncertainties in the ratio of oceanic vs terrestrial biospheric fluxes
741 at present-day and at LGM as given in this table.

742

743 **Supplementary references**


744 1. Siegenthaler, U. Stable Carbon Cycle-Climate Relationship During the Late Pleistocene. Science
745 310, 1313–1317 (2005).

746 2. Blunier, T., Bender, M. L., Barnett, B. & von Fischer, J. C. Planetary fertility during the past 400
747 ka based on the triple isotope composition of O2 in trapped gases from the Vostok ice core. Climate of
748 the Past 8, 1509–1526 (2012).

749 3. Blunier, T., Barnett, B., Bender, M. L. & Hendricks, M. B. Biological oxygen productivity during
750 the last 60,000 years from triple oxygen isotope measurements. Global Biogeochemical Cycles 16, 3-
751 1-3–13 (2002).

752 4. Laskar, J. et al. A long-term numerical solution for the insolation quantities of the Earth.
753 Astronomy & Astrophysics 428, 261–285 (2004).

754 5. Sadori, L. et al. Pollen-based paleoenvironmental and paleoclimatic change at Lake Ohrid
755 (south-eastern Europe) during the past 500 ka. Biogeosciences 13, 1423–1437 (2016).

756 6. Kousis, I. et al. Centennial-scale vegetation dynamics and climate variability in SE Europe during
757 Marine Isotope Stage 11 based on a pollen record from Lake Ohrid. Quaternary Science Reviews 190,
758 20–38 (2018).

759 7. Melles, M. et al. 2.8 Million Years of Arctic Climate Change from Lake El'gygytgyn, NE Russia.
760 Science 337, 315–320 (2012).

761 8. Tzedakis, P. C., Hooghiemstra, H. & Pälike, H. The last 1.35 million years at Tenaghi Philippon:
762 revised chronostratigraphy and long-term vegetation trends. Quaternary Science Reviews 25, 3416–
763 3430 (2006).

764 9. Diekmann, B. & Kuhn, G. Sedimentary record of the mid-Pleistocene climate transition in the
765 southeastern South Atlantic (ODP Site 1090). Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology 182,
766 241–258 (2002).

767 10. Martínez-Garcia, A. et al. Links between iron supply, marine productivity, sea surface
768 temperature, and CO 2 over the last 1.1 Ma. Paleoceanography 24, PA1207 (2009).

769 11. Leicher, N. et al. First tephrostratigraphic results of the DEEP site record from Lake Ohrid
770 (Macedonia and Albania). Biogeosciences 13, 2151–2178 (2016).

771 12. Francke, A. et al. Sedimentological processes and environmental variability at Lake Ohrid
772 (Macedonia, Albania) between 637 ka and the present. Biogeosciences 13, 1179–1196 (2016).

773 13. Lisiecki, L. E. & Raymo, M. E. A Pliocene-Pleistocene stack of 57 globally distributed benthic δ
774 18 O records. Paleoceanography 20, PA1003 (2005).

775 14. Landais, A., Lathiere, J., Barkan, E. & Luz, B. Reconsidering the change in global biosphere
776 productivity between the Last Glacial Maximum and present day from the triple oxygen isotopic
777 composition of air trapped in ice cores. Global Biogeochemical Cycles 21, GB1025 (2007).


778

université PARIS-SACLAY
ÉCOLE DOCTORALE
Sciences de l'environnement d'île-de-France (SEIF)

**Titre :** Variations climatiques et variations du cycle hydrologique aux basses latitudes au cours du Quaternaire : une approche combinant modèle et données

**Mots clés :** Cycle hydrologique des basses latitudes, composition isotopique de l'oxygène de l'air, carotte de glace, chronologie, modélisation du climat

**Résumé :** Le climat du Quaternaire est défini par une succession de périodes glaciaires et interglaciaires enregistrées dans les archives climatiques à différentes latitudes. La carotte de glace d'EPICA Dome C fournit un enregistrement haute résolution sur les derniers 800 ka du $\delta^{18}O_{atm}$ (i.e. $\delta^{18}O$ de la molécule d'oxygène de l'air) qui combine les variations passées du cycle hydrologique des basses latitudes et de la productivité de la biosphère. En l'absence du comptage des couches annuelles, ce proxy peut être utilisé comme méthode de datation orbitale des carottes de glace, en lien avec l'insolation au 21 juin à 65°N. Cependant, un décalage de 6 ka entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et l'insolation, généralement observé lors des terminaisons glaciaires-interglaciaires, est appliqué sur l'ensemble de l'enregistrement lors de la construction de l'échelle d'âge. Ce décalage et la complexité du signal du $\delta^{18}O_{atm}$ expliquent l'incertitude élevée de 6 ka des carottes de glace, ce qui limite leur interprétation en termes de variations climatiques et environnementales conjointement à d'autres archives. J'ai donc développé une nouvelle chronologie pour les carottes de glace, basée sur le lien entre le $\delta^{18}O_{atm}$ et le $\delta^{18}O_{calcite}$ des spéléothèmes est-asiatiques, à partir de nouvelles mesures isotopiques permettant d'avoir pour la première fois un enregistrement complet sur les derniers 800 ka à Dome C. Cette nouvelle chronologie permet de réduire les incertitudes par rapport à la chronologie actuelle et d'avoir une meilleure séquence des évènements entre les hautes et basses latitudes. J'ai ensuite développé un modèle simulant la composition isotopique de l'oxygène atmosphérique afin de répondre au manque d'interprétations quantitatives de ce proxy ainsi que pour vérifier son lien avec le $\delta^{18}O_{calcite}$ sur plusieurs cycles climatiques. Pour modéliser le $\delta^{18}O_{atm}$ nous avons dû coupler le modèle climatique de complexité intermédiaire iLOVECLIM avec le modèle de végétation CARAIB. Le $\delta^{18}O_{atm}$ simulé par le modèle couplé sur plusieurs dizaines de milliers d'années confirme que ses variations sont en phase avec celles de l'insolation de l'hémisphère Nord (hormis lors d'évènements de Heinrich) et avec celles du $\delta^{18}O_{calcite}$ via des modifications du cycle hydrologique des basses latitudes, impactant la composition isotopique de l'eau de pluie utilisée par la biosphère terrestre lors de la photosynthèse.

**Title :** Climate and low latitude water cycle variations during the Quaternary: a model-data approach

**Keywords :** Low latitude hydrological cycle, isotopic composition of atmospheric oxygen, ice core, chronology, climate modeling

**Abstract :** Quaternary glacial-interglacial cycles are recorded in various climatic archives from high to low latitudes. The EPICA Dome C ice core provides a high-resolution record over the last 800 ka of $\delta^{18}O_{atm}$ (i.e. $\delta^{18}O$ of atmospheric $O_2$) which combines past variations of the low latitude water cycle and of the biosphere productivity. In absence of annual layer counting, this proxy can be used for orbital dating in association with the June $21^{st}$ insolation at 65°N to build an ice core chronology. However a lag of 6 ka between the $\delta^{18}O_{atm}$ and the insolation, classically observed during glacial-interglacial terminations, is applied to the entire record during the chronology construction. This lag and the complexity of the $\delta^{18}O_{atm}$ signal are the main reasons why the ice core chronology presents a high 6 ka uncertainty which limits their interpretation jointly with other paleoclimate archives in terms of past climate and environmental variations. To solve this issue I have developed a new ice core chronology based on the relation between the $\delta^{18}O_{atm}$ and the $\delta^{18}O_{calcite}$ of east-asian speleothems, using new isotope measurements allowing for the first time a complete record over the last 800 ka at Dome C. This new chronology reduces the uncertainties compared to the actual ice core chronology strongly based on $\delta^{18}O_{atm}$ and shows a better sequence of events between the high and low latitudes records. Then, I have developed a model to reproduce the isotopic composition of atmospheric $O_2$ to address the lack of quantitative interpretations of this proxy and to check our assumption of synchronicity with the $\delta^{18}O_{calcite}$ over several climatic cycles. To reproduce the variations of the $\delta^{18}O_{atm}$, it was necessary to couple the intermediate complexity climate model iLOVECLIM and the vegetation model CARAIB. Finally, the $\delta^{18}O_{atm}$ variations simulated with the new coupled model over several thousand years are in phase with the insolation of the Northern hemisphere (except during Heinrich events) and with low latitudes $\delta^{18}O_{calcite}$ variations. This can be explained by changes in the low latitude water cycle related to changes in the isotopic composition of meteoric water used by the terrestrial biosphere during photosynthesis.

**Université Paris-Saclay**
Espace Technologique / Immeuble Discovery
Route de l'Orme aux Merisiers RD 128 / 91190 Saint-Aubin, France