

Université de Versailles Saint Quentin en Yvelines

Habilitation à diriger des recherches

Spécialité Météorologie, océanographie et physique de l'environnement

**Transport atmosphérique et inversion des sources et puits de gaz à
effet de serre**

Présentée par

Philippe Bousquet

Le XX/XX/XXXX devant le jury composé de :

Olivier Talagrand,	rapporteur
Martin Heimann,	rapporteur
Philippe Ciais,	rapporteur
Guy Cernogora,	examineur
Patrick Monfray,	examineur
Joel Noilhan,	examineur

Résumé

L'étude des cycles biogéochimiques de la Terre est une composante importante du système climatique. Le cycle du carbone fait intervenir de nombreux composés dont les principaux sont des gaz à effet de serre, le gaz carbonique (CO_2) et le méthane (CH_4). Dans ce document, je propose une synthèse de mes travaux de recherche concernant l'optimisation des sources et puits de CO_2 et de CH_4 par inversion du transport et de la chimie atmosphériques. L'inversion atmosphérique est une approche permettant de combiner de manière optimale des observations atmosphériques, un modèle de chimie-transport et des connaissances *a priori* des cycles biogéochimiques, afin d'optimiser les sources et puits des gaz à effet de serre. La méthodologie que j'ai utilisée et les résultats que j'ai obtenus sont présentés, ainsi que les limitations rencontrées au cours du développement du système d'inversion au LSCE. Enfin, je donne quelques perspectives pour les inversions atmosphériques en fin de manuscrit.

Summary

Biogeochemical cycles are an important part of the climate system. Carbon dioxide (CO_2) and methane (CH_4), two major greenhouse gases, are the main compounds of the carbon cycle. In this work, I propose a synthesis of my research work about estimation of sources and sinks of CO_2 and CH_4 , as inferred by inversion of atmospheric transport and chemistry. Atmospheric inversion is tool to combine optimally observations of atmospheric concentrations, chemistry-transport modelling, and prior knowledge of biogeochemical cycles, in order to optimize sources and sinks of greenhouse gas compounds. I successively present the methodology, the results, and the limitations of the inverse framework that was developed at LSCE. Finally, perspectives of this work are presented.

Remerciements

Je remercie Laurent TURPIN, ancien directeur du LSCE, de m'avoir accueilli en tant que maître de conférences UVSQ au sein du LSCE. Je remercie Robert VAUTARD, actuel directeur actuel du LSCE, de continuer à m'héberger au LSCE !

Je remercie François-Marie BREON pour l'animation de notre équipe et pour les financements dégagés pour inviter le jury de cette thèse d'habilitation.

Je tiens tout particulièrement à remercier Guy CERNOGORA, professeur à l'UVSQ, pour le respect qu'il montre envers les maîtres de conférences et leur temps de recherche, parfois si difficile à trouver en début de carrière.

Je fais parti d'une communauté scientifique très structurée depuis le début des années 1990, au travers de projets internationaux comme TRANSCOM (inter-comparaison de modèles de transport atmosphériques) et de projets européens regroupant les principaux acteurs de la modélisation du cycle du carbone en Europe (AEROCARB puis CARBO-EUROPE). Au niveau national, le LSCE est le seul laboratoire français à réaliser le suivi en continu des gaz à effet de serre (ORE RAMCES) et à faire des inversions atmosphériques aux échelles mondiales à régionales. Au sein du laboratoire, un réel travail d'équipe, avec un petit nombre de chercheurs et d'ingénieurs particulièrement motivés, nous a permis de faire partie des équipes de recherche qui comptent au niveau international. Nous collaborons avec de nombreuses équipes d'autres organismes français comme METEO FRANCE à Toulouse ou l'INRA à Grignon. Je voudrais remercier ici tous mes collègues proches, et en particulier Philippe PEYLIN et Philippe CIAIS, pour m'avoir intégré pleinement à ces travaux stimulants, et ce, malgré ma charge d'enseignement à mi-temps.

Enfin, je tiens à faire un gros bisou à toute ma famille qui me supporte au quotidien, moi, mon caractère, et mon emploi du temps à géométrie variable : Anne bien sûr, et Chloé, Ariane et Rémi.

Table des matières

Résumé	3
Remerciements.....	4
Table des matières.....	5
Introduction.....	6
I. Méthodologie.....	11
1. Transport et chimie atmosphérique	11
2. Inversion	16
3. Régularisation du problème inverse	22
II. Inversion des sources et puits de gaz carbonique (CO ₂).....	27
1. Les prémices.....	29
2. L'approche Bayésienne : puits nets v.s. variations interannuelles.....	30
3. Sources et puits nets	32
4. Variabilité interannuelle et décennale	38
5. Compléments : résultats récents.....	43
III. Inversion des sources et puits de méthane (CH ₄).....	52
1. Les prémices.....	53
2. Optimisation de OH.....	55
3. Inversion des sources et puits de CH ₄ : méthodologie & setup	59
4. Sources et puits nets de CH ₄	61
5. Variabilités interannuelle et décennale de CH ₄	65
IV. Limitations et erreurs des inversions atmosphériques.....	73
1. Manque de données	73
2. Erreurs systématiques de modélisation.....	74
3. Erreur d'agrégation.....	80
4. Stations et sélections.....	81
5. Intégration d'informations supplémentaires	84
V. Perspectives.....	87
Conclusion générale	95
Références générales	96
Publications de rang A en premier auteur ou en co-auteur (+thèse)	112
Activités de recherche : projets nationaux et internationaux.....	116
Activités d'enseignement et d'encadrement.....	117
Etudiants en maîtrise, DEA, DESS, master, thèse et postdocs :	117
Encadrement de personnels techniques contractuels.....	118
Organisation de la recherche et de l'université	118
Enseignement	118
Articles scientifiques	119

Introduction

Depuis 200 ans, les activités humaines ont introduit environ 400 pétagrammes de Carbone ($1\text{Pg}=10^{12}\text{gC}=1\text{GtC}$) dans l'atmosphère, entraînant une augmentation de 100 ppm des concentrations de gaz carbonique (CO_2) et triplant presque les concentrations de méthane (CH_4), les deux principaux gaz à effet de serre après la vapeur d'eau. Cet accroissement est important et rapide au regard de la grande stabilité des concentrations de CO_2 (variations $<\pm 20$ ppm) et de CH_4 (variations $<\pm 30$ ppb) reconstituées depuis 11000 ans à l'aide des archives polaires (Monnin et al., 2001). Plus généralement, un bilan des changements les plus notables dans la composition chimique de l'atmosphère depuis 200 ans montre :

- une augmentation exponentielle de la concentration des principaux gaz à effet de serre.
- une décroissance de l'ozone stratosphérique et l'augmentation du rayonnement ultraviolet en surface, révélées par le trou d'ozone antarctique.
- une augmentation de l'ozone troposphérique et l'apparition de pics de pollution à l'ozone dans les grands centres urbains à travers le monde, à cause de gaz à durée de vie courte comme les COVs et les NOx.
- un accroissement des quantités d'aérosols, notamment les particules fines ($< 1 \mu\text{m}$), liés aux combustions (feux, transports, chauffage urbain,..) et à l'activité agricole.
- une acidification des pluies et l'eutrophisation des eaux douces superficielles, notamment à cause des dépôts atmosphériques azotés.

Ces phénomènes ont des conséquences politico-socio-économiques grandissantes au travers de leurs effets sur la santé humaine, l'état des écosystèmes, le climat, la disponibilité en eau potable ou les rendements agricoles, en fonction de la durée de vie des composés (figure 1) et de leur toxicité (IPCC, 2001). Le suivi de la composition chimique de l'atmosphère est l'une des priorités des projets de recherche sur le climat. Grâce au développement du réseau de mesures du CO_2 atmosphérique depuis près de 50 ans, la composante atmosphérique du cycle du CO_2 est aujourd'hui bien mieux connue que les composantes terrestres et océaniques. Un effort de recherche très important est actuellement en cours pour développer un système d'observation complet de l'atmosphère terrestre groupant des moyens terrestres, marins, aéroportés et satellite (ex : projet GEOMON du 6^e PCRD en Europe).

La prédiction de l'évolution du climat au cours des prochains siècles repose en grande partie sur notre capacité à comprendre et représenter le fonctionnement actuel du système Terres-Océans-Atmosphère. Dans ce cadre, l'étude du cycle du carbone, et plus généralement des cycles biogéochimiques contemporains, est fondamentale, non seulement parce qu'ils sont une composante majeure du système climatique, mais aussi parce qu'ils introduisent de nombreuses rétroactions complexes encore mal comprises. Par exemple, les émissions naturelles et anthropogéniques de gaz à effet de serre influencent le climat dont l'évolution, en retour, peut modifier le fonctionnement des écosystèmes (Figure 1), et peut-être, un jour, nos comportements.

L'étude du cycle du carbone sur des périodes climatiques courtes (<100 ans) fait intervenir trois réservoirs principaux (océans, terres émergées et atmosphère) et les échanges de matière entre ces réservoirs (Figure 1).

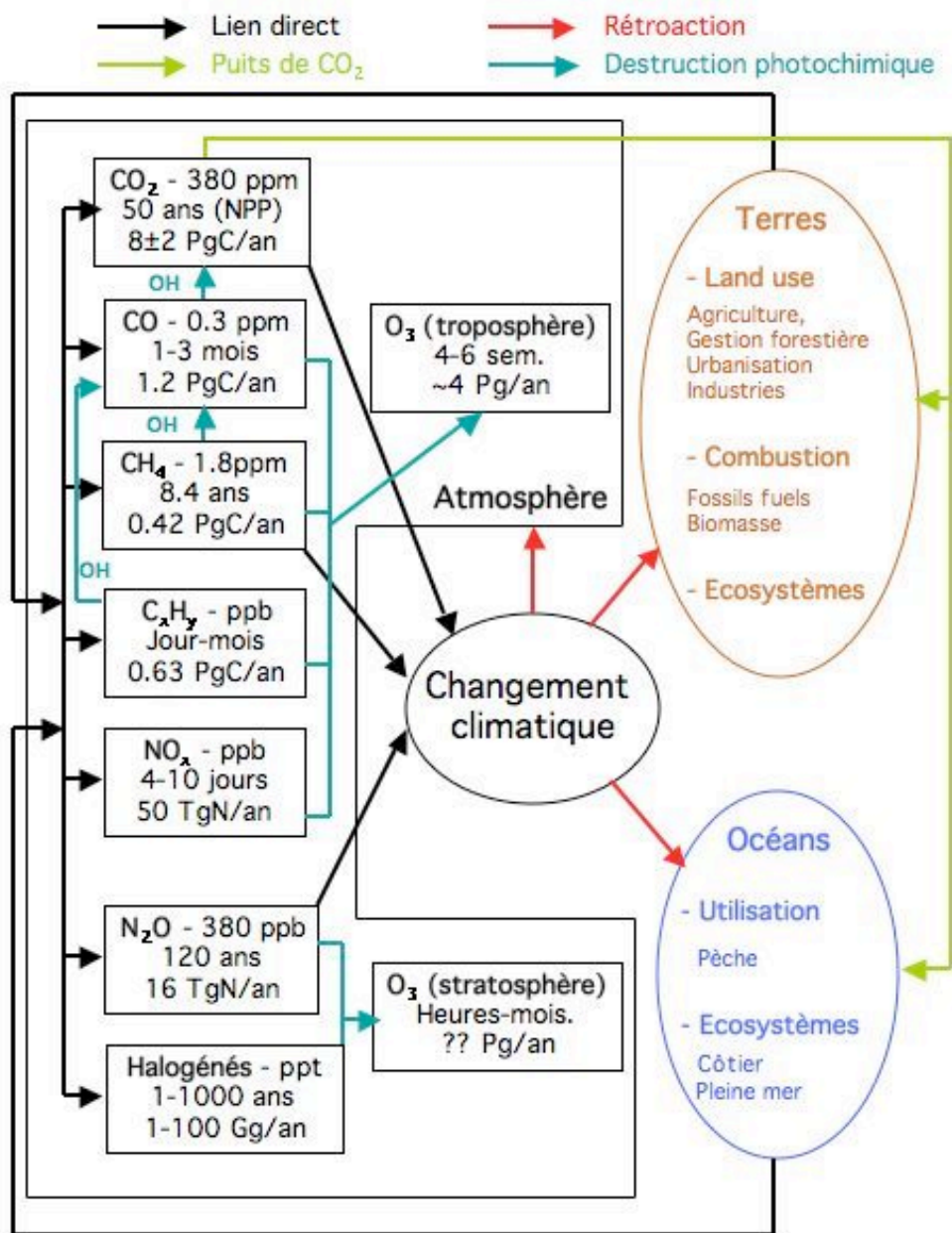


Figure 1 : Emissions, temps de vie, concentrations typiques et liens avec le climat pour quelques gaz trace de l'atmosphère.

La perturbation anthropogénique est associée à un accroissement des émissions de composés déjà présents dans l'atmosphère (CO₂, CH₄, CO, ...) ou à l'émission de nouveaux composés de synthèse (Halogénés, ...). Ces composés se retrouvent dans l'atmosphère où ils influencent le climat. Fort heureusement, les systèmes naturels ont une capacité de régulation des perturbations. Ainsi, l'atmosphère a une capacité d'auto-nettoyage des émissions grâce 1/ à la capacité oxydante de la troposphère qui est due principalement au radical hydroxyle (OH), 2/ à la destruction photo-chimique

des composés dans la stratosphère et au delà, et 3/ à la capacité lessivante des précipitations pour les aérosols et certains gaz solubles. Par ailleurs, les écosystèmes terrestres et marins absorbent en moyenne plus de 50% des émissions de CO₂ liées aux activités humaines (figure 1), et réduisent ainsi fortement l'impact de ces émissions sur l'effet de serre planétaire (Keeling et al., 1989). Les causes possibles de ces puits de carbone sont, l'effet de fertilisation dû à l'augmentation du CO₂ atmosphérique et aux dépôts d'azote, le replantage de forêts dans l'hémisphère nord, et une conséquence de modifications régionales du climat.

Comment les puits de carbone vont-ils évoluer à l'avenir ? Comment la capacité oxydante de l'atmosphère va-t-elle être modifiée au cours des prochains siècles ? La réponse à ces questions est complexe car elle dépend de multiples facteurs incertains : évolution des émissions, changements dans la chimie atmosphérique, rétroaction du climat sur les écosystèmes et l'atmosphère (Figure 1)... Deux études récentes ont trouvé des résultats contradictoires concernant l'impact de l'évolution du climat au cours des 100 prochaines années sur les puits de carbone. L'une prédisait un simple ralentissement de l'absorption du CO₂ par les écosystèmes terrestres (Friedlingstein et al., 2001), alors que l'autre calculait que l'impact de la perturbation humaine conduirait la végétation terrestre à devenir une source de carbone pour l'atmosphère à partir de 2050, à cause d'une forte rétroaction négative de la végétation (Cox et al., 2000).

Une grande part des incertitudes restantes dans l'étude des cycles biogéochimiques actuels provient de la méconnaissance des flux d'échange des composés atmosphériques avec les réservoirs continentaux et marins (Figure 1). De nombreux processus à l'œuvre ne sont pas toujours identifiés ou quantifiés avec précision. Par exemple, les incertitudes associées aux différents processus émettant du méthane à l'échelle mondiale sont comprises entre $\pm 50\%$ et $\pm 100\%$. De même, l'incertitude des échanges de CO₂ due aux changements d'utilisation des sols et de l'ordre de $\pm 100\%$. Dans ce cadre, il est souvent difficile d'établir des scénarios d'émissions précis pour le présent. Pour les scénarios futurs, des incertitudes supplémentaires apparaissent, concernant les réserves de combustibles, l'évolution de la population, et le développement d'énergies nouvelles (renouvelables, piles à combustible, fusion,...). Par ailleurs, les non linéarités induites par les rétroactions et les réactions photochimiques sont nombreuses dans l'atmosphère. A titre d'exemple, Les feux de biomasse contribuent à émettre des NO_x qui induisent une augmentation de OH. Mais les feux émettent aussi du monoxyde de carbone dont l'augmentation de concentration est d'autant plus limitée que les concentrations de OH sont fortes.

Il apparaît donc essentiel de mieux connaître les flux d'échanges positifs (sources) ou négatifs (puits) entre l'atmosphère et les réservoirs marins et terrestres afin d'améliorer notre connaissance de la composition chimique de l'atmosphère qui conditionne en grande partie le climat de la Terre et son évolution.

Deux grandes familles d'approches ont été développées pour estimer les sources et puits de composés atmosphériques. La mesure directe des flux de composés est l'approche qui paraît la plus naturelle pour les estimer. Cependant, la grande

hétérogénéité de la biosphère continentale rend très locale une mesure des flux turbulents sur un champs ou une forêt, avec une zone d'influence de l'ordre 1 km² (Schmid, 1994). Sur les océans, les variations de la vitesse du vent et les courants de surface limitent aussi la portée de mesures directes de pCO₂, par ailleurs plus difficiles et coûteuses à obtenir que sur terre, notamment dans l'hémisphère sud (Metzl et al., 1999). L'extrapolation de données in-situ est une voie possible pour étendre les données à des échelles régionales ou même mondiales, en s'appuyant sur des données satellitales ou sur des proxys comme la température. L'intégration de mesures ponctuelles de flux de traceurs dans des modèles biogéochimiques basés sur une représentation des processus à l'œuvre est une voie pour utiliser au mieux ces données. Ainsi, la compilation de données de pCO₂ et leur extrapolation à l'aide d'un modèle océanique simple a permis de constituer une base de données climatologique de flux air-mer de CO₂ (Takahashi et al., 2002 ; Wanninkhof et al., 1992). Sur terre, l'utilisation des mesures directes de flux sur les continents pour valider des modèles de végétation comme ORCHIDEE (Krinner et al., 2005) a beaucoup aidé à améliorer le modèle. L'utilisation d'un modèle biogéochimique validé sur des observations directes et parfois aussi sur des reconstructions satellites est appelée l'approche montante (bottom-up)

Les approches descendantes (top-down) utilisent des gradients de concentrations d'un constituant mesurés dans l'atmosphère en différents points du globe pour optimiser les flux de ce composé (Enting, 1993). Ce sont les inversions atmosphériques, qui rentrent dans la famille plus large des problèmes inverses (Tarantola, 1987 ; Rodgers, 2000). Les échelles spatiales représentées dépendent de la densité du réseau de mesures et vont généralement de l'échelle mondiale à l'échelle régionale. Un modèle de chimie-transport est nécessaire pour relier les flux aux concentrations. Les observations des concentrations atmosphériques des gaz à étudier sont les principales contraintes des inversions atmosphériques. Des scénarios de sources et puits a priori sont aussi utilisés comme contraintes additionnelles dans les inversions atmosphériques. L'utilisation de traceurs atmosphériques du cycle du carbone pour séparer différentes contributions de flux est aussi possible. Le ¹³CO₂ permet de distinguer les masses d'air d'origine continentale des masses d'air d'origine océanique. Le rapport O₂/N₂ donne des information sur le puits net océanique. Le ¹⁴C n'est pas présent dans le carbone brûlé dans les combustibles fossiles et trace donc ces émissions. Le ¹³CH₄ permet de séparer les processus anaérobies de production de méthane des processus de combustion ou industriels. Utilisés comme contrainte additionnelle dans la modélisation inverse, ces traceurs permettent parfois d'affiner la partition des flux entre processus. Il faut toutefois que les incertitudes liés au cycle propre de ces traceurs ne soient pas trop importantes.

Depuis le début de ma thèse, en 1994, mes travaux de recherche ont porté sur l'optimisation des sources et puits de gaz trace de l'atmosphère, de l'échelle mondiale à l'échelle régionale, et sur les 25 dernières années. Quand je suis arrivé au laboratoire, dans l'équipe de Patrick MONFRAY, mon intérêt s'est d'abord porté sur le gaz contribuant le plus à l'effet de serre additionnel dû aux activités humaines : le gaz carbonique (chapitre II). J'ai réalisé ma thèse sur l'estimation des sources et puits de CO₂ par inversion du transport atmosphérique. Ce travail, essentiellement consacré

aux sources et puits saisonniers s'est poursuivi jusqu'en 2002, avec l'étude des variations interannuelles et décennales des sources et puits de CO_2 (Bousquet et al., 2000) dans l'équipe de Philippe CIAIS. Pendant ces années, j'ai collaboré avec de nombreux chercheurs français et étranger sur les parties continentales et océaniques du cycle du CO_2 . A partir de 2003, je me suis intéressé à l'optimisation des émissions de méthane, le second gaz à effet de serre anthropique (chapitre III). La réactivité chimique du méthane m'a obligé à optimiser au préalable la distribution spatio-temporelle du radical OH, principal puits de méthane (chapitre III). J'ai réalisé une telle optimisation en adaptant la méthodologie inverse développée pour le CO_2 . Ensuite, j'ai travaillé sur l'optimisation des émissions de CH_4 et de leurs variations interannuelles et décennales (Bousquet et al., 2006). Au cours de ces années, les méthodes inverses se sont développées et des limitations sont apparues. Certaines perdurent encore aujourd'hui. Dans le chapitre IV, je tente d'illustrer les principales limitations et sources d'erreur des méthodes inverses utilisées dans la communauté scientifique étudiant les gaz à effet de serre, avant d'évoquer les perspectives possibles pour ces méthodes dans les années à venir (Chapitre V).

I. Méthodologie

L'inversion de données a pour objectif de combiner toute l'information disponible pour déterminer aussi précisément que possible l'état d'un système. Selon les problèmes inverses, il peut s'agir de l'état du système à un instant donné ou de son évolution dans le temps. L'information disponible est au minimum constituée de mesures directes ou indirectes des variables du système et d'un modèle dynamique du système. Dans le cas de mesures indirectes, un opérateur d'observation relie l'espace des variables à estimer à l'espace des observations. L'assimilation de données fournit aussi généralement une estimation des incertitudes. Cette définition, très large, s'applique à de nombreux domaines scientifiques. Ainsi, en médecine, cette approche est utilisée quotidiennement pour la réalisation des images scanner ou IRM. Concernant l'étude de la Terre, l'assimilation de données a été utilisée dès les années 1970 en géophysique (Tarantola et al., 1982, Tarantola, 1987) puis en météorologie pour améliorer notre connaissance des caractéristiques du manteau terrestre ou de l'atmosphère. On parle alors d'assimilation de données. En météorologie, les travaux de Lorenz (1963) ont montré que toute prévision météorologique est extrêmement sensible aux conditions initiales et limitée dans le temps par le caractère chaotique de l'écoulement atmosphérique. L'objet de l'assimilation de données est alors d'obtenir la meilleure description possible des variables décrivant l'atmosphère (variables d'état) comme la température, l'humidité, les précipitations ou l'ozone. Ces états servent ensuite de conditions initiales au système de prévision. L'assimilation de données météorologiques est donc avant tout un problème de conditions initiales. Le fort accroissement de la quantité de données météorologiques disponibles, notamment grâce aux satellites, et la puissance sans cesse croissante des supercalculateurs ont permis un développement rapide des systèmes de prévision météorologique opérationnels à travers le monde depuis plusieurs décennies (Courtier et al., 1994).

L'objectif de la modélisation inverse des sources et puits d'un constituant atmosphérique (ou inversion atmosphérique) est d'estimer les sources et puits d'un constituant (x), ainsi que leurs incertitudes, en combinant des mesures de concentration de ce constituant (y^o) et un modèle de chimie-transport ou CTM (Enting, 1993, 2002 ; Rodgers, 2000). Les sources et puits étant généralement localisés à la surface de la Terre, le centre d'intérêt est donc déplacé de l'atmosphère vers la surface. Vue de l'atmosphère, la modélisation inverse des sources et puits d'un constituant est donc plus un problème de conditions aux limites que de conditions initiales.

1. Transport et chimie atmosphérique

Un CTM résout l'équation de conservation de la masse pour un maillage tridimensionnel de l'atmosphère :

$$\frac{\partial}{\partial t}(\rho y_{x,t}) = E_{x,t} + T(y_{x,t}) + \chi(y_{x,t}) \quad \text{Eq. 1}$$

où ρ est la densité de l'air, $y_{x,t}$ représente la concentration du constituant en x et au temps t , $E_{x,t}$ représente les sources et puits, T est le transport atmosphérique et χ représente les processus de production ou destruction chimique. Depuis le début de ma carrière, j'ai utilisé plusieurs modèles de transport ou de chimie-transport atmosphérique dont les principales caractéristiques sont données dans la Table 1.

Modèle	TM2	TM3	LMDZt
Type	Débranché	Débranché	MCG et Débranché
Résolution horizontale	7.5°x7.5°	5°x3.83°	3.75°x2.5°
Résolution verticale	9 niveaux σ	19 niveaux σ -p	19 niveaux σ -p
Pas de temps traceur	3h	1h	15'
Zoom	Non	Oui (imbriqué)	Oui
Rétrotransport	Non	Non	Oui
Advection	Schéma de pente Russel & Lerner, 1981	Schéma de pente Russel & Lerner, 1981	Schéma volume fini Van leer, 1977
Convection	Tiedtke, 1989	Tiedtke, 1989	Tiedtke, 1989
Couche limite	Fermeture locale Louis, 1979	Fermeture locale Louis 1979	Fermeture locale de type Louis 1979
Vents	CEPMMT (1990-95)	CEPMMT (1993)	Guidé vers CEPMMT (ERA15 et ERA40)
Fréquence des vents	6h	3h	3h
Temps d'échange inter-hémisphérique (années)	1.5	1.9	1.1
Effet correcteur saisonnier	Faible	Fort	Moyen
Chimie	Non	Non	Oui (INCA)
Référence	Heimann, 1995	Heimann, 1995	Hourdin & Armengaud, 1999

Table 1: Caractéristiques des différents modèles de transport atmosphérique utilisés au LSCE depuis 1995.

Dans un premier temps (avant 2002), les modèles de transport atmosphérique TM2 et TM3 développé au Max Planck Institute de Hambourg ont été utilisés dans le cadre d'une étroite collaboration avec cet institut, qui se poursuit aujourd'hui sur les inversions. Ces modèles sont des modèles débranchés (offline), c'est à dire qu'ils utilisent des flux de masse d'air calculés au préalable à partir des champs météorologiques du Centre Européen pour la Prévision Météorologique à Moyen Terme (CEPMMT/ECMWF) pour représenter le terme T de l'équation ci-dessus. L'advection est représentée explicitement et la convection est paramétrée par une version

simplifiée du schéma de Tiedtke et al. (1989). La diffusion turbulente est représentée par le schéma de Louis (1979). Il n'y a pas de diffusion horizontale explicite. Ces deux modèles se différencient essentiellement par la résolution verticale et temporelle, ainsi que l'adaptation du modèle convectif de Tiedtke et al. Ces modèles n'avaient pas de modules traitant la chimie atmosphérique et ont donc été utilisés pour l'étude du CO_2 seulement. Même assez proches, ils ont montré qu'ils avaient des temps d'échange inter-hémisphériques assez différents (tableau 1). Leur représentation des concentrations de surface en milieu continental est aussi différente. Par exemple, TM3 présente un effet correcteur des concentrations de CO_2 saisonnier (seasonal rectifier) plus fort que TM2.

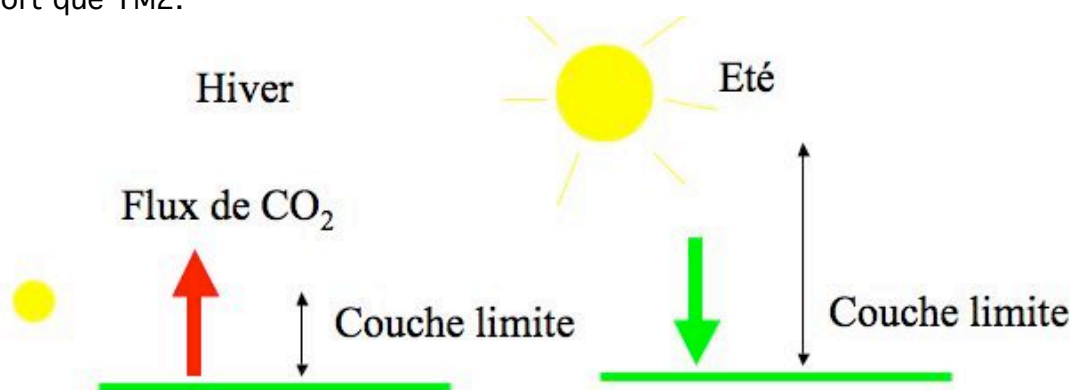


Figure 2 : Représentation de l'effet correcteur des concentrations saisonnier (rectifier). D'après Denning et al., (1995).

L'effet correcteur saisonnier (Figure 2) traduit le couplage entre les flux de CO_2 et la dynamique de la couche limite atmosphérique (Denning et al., 1995). En été, le CO_2 est plus absorbé par photosynthèse que respiré et la végétation est un puits de CO_2 . Dans le même temps, la couche limite est généralement élevée (~2-3 km) et dilue donc ce puits sur une grande hauteur, limitant ainsi son effet (figure 3). En hiver, la respiration domine la photosynthèse et la végétation est une source de CO_2 . Une couche limite généralement peu élevée (~500-1000m) renforce alors l'accumulation de CO_2 en surface. Au total, intégré sur l'année, une végétation à l'équilibre peut générer un gradient positif de CO_2 . Un effet jour/nuit similaire existe aussi, l'effet correcteur diurne. Cet effet est assez variable dans les différents modèles de l'expérience TRANSCOM-I (Law et al., 1996) à laquelle j'ai participé (Figure 3). Cette expérience a été poursuivie ensuite avec le SF_6 (TRANSCOM-II, Denning et al., 1999) puis pour l'inversion (TRANSCOM-III, Gurney et al., 2002, 2003, 2004). L'implication pour l'estimation des sources et puits de CO_2 est importante car un modèle avec un fort effet correcteur saisonnier (qui peut atteindre plusieurs ppm) sera associé avec un puits continental plus fort pour compenser ce gradient de concentration atmosphérique additionnel à la source anthropogénique. La connaissance du rectifier réel est encore incomplète aujourd'hui. Sa représentation dans les CTM passe par une validation des modèles sur la verticale, notamment à l'aide de mesures aéroportées de proxy du transport dans la couche limite comme le radon, gaz radioactif de durée de vie 3.8 jours qui est presque exclusivement émis par les surfaces continentales.

Les modèles TM2 et TM3 étaient bien adaptés à l'assimilation des observations par prélèvement en flacons d'air disponibles dans les années 1990 qui étaient essentiellement localisées dans la couche limite marine. Le développement du réseau d'observation en milieu continental, l'apparition de stations de mesures en continu, et la volonté d'affiner les échelles spatio-temporelles résolues pour les flux et les observations ont demandé un raffinement de la représentation du transport atmosphérique qui nous a poussé à changer de modèle en 2002.

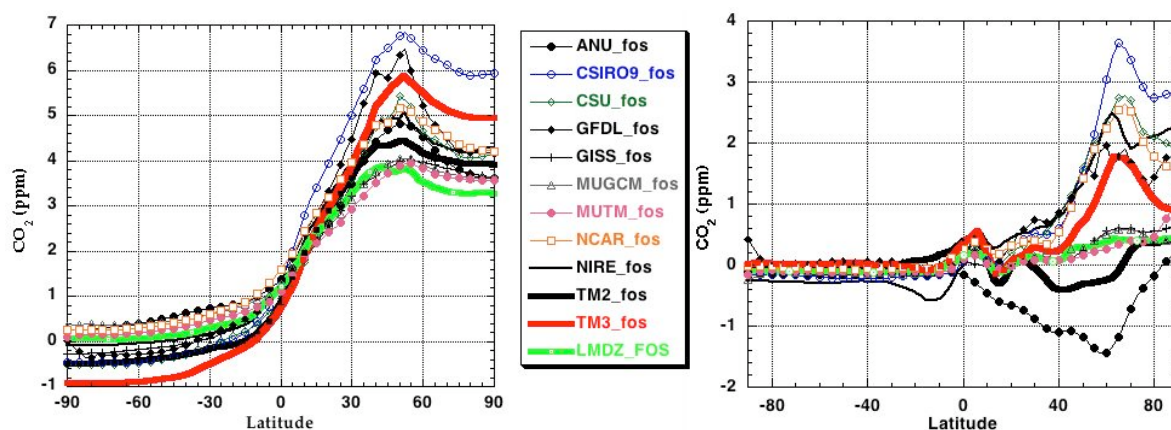


Figure 3 : Expérience TRANSCOM-I. Gradient atmosphérique Nord-sud moyen zonal de CO_2 correspondant aux émissions de fuel fossiles (gauche) et aux flux biogéniques (droite) pour 12 modèles différents dont TM2, TM3 et LMDZt. D'après Law et al., (1996).

Depuis 2002, j'ai mis en œuvre au LSCE la version transport LMDZt du modèle LMDZ, développé au LMD-IPSL (Hourdin & Armengaud, 1999). LMDZ est un modèle de circulation générale de l'atmosphère (MCG) utilisé pour l'étude du Climat à l'IPSL. Sa version transport possède un certain nombre de fonctionnalités intéressantes pour la modélisation inverse du transport atmosphérique de traceurs: (1) Il peut être guidé par les vents du Centre Européen (CEPMMT), (2) il peut être zoomé sur une région d'intérêt jusqu'à des résolutions assez fines pour un modèle mondiale (50kmx50km), (3) Il peut tourner aussi en mode débranché ce qui permet de gagner du temps calcul, et (4) il possède une fonctionnalité de rétrotransport (Hourdin et Talagrand, 2006). Le rétrotransport est une équivalence numérique du modèle adjoint pour le transport atmosphérique pour un modèle de transport parfaitement linéaire et symétrique. Le rétrotransport permet d'avoir accès facilement à la Jacobienne H' . En faisant tourner le modèle à l'envers dans le temps (pour l'advection et la convection, mais pas pour la diffusion), on a accès aux contributions de toutes les boîtes du modèles aux mesures faites à des détecteurs (rétropanaches), ce qui est exactement la définition de la jacobienne H' (voir après). Cette propriété est fondée sur le caractère auto-adjoint de l'équation d'advection-diffusion (Hourdin et al., 1999). Un exemple de rétropanache est donné en Figure 4. Un autre intérêt de LMDZ est qu'il a été couplé récemment avec le modèle de chimie atmosphérique INCA (Hauglustaine et al., 2004) développé au LSCE. Cela m'a donc permis d'étudier aussi les sources et puits des gaz réactifs, comme le méthane. Enfin, LMDZ comprend aussi deux paramétrisations différentes du transport dans la couche limite atmosphérique. La première est basée sur une

fermeture locale classique de l'équation d'advection-diffusion avec un coefficient de diffusion turbulente K (comme pour TM2 et TM3). Plus récemment, un schéma de couche limite en flux de masse a été développé par Hourdin et al. (2002) pour mieux représenter les échanges d'air près de la surface terrestre jusqu'à la zone d'entraînement. Nous évoquerons dans le chapitre V l'intérêt d'une telle approche pour le CO_2 .

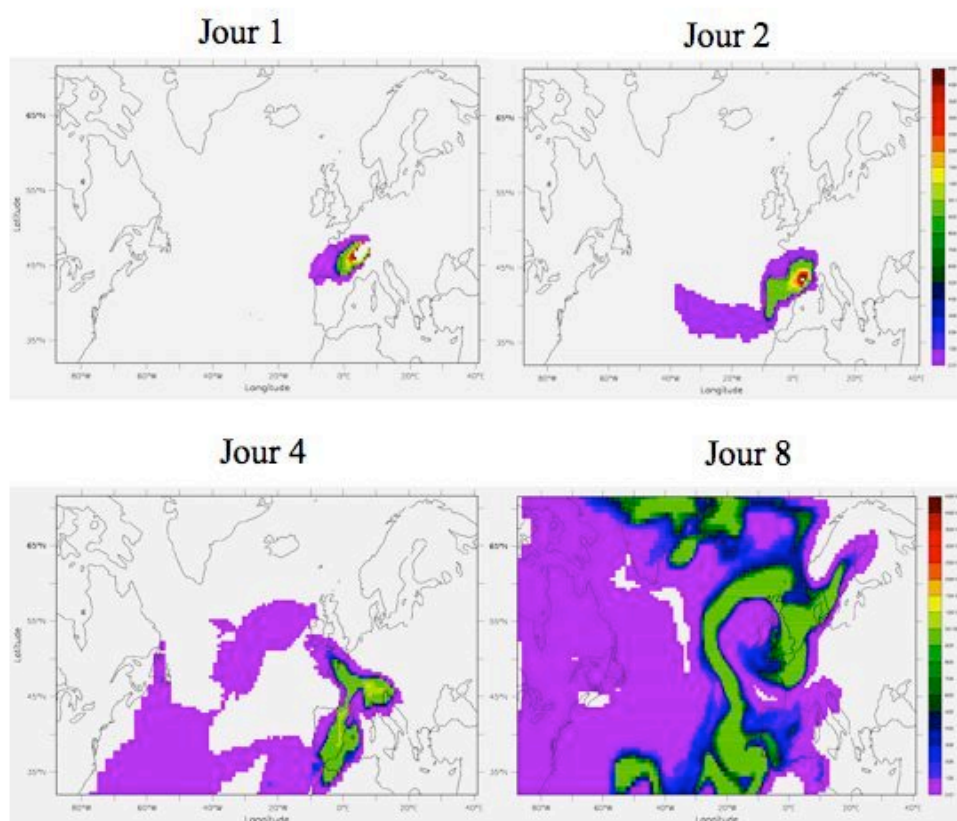


Figure 4 : Exemple de rétropanache pour la station de Schauinsland (Allemagne).

Ces trois modèles ont des caractéristiques de transport assez différentes. LMDZt est le modèle présentant le temps d'échange inter-hémisphérique le plus petit parmi l'ensemble des modèles de l'expérience TRANSCOM (1.1-2.1 ans). Cela indique une tendance du modèle LMDZt à lisser plus efficacement les gradients de concentration que les autres modèles, ce qui se voit bien sur le gradient nord-sud de fuels fossiles (Figure 3). L'effet correcteur de TM3 est le plus fort des trois modèles à cause d'un effet d'une plus grande résolution verticale et de changement dans la paramétrisation de la convection par rapport à TM2. LMDZ présente un effet correcteur saisonnier intermédiaire (~ 0.5 ppm au maximum) entre TM2 ($\sim -0.5-0$ ppm) et TM3 (~ 2 ppm).

Le modèle de chimie atmosphérique que j'ai utilisé est le modèle INCA (INteractions with Chemistry and Aerosols) développé à l'IPSL (Hauglustaine et al., 2004). Ce modèle, couplé à LMDZ, a été récemment utilisé pour étudier le cycle de l'ozone, les aérosols et le cycle du carbone. Dans la version gaz, 33 espèces sont considérées sur la base du système $\text{CH}_4\text{-CO-NO}_x\text{-O}_3$ représentatif de la photochimie de la troposphère,

avec 19 réactions photochimiques, 62 réactions en phase gazeuse et 4 en phase hétérogène. En pratique, j'ai utilisé une version linéarisée du modèle INCA qui résout les concentrations de méthane et de méthyl-chloroforme à partir de champs d'oxydant (dont OH) pré-calculés. J'ai utilisé comme *a priori* les champs de OH calculés par le modèle MOZART (Brasseur et al., 1998 ; Hauglustaine et al., 1998).

On voit bien à travers ces trois modèles l'évolution de la modélisation du transport atmosphérique, depuis des modèles à basse résolution qui simulent bien le transport grande échelle et les mesures dans la couche limite marine, vers des modèles mieux résolus, incluant la chimie atmosphérique, l'adjoint du transport et une possibilité de zoomer sur des zones d'intérêt. Cette tendance se retrouve au niveau international avec des modèles comme TM5 (Krol et al., 2005) qui peut imbriquer plusieurs grilles haute résolution régionales dans une grille mondiale (grid nesting). Cette évolution est fortement liée aux questions scientifiques posées – l'estimation des sources et puits régionaux sur les continents – et aux capacités des machines de calculs vectorielles qui sont encore incontournables pour ce genre d'application.

2. Inversion

L'assimilation de mesures de concentration consisterait à corriger simplement l'évolution des concentrations modélisées y grâce aux mesures atmosphériques. Par exemple, une telle assimilation est opérationnelle pour l'ozone dans les systèmes de prévision météorologiques du centre européen de prévision météorologique à moyen terme (CEPMET). L'inversion franchit une étape supplémentaire car elle ajuste les concentrations modélisées aux mesures en corrigeant les sources et puits qui expliquent, conjointement avec le transport atmosphérique et la photochimie, les mesures atmosphériques.

Les premières inversions réalisées étaient basées sur un ajustement du bilan de masse par bande de latitude (Enting and Mansbridge, 1989), pour coller aux observations moyennées zonalement (mass balance inversions). Ces schémas d'inversion en bilan de masse étaient simples à mettre en œuvre grâce à des hypothèses simplificatrices (transport 2D,...) ; mais ne reflétaient que partiellement la complexité de cycle du carbone. Elles sont toujours utilisées pour modéliser des systèmes multi-traceurs (Butler et al., 2005). A partir du milieu des années 1990, des approches plus formelles du problème inverse se sont mises en place (Enting et al., 1993, 1995, 2000). Le formalisme présenté ci-après suit les conventions de Ide et al., (1997).

L'ensemble des flux à estimer forme le vecteur d'état (\mathbf{x}). Les sources et les puits à estimer sont liées aux concentrations atmosphériques mesurées par l'opérateur d'observation H :

$$\mathbf{y}^0 = H(\mathbf{x}) + \varepsilon^0 \quad \text{Eq. 2}$$

l'opérateur H combine généralement le modèle de chimie-transport avec la procédure d'interpolation des concentrations simulées qui est utilisée pour représenter des mesures atmosphériques souvent ponctuelles. ε^0 représente les erreurs d'observations qui comprennent l'erreur instrumentale et l'erreur de représentativité, c'est à dire l'erreur due à l'incapacité d'un modèle à reproduire une observation. Un exemple classique d'erreur de représentativité est le fait qu'un modèle simule la concentration moyenne d'une « boîte » ayant un volume important (typiquement 200kmx200kmx100m) alors qu'une mesure in-situ de concentration est quasi-ponctuelle. Le lissage de la topographie dans les modèles est aussi une cause importante d'erreur de représentativité. Les erreurs dans la modélisation du transport atmosphérique et de la photochimie, autrement appelées erreurs modèle, entrent aussi formellement dans la définition de l'erreur d'observation. A partir des erreurs ε^0 , supposées non biaisées, on peut définir une matrice de variance covariance d'erreur d'observation selon:

$$\mathbf{R} = \left\langle \varepsilon^0 (\varepsilon^0)^T \right\rangle \quad \text{Eq. 3}$$

Le problème vient du fait qu'en général qu'il est difficile de déterminer l'erreur de représentativité, ce qui rend souvent impossible le calcul explicite de \mathbf{R} qu'on estime alors par différentes méthodes plus ou moins objectives (voir §3).

Les inversions atmosphériques réalisées jusqu'à présent ont utilisé, pour la plupart, une valeur *a priori* des flux à estimer ou ébauche (\mathbf{x}^b). L'ébauche est associée à une erreur ε^b définie comme:

$$\varepsilon^b = \mathbf{x} - \mathbf{x}^b \quad \text{Eq. 4}$$

La matrice de variance-covariance associée s'écrit alors:

$$\mathbf{B} = \left\langle \varepsilon^b (\varepsilon^b)^T \right\rangle \quad \text{Eq. 5}$$

Comme pour les erreurs d'observations, les erreurs sur l'ébauche sont supposées non biaisées. On suppose enfin que les erreurs d'observation et les erreurs l'ébauche ne sont pas corrélées entre elles, soit :

$$\left\langle \varepsilon^0 (\varepsilon^b)^T \right\rangle = 0 \quad \text{Eq. 6}$$

L'ensemble de ces hypothèses s'inscrivent dans le cadre plus général de l'approche bayésienne où les grandeurs (observations et variables à estimer) ne sont plus

représentées seulement par une moyenne et un écart-type mais par une fonction de densité de probabilité (FDP). La connaissance *a priori* du vecteur d'état \mathbf{x} est décrite par une FDP ($P(\mathbf{x})$). De même, $P(\mathbf{y})$ est la PDF de la mesure avant qu'elle soit faite. Le processus d'observation est décrit par le modèle direct H (ou opérateur d'observation) qui projette l'espace des sources sur l'espace des observations. Le théorème de Bayes fournit un formalisme dans le cadre des probabilités conditionnelles pour inverser cette projection en mettant à jour la PDF *a priori* à l'aide de la FDP décrivant les observations (Tarantola, 1987 ; Rodgers, 2000) :

$$P(\mathbf{x}|\mathbf{y}) = \frac{P(\mathbf{y}|\mathbf{x})P(\mathbf{x})}{P(\mathbf{y})} \quad \text{Eq. 7}$$

$P(\mathbf{x}|\mathbf{y})$ est la FDP *a posteriori* de \mathbf{x} quand les observations \mathbf{y} sont données. $P(\mathbf{y}|\mathbf{x})$ décrit la connaissance de \mathbf{y} qu'on obtiendrait pour \mathbf{x} donné, grâce à la projection par le modèle direct. En pratique, $P(\mathbf{y})$ est généralement traitée comme une constante de normalisation qu'on ne calcule pas (Rodgers, 2000). La loi statistique la plus utilisée pour décrire les FDP est la loi normale (gaussienne). Cette hypothèse est relativement valide pour les observations atmosphériques et pour des flux pouvant être à la fois négatifs et positifs comme les échanges de CO_2 avec la surface, mais l'est moins pour des flux toujours positifs comme les émissions anthropogéniques, pour lesquelles une loi de type log-normale serait plus adaptée. Cependant, l'hypothèse gaussienne est plus facile à mettre en œuvre au niveau algébrique, étant associée aux systèmes linéaires et à la norme euclidienne (L2). Dans ces conditions, si les PDF $P(\mathbf{y}|\mathbf{x})$ et $P(\mathbf{x})$ sont gaussiennes, on montre que $P(\mathbf{x}|\mathbf{y})$ est aussi gaussienne.

Dans le cadre probabiliste bayésien, la recherche du vecteur d'état optimal \mathbf{x}^a revient à maximiser la probabilité des observations connaissant un état *a priori* du système (maximum de vraisemblance). Cela conduit à la définition d'une fonction de coût $J(\mathbf{x})$ qu'il faut minimiser (Tarantola, 1987) :

$$J(\mathbf{x}) = \frac{1}{2}(\mathbf{y}^0 - H(\mathbf{x}))^T \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{y}^0 - H(\mathbf{x})) + \frac{1}{2}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b)^T \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b) \quad \text{Eq. 8}$$

Le premier terme de $J(\mathbf{x})$ représente la distance modèle/mesures modulée par la matrice de variance-covariance des erreurs d'observations. Ce terme provient de la PDF conditionnelle $P(\mathbf{x}|\mathbf{y})$ de l'équation 7. Le second terme est un terme de régularisation représentant la distance du vecteur d'état à l'ébauche modulée par la matrice de variance-covariance des erreurs sur l'ébauche. Ce terme provient de la PDF $P(\mathbf{x})$ de l'équation 7.

Dans le cas général, le gradient de la fonction de coût s'écrit :

$$\nabla J(\mathbf{x}) = H^T \mathbf{R}^{-1}(H(\mathbf{x}) - \mathbf{y}^0) + \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b) \quad \text{Eq. 9}$$

avec $H' = \left[\frac{\partial H_i(\mathbf{x})}{\partial x_j} \right]_{i,j}$ opérateur linéaire tangent de H .

Quand le problème inverse est linéaire (e.g. cas du CO_2), l'opérateur H se réduit à un produit matrice-vecteur $H(\mathbf{x}) = \mathbf{H}\mathbf{x}$ et on a $H' = \mathbf{H}$. On parle alors de matrice jacobienne pour \mathbf{H} . La fonction de coût est alors quadratique et les équations 7 et 8 s'écrivent :

$$J(\mathbf{x}) = \frac{1}{2}(\mathbf{y}^0 - \mathbf{H}\mathbf{x})^T \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{y}^0 - \mathbf{H}\mathbf{x}) + \frac{1}{2}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b)^T \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b) \quad \text{Eq. 10}$$

$$\nabla J(\mathbf{x}) = \mathbf{H}^T \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{H}\mathbf{x} - \mathbf{y}^0) + \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b) \quad \text{Eq. 11}$$

On trouve alors le vecteur d'état optimal selon :

$$\mathbf{x}^a = \mathbf{x}^b + (\mathbf{H}^T \mathbf{R}^{-1} \mathbf{H} + \mathbf{B}^{-1})^{-1} \mathbf{H}^T \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{y}^0 - \mathbf{H}\mathbf{x}^b) \quad \text{Eq. 12}$$

La matrice de variance-covariance d'erreur sur \mathbf{x}^a (erreur d'estimation) est alors l'inverse de la matrice Hessienne (gradient d'ordre 2 de la fonction de coût) :

$$\mathbf{A} = (\mathbf{H}^T \mathbf{R}^{-1} \mathbf{H} + \mathbf{B}^{-1})^{-1} = \mathbf{B} - \mathbf{B} \mathbf{H}^T (\mathbf{H} \mathbf{B} \mathbf{H}^T + \mathbf{R})^{-1} \mathbf{H} \mathbf{B} = (\nabla^2 J)^{-1} \quad \text{Eq. 13}$$

Le problème inverse peut être non linéaire. Dans ces conditions, on ne peut plus écrire l'opérateur d'observation sous la forme d'une matrice \mathbf{H} . Si le problème peut être supposé peu non linéaire, on utilise une procédure itérative d'inversion dans laquelle le système est linéarisé autour du vecteur d'état courant \mathbf{X}_n à chaque itération n . Dans ces conditions, l'expression du vecteur d'état optimal devient pour l'itération $n+1$ en utilisant une formulation au point fixe \mathbf{X}_b (Tarantola, 1987) :

$$\mathbf{x}_{n+1}^a = \mathbf{x}^b + (\mathbf{H}_n^{T^l} \mathbf{R}^{-1} \mathbf{H}_n^l + \mathbf{B}^{-1})^{-1} \mathbf{H}_n^{T^l} \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{y}^0 - H(\mathbf{x}_n^a) + \mathbf{H}_n^l(\mathbf{x}_n^a - \mathbf{x}^b)) \quad \text{Eq. 14}$$

Cette approche demande de calculer, à chaque itération, la jacobienne \mathbf{H}_n^l et la nouvelle trajectoire du modèle $H(\mathbf{X}_n^a)$ sans approximation linéaire. La matrice de variance-covariance d'erreur sur les flux optimisés peut alors être estimée par :

$$\mathbf{A} \approx (\mathbf{H}_\infty^{T^l} \mathbf{R}^{-1} \mathbf{H}_\infty^l + \mathbf{B}^{-1})^{-1} = \mathbf{B} - \mathbf{B} \mathbf{H}_\infty^{T^l} (\mathbf{H}_\infty^l \mathbf{B} \mathbf{H}_\infty^{T^l} + \mathbf{R})^{-1} \mathbf{H}_\infty^l \mathbf{B} \quad \text{Eq. 15}$$

où \mathbf{H}_∞^l représente la matrice jacobienne au maximum de vraisemblance, estimée par \mathbf{H}_n^l pour la dernière itération réalisée.

En ce qui concerne l'optimisation des sources et puits de composés atmosphériques par inversion du transport et de la chimie atmosphérique, l'opérateur d'observation H peut être linéaire ou non linéaire selon le composé.

Pour le CO_2 , qui n'est pas dégradé chimiquement dans la troposphère, le problème inverse peut être considéré comme linéaire. Cependant, si on utilise des mesures isotopiques du CO_2 , comme $^{13}\text{CO}_2$ ou C^{18}OO , on introduit une non-linéarité dans le système. En effet, les concentrations de ces composés s'expriment en fonction du produit de deux variables du vecteur d'état : le flux et la couleur isotopique (voir eq. 19). Les mesures isotopiques sont intéressantes pour séparer des processus qui privilégient l'absorption ou l'émission d'un isotopomère par rapport à un autre (Enting, 1993 ; Ciais et al., 1995 ; Hein et al., 1997 ; Bousquet et al., 1999b). On parle de fractionnement isotopique. Ainsi, le $^{12}\text{CO}_2$ est absorbé préférentiellement au $^{13}\text{CO}_2$ lors de la photosynthèse. L'isotope $^{13}\text{CO}_2$ permet donc d'apporter des informations supplémentaires au système inverse pour séparer les flux biosphériques continentaux (fort fractionnement) des flux océaniques (faible fractionnement). Les données atmosphériques de $^{13}\text{CH}_4$ permettent de séparer les différentes sources de méthane en trois catégories (énergie, processus anaérobies, combustion de biomasse) en fonction de leur fractionnement isotopique (Bousquet et al., 2006).

Pour l'isotopomère majoritaire ($^{12}\text{CO}_2$ ou $^{12}\text{CH}_4$ par exemple), on peut écrire la concentration simulée pour un temps t et une localisation i comme une combinaison linéaire des sources et puits (Hein et al., 1997) :

$$y_{i,t} = \sum_{j=1}^n x_j h_{i,j} \quad \text{Eq. 16}$$

où j représente les différentes sources et puits présents ou passés contribuant à la concentration $y_{i,t}$, x_j est l'élément du vecteur d'état correspondant à la source j , et $h_{i,j}$ est l'élément de la matrice Jacobienne \mathbf{H}' traduisant la contribution de la source j à la station i . Pour le $^{13}\text{CO}_2$ (ou le $^{13}\text{CH}_4$), il faut introduire la « couleur » isotopique Δ_j de la source j , qui traduit une discrimination ou un déséquilibre du processus par rapport à l'atmosphère et s'exprime généralement comme la différence entre un fractionnement isotopique δ_j et le rapport isotopique moyen de l'atmosphère δ_{atm} :

$$\Delta_j = \delta_j - \delta_{\text{atm}} \quad \text{Eq. 17}$$

L'introduction de Δ dans le vecteur d'état donne un nouveau vecteur d'état \mathbf{X} :

$$\mathbf{X} = \begin{pmatrix} \mathbf{x} \\ \Delta \end{pmatrix} \quad \text{Eq. 18}$$

L'équation pour le rapport isotopique exprimé en ‰ s'écrit alors:

$$\delta_{i,t} - \delta_{atm} = \sum_{j=1}^n \frac{\Delta_j x_j}{y_{atm}} h_{i,j} \quad \text{Eq. 19}$$

avec δ_{atm} rapport isotopique moyen de l'atmosphère et y_{atm} rapport de mélange moyen du gaz étudié. $\delta_{i,t}$ dépend donc des produits de deux variables du vecteur d'état $\Delta_j x_j$ appelés isoflux.

Le vecteur d'observations \mathbf{y}^0 devient alors :

$$\mathbf{Y}^0 = \begin{pmatrix} \mathbf{y}^0 \\ \delta - \delta_{atm} \end{pmatrix} \quad \text{Eq. 20}$$

On utilise alors le formalisme décrit précédemment pour les problèmes quasi-linéaires avec \mathbf{X} comme vecteur d'état et \mathbf{Y}^0 comme vecteur d'observations. En pratique, comme on n'utilise généralement pas de distribution spatiale des couleurs isotopiques mais simplement un coefficient d'ajustement, ce sont les fonctions de réponse du transport seul (h_{ij}) qui sont utilisées pour calculer l'isoflux. Il n'est donc pas nécessaire de calculer H_n^l à chaque itération car le transport atmosphérique est supposé linéaire.

La prise en compte de la réactivité chimique des composés atmosphériques introduit aussi une non-linéarité dans le CTM car la production ou la destruction chimique d'un composé dépend généralement de sa propre concentration ou de concentrations d'autres composés. Par exemple, l'oxydation du méthane par OH, soit :



conduit à un terme de puits pour CH_4 qui s'écrit :

$$\frac{d[\text{CH}_4]}{dt} = -k[\text{OH}\bullet][\text{CH}_4] \quad \text{Eq. 21}$$

où k représente la constante cinétique de la réaction. Comme le puits dépend de la concentration de méthane, son optimisation modifie le champ tri-dimensionnel de méthane atmosphérique qui modifie en retour le puits, etc... Dans ce cas, la non

linéarité concerne le CTM et il est donc nécessaire de mettre à jour la trajectoire du modèle $H(\mathbf{X}_n^a)$ et la matrice jacobienne H_n^l à chaque itération.

Pour ces deux applications, isotopes et chimie homogène, le problème inverse est seulement faiblement non linéaire et la convergence est établie après au plus quelques itérations (parfois une seule itération suffit !).

Il existe une grande variété de méthodes pour résoudre pratiquement le problème inverse de l'estimation des sources et puits de traceurs atmosphériques. Si le système n'a pas une trop grande taille, il est possible de calculer explicitement le vecteur d'état optimal (\mathbf{x}^a) et les incertitudes qui lui sont associées (\mathbf{A}). C'est cette méthode qui a été utilisée par la majorité des inversions atmosphériques réalisées jusqu'à aujourd'hui. Elle a l'avantage d'être simple à mettre en œuvre et elle permet d'avoir accès analytiquement à l'incertitude associée au vecteur d'état optimal. Selon la taille de l'espace des flux et de l'espace des observations, on peut utiliser l'une ou l'autre des formulations de \mathbf{A} (Eq. 12 et Eq. 14).

Une autre approche possible consiste à minimiser directement la fonction $J(\mathbf{x})$ à l'aide d'un algorithme adapté comme le gradient conjugué. Dans ce cas, il est nécessaire de calculer le gradient de la fonction de coût J (Eq. 9 et 11). Le développement du modèle adjoint de l'opérateur H peut alors s'avérer utile en fournissant un outil efficace de calcul de H' . Cette seconde approche est obligatoire quand la taille du problème devient trop grande pour les capacités de calcul, comme c'est le cas pour la prévision météorologique par exemple avec 10^7 valeurs à optimiser dans le vecteur d'état. L'utilisation grandissante de reconstructions satellites des colonnes de traceurs atmosphériques (CO , CH_4 , ...) et la volonté de résoudre les flux à des échelles de plus en plus fines spatialement et temporellement entraîne une évolution rapide des méthodologies utilisées dans notre discipline vers celles de la prévision météorologique. Ainsi, récemment, la méthode variationnelle du 4D-VAR (Courtier et al., 1994) déjà utilisées pour la prévision météorologique, et la méthode séquentielle du filtre de Kalman d'ensemble (Evensen, 1994), ont fait leur apparition pour inverser les sources et puits de CO_2 à l'échelle mondiale mais aussi régionale (Chevallier et al., 2005 ; Zupanski, 2005 ; Peters et al., 2005 ; Bruhwiler et al., 2005).

3. Régularisation du problème inverse

Le problème inverse de l'inversion des sources et puits de gaz atmosphérique est souvent mal posé, c'est à dire que nous disposons de moins d'observations que d'inconnues. En effet, jusqu'à présent les inversions atmosphériques se sont appuyées sur les réseaux de mesures de surface, qui sont le plus souvent ponctuelles dans le temps (1 mesure par semaine par prélèvement d'air en flacons) et dans l'espace (~100 sites pour le CO_2). Le développement de stations continues de mesures, notamment en Europe, permet d'améliorer toutefois la résolution temporelle. La résolution spatiale, quant à elle, augmentera prochainement avec la généralisation de l'utilisation des reconstructions satellites. Par ailleurs, les sites de mesures au sol ne sont pas également répartis (Figure 5) et de grandes zones géographiques, pourtant

fondamentales pour les cycles biogéochimiques étudiés, restent sous échantillonnées, comme l'Amazonie, l'Afrique et la Sibérie. On dispose donc d'observations éparses dans le temps et l'espace.

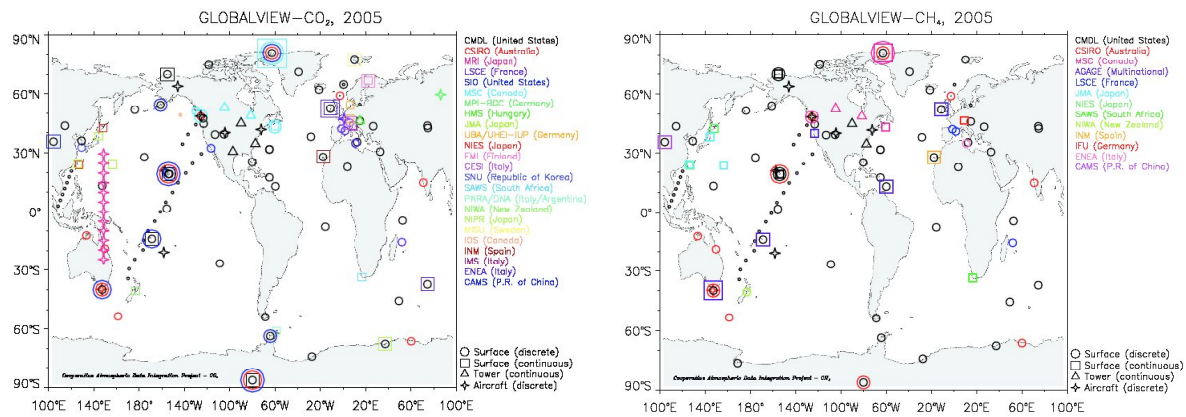


Figure 5 : Réseau de mesures international du CO₂ (gauche) et du CH₄ (droite) synthésés dans la base de données Globalview. D'après www.cmdl.noaa.gov.

A quelle échelle souhaite-t-on estimer les sources et puits ? La demande sociétale d'estimation des émissions et des puits des composés atmosphériques couvre les échelles régionales à mondiales sur une base de temps annuelle. La compréhension du fonctionnement de la biosphère demande une étude des processus des échelles locales à régionales pour une base de temps pouvant descendre à l'heure (ex. de la photosynthèse). L'atmosphère intègre les sources et puits et permet aux concentrations mesurées d'être représentatives d'une zone plus grande qu'une mesure directe de flux dont la représentativité n'excède pas 1 km². Toutefois cette intégration est inévitablement associée à une perte d'information sur les petites échelles, notamment à cause du caractère irréversible de la diffusion atmosphérique et de certaines réactions chimiques. La résolution des flux à l'échelle du CTM (typiquement 2°x2°) apparaît alors comme une solution intéressante. Dans ces conditions, le problème inverse est mal posé avec un nombre d'inconnues à chaque pas de temps (~10⁴) qui dépasse de deux ordres de grandeur le nombre d'observations (~10²). Le problème inverse doit alors être régularisé.

Différents types de régularisation ont été développés dans le domaine général des méthodes inverses (Rodgers, 2000). L'approche bayésienne correspond à une régularisation du problème inverse par l'utilisation d'une connaissance *a priori* des sources et puits à optimiser, symbolisée par le vecteur \mathbf{x}^b et sa matrice de variance-covariance \mathbf{B} (Tarantola, 1987). Pour \mathbf{x}^b , l'approche retenue consiste à utiliser une distribution spatio-temporelle du flux à optimiser, fournie par un modèle biogéochimique (ex. production nette d'un écosystème) ou par des inventaires d'émissions (ex. émissions liées à la consommation d'énergie). Les premières inversions atmosphériques groupaient les flux sur de grandes régions (ex. Amérique du Nord) ou des bandes de latitudes et résolvaient un facteur scalaire par grande région et par pas de temps (l'année ou le mois). Une telle approche revient à lier les différentes boîtes de la grande région par une corrélation d'erreur de 1. Les

corrélations d'erreurs entre grandes régions (termes non diagonaux de **B**) étaient le plus souvent négligées ce qui simplifie la matrice **B** en la rendant diagonale. Dans ces conditions, la variance associée au vecteur d'état x^a (diagonale de **A**), appelée erreur d'estimation, est fortement réduite par rapport à celle associée à x^b car le petit nombre d'inconnues est contraint par un grand nombre d'observations. L'hypothèse sous-jacente d'une telle approche est que la distribution spatiale du flux à l'intérieur de chaque grande région n'est pas entachée d'erreur. Toute erreur dans cette distribution se traduira en erreur dans le flux optimisé qui n'apparaîtra pas dans l'erreur d'estimation. On parle alors d'erreur liée à l'agrégation des flux ou erreur d'agrégation (Kaminski et al., 2001, voir chapitre IV). La plupart des inversions atmosphériques réalisées jusqu'à ce jour ont utilisé un groupement préalable des flux dans des régions (Enting et al. 1995 ; Rayner et al., 1999 ; Bousquet et al., 2000 ; Gurney et al., 2002 ; Bousquet et al., 2006). Un des groupements les plus utilisés à l'heure actuelle est celui de l'expérience TRANSCOM (Figure 6) avec 11 régions océaniques et 11 régions continentales pour le CO₂ (Gurney et al., 2002).

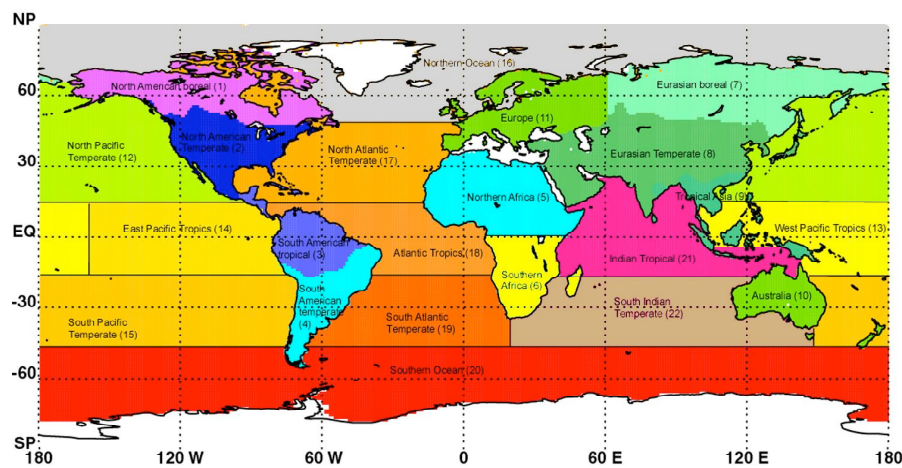


Figure 6 : Carte des 22 Régions TRANSCOM pour l'optimisation des flux de CO₂. D'après www.transcom.colostate.edu.

La surface des régions résolues dans les inversions diminue avec le temps afin de limiter l'erreur d'agrégation. En nous appuyant sur une carte mondiale de végétation (IGBP), et la distribution des flux océaniques de Takahashi et al. (2002), nous avons ainsi défini 90 régions (50 continentales et 40 océaniques) que nous avons utilisées pour calculer ou agréger les sources et puits de CO₂ (Figure 7).

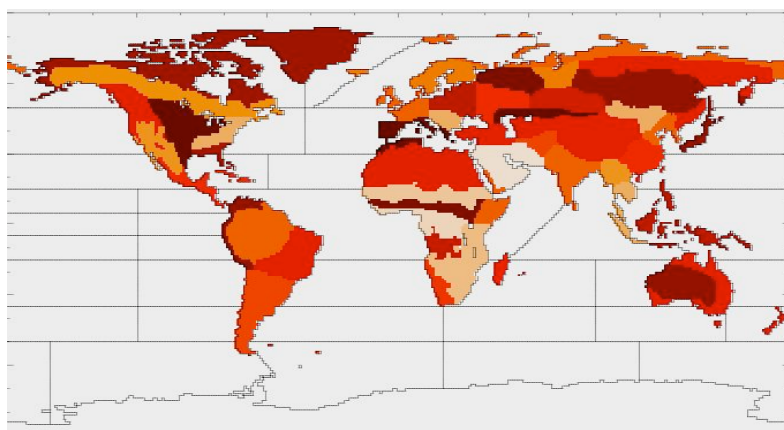


Figure 7 : Carte des 90 régions utilisées au LSCE pour l'inversion des flux de CO₂

La réduction au maximum de l'erreur d'agrégation demande de résoudre les flux à l'échelle du modèle (ou de partir de distribution spatiale fiable des flux). Dans ce cas, l'erreur d'agrégation est fortement réduite, mais l'erreur d'estimation reste proche de l'erreur *a priori* car des observations éparses amènent peu d'information à l'échelle d'une boîte du modèle. Une méthode pour diffuser l'information des observations dans l'espace des flux, spatialement et temporellement, est alors d'introduire des covariances d'erreurs sur les flux a priori (termes non diagonaux de **B**). On parle alors de contrainte douce (Engelen et al., 2002) par opposition à la contrainte forte correspondant à imposer des corrélations d'erreur à 1 (grandes régions). Cette approche est fondée sur l'existence de telles corrélations d'erreur, ce qui n'est pas encore réellement démontrée (Chevallier et al., 2006). Cependant, différents groupes travaillent sur ces questions (Carouge, 2006 ; Rödenbeck et al., 2003, Peylin et al., 2005).

La détermination des variances et covariances d'erreur sur les observations et les flux est un problème majeur des inversions de données. Pour les observations (matrice **R**), les variances devraient comprendre l'erreur instrumentale (généralement faible) et l'erreur de représentativité, c'est à dire l'erreur représentant la capacité du modèle à représenter les observations. Cette erreur peut être due à des erreurs de modélisation ou au fait qu'on compare des mesures ponctuelles à des moyennes de boîtes à faible résolution spatiale. Elle est difficile à évaluer et les approches généralement retenues dans le cas des inversions mensuelles consistent à utiliser des approximations basées sur la variance infra-mensuelle des observations (Peylin et al., 2002 ; GLOBALVIEW-CO₂, 2005). Pour les covariances, la plupart des inversions négligent l'existence de covariances d'erreur sur les observations.

En ce qui concerne les variances d'erreur sur les flux (termes diagonaux de **B**), l'approche généralement choisie est de prescrire des erreurs faibles sur les émissions fossiles supposées mieux connues (~5-10%) et des erreurs importantes sur les autres flux moins connus afin de ne pas figer l'inversion sur les valeurs a priori. Cela revient à limiter au maximum l'influence du terme de régularisation des termes les moins connus dans la fonction de coût. Les covariances d'erreur sur les flux ont reçu plus d'intérêt à mesure que la résolution spatiale des flux augmentait. Pour le moment, les études

publiées résolvant les flux à l'échelle du CTM ont prescrit des corrélations d'erreur r entre deux points x_i et x_j décroissant exponentiellement avec la distance D entre ces deux points, en fonction d'une longueur de corrélation L (Rödenbeck et al., 2003 ; Peylin et al., 2005):

$$r(x_i, x_j) = \exp\left(-\frac{D(x_i, x_j)}{L}\right) \quad \text{Eq. 22}$$

Les longueurs L utilisées sont de l'ordre de 1000 km sur les continents et de 1500-2000 km sur les océans, traduisant une plus grande homogénéité du milieu océanique par rapport au milieu continental. L'aspect isotrope de cette structure d'erreur est critiquable au regard de notre connaissance du fonctionnement de la biosphère. Une autre étude récente par Michalak et al. (2005) propose une méthodologie pour déterminer objectivement les variances et covariances d'erreur. Je reviendrai sur cette question des variances/covariances au chapitre IV, notamment au travers des résultats de la thèse de Claire Carouge sur l'optimisation des flux de CO_2 sur l'Europe (Carouge, 2006).

Enfin, comme de nombreuses régions restent mal observées dans les inversions, les flux optimisés sont souvent bruités, c'est à dire qu'ils montrent une variabilité d'un pas de temps à l'autre trop forte par rapport à notre connaissance des cycles biogéochimiques. Pour remédier à cela, différentes approches de filtrage plus ou moins sophistiquées ont été mises en place, comme les SVD tronquées (Baker, 2004) ou la résolution séparée des différentes composantes du cycle du CO_2 (saisonnier, interannuel et résidus) (Rödenbeck et al., 2005). Nous avons choisi une approche consistant à mettre une contrainte additionnelle sur les différences de flux d'un pas de temps sur l'autre : elles ne doivent pas dépasser (au sens statistique) un pourcentage choisi (ex : $\sigma=100\%$) des différences des flux *a priori* (Peylin et al., 2002). Le pourcentage seuil a été choisi en fonction de la connaissance physique *a priori* des flux d'échange entre l'atmosphère, les surfaces continentales et les océans, notamment grâce aux modèles biogéochimiques. Ce filtrage a le mérite d'être simple mais alourdit la taille du problème inverse en doublant approximativement la dimension de l'espace des observations.

II. Inversion des sources et puits de gaz carbonique (CO₂)

Pour des échelles de temps allant de l'heure à la décennie, on peut considérer que le CO₂ s'échange entre trois réservoirs : la biosphère continentale, les océans et l'atmosphère (Figure 8). De façon naturelle et à l'équilibre, l'absorption de CO₂ par la photosynthèse est compensée par les respirations autotrophes et hétérotrophes à l'échelle de chaque écosystème. Le dégazage de CO₂ des eaux chaudes tropicales est compensé par une absorption dans les eaux plus froides des moyennes et hautes latitudes (Takahashi et al., 2002). Depuis la révolution industrielle, les activités humaines perturbent l'équilibre naturel. La combustion des combustibles fossiles et la production de ciment rajoute chaque année une quantité de CO₂ dans l'atmosphère qui est bien connue grâce au suivi de l'activité économique ($6.3 \pm 0.4 \text{ GtC/an}$ pour les années 1990, CDIAC, 2003). Le changement d'utilisation des sols, et plus particulièrement la déforestation tropicale depuis 50 ans, ajoute aussi du CO₂ dans l'atmosphère mais dans des proportions beaucoup plus difficiles à évaluer malgré de nombreuses tentatives (Achard et al., 2002 ; Houghton, 2003 ; DeFries et al., 2002). Les estimations mondiales actuelles font état d'une émission variant de 0.6 à 2.5 GtC/an pour les années 1990 (IPCC, 2001).

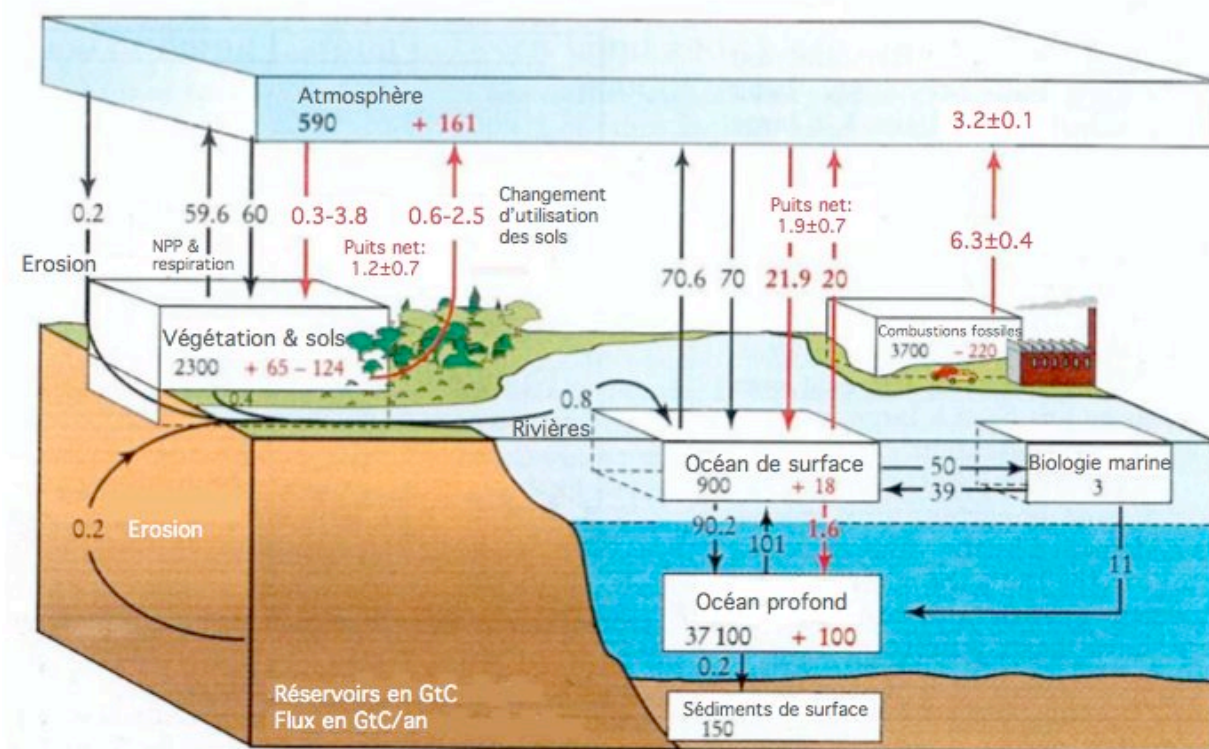


Figure 8: Cycle du carbone pour la période 1990-1999. Ordre de grandeur des réservoirs et des échanges de carbone, les échanges naturels sont indiqués en noir et la perturbation anthropique en rouge. Les stocks de carbone sont donnés en Giga tonnes de carbone (GtC) et les flux en GtC.an⁻¹. D'après Gruber et Sarmiento [2002]

L'ensemble de ces émissions s'accumulent dans l'atmosphère et contribuent à y augmenter la concentration de CO₂. L'impact des activités humaines sur les concentrations de CO₂ avait déjà été prévue par Arrhenius il y a plus de 100 ans (Arrhenius, 1896 ; Heimann, 1997). Ce scientifique scandinave avait calculé un accroissement de 6 ppm du CO₂ au cours du 20^e siècle à cause de la combustion de carbone fossile. Il avait supposé que les émissions resteraient constantes et égales à 0.7 GtC/an, et que le temps d'équilibration entre l'océan et l'atmosphère était instantané. Evidemment, cette prédiction sous estime fortement les 75 ppm d'augmentation du CO₂ atmosphérique depuis 1900, mais elle est tout de même remarquable compte tenu des connaissances et des préoccupations de la fin du XIX^e siècle. Ce n'est qu'après la seconde guerre mondiale, en 1958, que C.D. Keeling s'intéressa de nouveau au CO₂ atmosphérique et commença son suivi à la station de Mauna loa (Hawaï) puis au pôle sud (Keeling, 1960, 1968). Rapidement, il est devenu clair que le CO₂ augmentait dans l'atmosphère, mais à un taux qui ne reflétait que la moitié environ des émissions dues à la combustion des combustibles fossiles et à la production de ciment. De plus le taux de croissance atmosphérique subissait de fortes variations interannuelles dont certaines pouvaient reliées à ENSO (Bacastow, 1976). Le taux de croissance du CO₂ atmosphérique était très bien connu grâce à l'excellente précision des mesures de CO₂ par spectroscopie infrarouge non dispersive ou, plus récemment, par chromatographie en phase gazeuse. Il est de 3.2±0.1 GtC/an en moyenne pour les années 1990 (IPCC, 2001).

Le CO₂ manquant devait être absorbé quelque part. Le candidat naturel à cette absorption est l'océan. Le déséquilibre des pressions partielles de CO₂ à l'interface air mer crée par l'augmentation du pCO₂ dans l'air engendre en effet un flux net de l'atmosphère vers l'océan. Les premiers calculs avec des modèles en boîtes (Oeshger, et al., 1975) laissaient d'ailleurs supposer qu'il y avait un équilibre entre les émissions fossiles et une absorption nette de CO₂ par les océans (Siegenthaler et Oeshger, 1978). Cependant, on savait depuis les travaux de Revelle (1957) que la capacité d'absorption du CO₂ par le gros réservoir de carbone que constitue l'océan était divisée par 10 à cause de la chimie des carbonates. La découverte d'émissions supplémentaires par la déforestation, notamment tropicale (Woodwell et al., 1978), lança dès lors la recherche de ce qu'on a appelé « le puits manquant », c'est à dire la différence entre les émissions de carbone fossile, le changement d'utilisation des sols, et l'absorption de CO₂ par les océans, qui permet d'équilibrer le bilan mondial de CO₂. L'utilisation de mesures isotopiques dans l'atmosphère (Ciais et al., 1995), l'évolution passée du CO₂ reconstituée à l'aide des carottes de glace (Barnola et al., 1987), et de nombreuses études de modélisation (Tans et al., 1990 ; Ciais et al., 1995) ont introduit petit à petit l'idée que la biosphère continentale pouvait expliquer ce puits manquant. Aujourd'hui, l'estimation du puits net océanique est convergente entre différentes approches basées sur des mesures (Feely et al., 2002) ou des modèles (Lequéré et al., 2003) autour de 1.9±0.7 GtC/an. La fermeture du bilan mondial de CO₂ impose alors un puits net continental moyen de 1.2±0.8 GtC/an (années 1990). Ce puits reflète la somme du changement d'utilisation des sols, de la combustion de la biomasse et de l'absorption de CO₂ par la végétation. Les mécanismes exacts de cette absorption restent mal quantifiés encore aujourd'hui. La fertilisation de la végétation liée à l'augmentation du CO₂ atmosphérique a montré en laboratoire et lors

d'expériences grande échelle (DeLucia et al., 1999) qu'elle pouvait jouer un rôle. La fertilisation par l'azote est aussi une piste possible, au moins dans l'hémisphère nord, où de grosses quantités d'engrais sont utilisées (Vitousek et al., 1997). L'évolution du climat, notamment l'augmentation de la température de $0.6 \pm 0.3^\circ$ au depuis 150 ans, est aussi une cause possible (IPCC, 2001). La repousse de forêts dans l'hémisphère nord, suite à des politiques volontaristes de reforestation, contribue aussi au puits biosphérique (Pacala et al., 2001). La part respective de ces mécanismes dans le puits continental est encore largement incertaine et limite notre capacité à prédire l'évolution future du climat. L'estimation et la régionalisation des sources et puits de CO_2 est donc particulièrement importante pour améliorer notre connaissance du cycle du carbone actuel, qui sert de base aux modèles climatiques.

Parmi les deux approches vue dans l'introduction pour estimer des sources et puits de composés atmosphériques, j'ai utilisé la modélisation directe puis inverses du CO_2 atmosphérique (top-down) pour estimer les sources et puits régionaux de CO_2 . Dans la suite de ce chapitre, je décris brièvement les premiers résultats obtenus dans la modélisation du cycle du CO_2 (§1) qui ont précédé l'utilisation de l'approche bayésienne (§2), avant de présenter les résultats que j'ai obtenus pour l'estimation des puits nets (§3) et de la variabilité interannuelle du CO_2 (§4 et §5).

1. Les prémices

Les premières études de modélisation du CO_2 atmosphérique étaient des études directes : un scénario pré-établi de sources et puits était mis en entrée d'un modèle de transport atmosphérique en boîtes (Keeling et al. 1989), bidimensionnel (Enting & Mansbridge, 1989 ; Tans et al., 1990) ou tridimensionnel (Heimann et Keeling, 1989 ; Fung et al., 1983) qui simulait les mesures atmosphériques de CO_2 ou de $^{13}\text{CO}_2$. Les premières études menées ont testé différents scénarios de sources et puits pour voir lequel s'ajustait le mieux aux observations (Fung et al., 1983 ; Heimann et Keeling, 1989 ; Ramonet 1994). Les scénarios de flux s'appuyaient, et s'appuient toujours, sur des inventaires d'émissions de fuels fossiles (Marland, 1985, 1997 ; Andres et al., 1996), sur une climatologie de flux air-mer de CO_2 (T. Takahashi pour Tans et al., 1990), sur des inventaires d'émissions dus aux changement d'utilisation des sols (Houghton, 2003 ; Hao et Liu, 1994) et sur des modèles biogéochimiques de la biosphère continentale (Fung et al., 1987).

Deux études trouvant la nécessité de l'existence d'un puits de CO_2 important dans l'hémisphère nord, parues en 1989 et 1990, ont marqué le début de l'optimisation des sources et puits de CO_2 . La première étude est une monographie de quatre articles dont la lecture est toujours passionnante et pleine d'enseignements aujourd'hui (Keeling et al., 1989a ; Heimann & Keeling, 1989 ; Heimann et al., 1989 ; Keeling et al., 1989b). C'est en quelque sorte le texte fondateur de notre communauté de recherche. Dans le premier article de cette monographie, C.D. Keeling avance que le puits doit être localisé dans l'Atlantique Nord, sur la base de mesures de $\delta^{13}\text{C}$ atmosphérique et d'un modèle en boîtes. Le second article de la monographie (Heimann et Keeling 1989) met en œuvre un modèle tri-dimensionnel de transport pour représenter les concentrations de CO_2 et $^{13}\text{CO}_2$ mesurées par C.D. Keeling dans

réseau SCRIPPS. En parallèle, Pieter Tans démarrait le réseau de mesures de la NOAA qui est aujourd'hui le plus important au monde et publiait une étude sur la spatialisation des sources et puits de CO_2 à l'aide d'un modèle de transport bi-dimensionnel latitude/altitude (Tans et al., 1990). Ce travail concluait à l'existence d'un fort puits net dans la biosphère continentale de l'hémisphère nord sur la base de mesures de pCO_2 compilées par T. Takahashi et qui constitueront l'ossature de la climatologie publiée quelques années plus tard (Takahashi et al., 1997, 2002). Ce résultat a été confirmé et quantifié par de nombreuses études ultérieures, dont celles de Ciais et al. (1995) qui ont réalisé une double déconvolution du système linéaire de deux équations à deux inconnues représentant les flux océaniques et continentaux de CO_2 , avec le même modèle que Tans et al. (1990). Les mesures de O_2/N_2 ont aussi été utilisées avec succès pour optimiser le puits net mondial océanique (Battle, 1996, 2000).

J'ai commencé ma thèse en 1994 au Centre des Faibles Radioactivités (CFR) à Gif sur Yvette par la vérification que ce résultat n'était pas lié à un modèle de transport particulier. Pour cela, j'ai réalisé une inversion en bilan de masse à l'aide du modèle tridimensionnel TM2 (Heimann, 1995) qui remplaçait le modèle bidimensionnel utilisé dans l'étude de Ciais et al. (1995). Les résultats obtenus montraient que le changement de modèles modifiait significativement la répartition des puits de CO_2 , avec en particulier une réduction de 25% du puits des moyennes latitude nord, mais sans remettre en cause les principales conclusions de Ciais et al. (1995). Ce travail a donné lieu à une publication en 1996 (Bousquet et al., 1996).

La technique de double déconvolution a été utilisée pour optimiser les variations temporelles des flux océaniques et continentaux à l'échelle mondiale à l'aide de mesures de CO_2 et de d^{13}C , avec des résultats parfois contradictoires aussi pour les variations interannuelles (Francey et al., 1995 ; Keeling et al., 1995). Les flux océaniques et continentaux calculés par Keeling et al. (1995) étaient très variables d'une année sur l'autre et montraient une très forte anti-corrélation. Dans l'étude de Francey et al. (1995), les flux océaniques et continentaux calculés présentaient nettement moins de variabilité interannuelle et étaient moins anti-corrélés. Dans les deux cas, la variabilité des flux océaniques était plus forte que celle attendue par les océanographes. Aujourd'hui les très fortes variations de l'étude de Keeling apparaissent relativement suspectes, au regard des résultats obtenus avec l'approche bayésienne.

2. L'approche Bayésienne : puits nets v.s. variations interannuelles

Les premières études utilisant le formalisme bayésien des problèmes inverses présenté au chapitre I datent du milieu des années 1990 pour le CO_2 (Enting, 1993, 1995) et la CH_4 (Hein et al., 1997). Le formalisme utilisé par ces travaux a été adapté d'autres champs disciplinaires comme la géophysique (Tarantola, 1987). Quelques ouvrages formels récents commencent aussi à paraître dans notre champ disciplinaire (Rodgers, 2000). Même si les concepts étaient déjà en place depuis le milieu des années 1960 (Bolin et Keeling, 1963), leur application a longtemps été limitée par la puissance de calcul des ordinateurs et la disponibilité des données

atmosphériques. Au départ, les inversions réalisées optimisaient des flux climatologiques sur de grandes régions avec une base annuelle de résolution temporelle. Les champs de vents forçant les modèles de transport étaient tirés de modèles de circulation générale de l'atmosphère ou d'une année particulière des analyses CEPMMT (Uppala et al., 2005) ou NCEP (Kalnay et al., 1996). Le développement des réseaux de mesures atmosphériques et de la puissance de calcul ont conduit la réalisation d'inversions sur une base mensuelle pour les flux et les observations pour un nombre de régions sans cesse croissant. Ce type d'inversion constitue le gros des inversions réalisées à ce jour. La prise en compte de l'erreur d'agrégation conduit de plus en plus les équipes à résoudre les flux à l'échelle spatiale du modèle et pour une base de temps mensuelle, journalière ou même quasi-horaire. Ce raffinement des échelles spatiales et temporelles pose des problèmes qui seront abordés au chapitre IV.

La troisième année de ma thèse et le début de ma carrière de maître de conférences a été consacrée à la mise en place d'un système d'inversion du transport atmosphérique au LMCE puis au LSCE. A partir des travaux de Enting et al. (1993,1995), j'ai mis en place un code inverse permettant d'optimiser les sources et puits de CO_2 sur de grandes régions prédéfinies sur une base annuelle (Bousquet et al., 1999a, 1999b). Ensuite, ce code a évolué avec l'arrivée de Philippe Peylin au LSCE. Nous avons progressivement mis en place ensemble l'inversion à l'échelle mensuelle des flux (Peylin et al., 1999), l'extension aux variations interannuelles (Bousquet et al., 2000), puis, plus récemment, l'optimisation des flux à l'échelle du modèle à partir de données journalières avec la thèse de Claire Carouge que j'ai co-encadré (Carouge, 2006 ; Peylin et al., 2005).

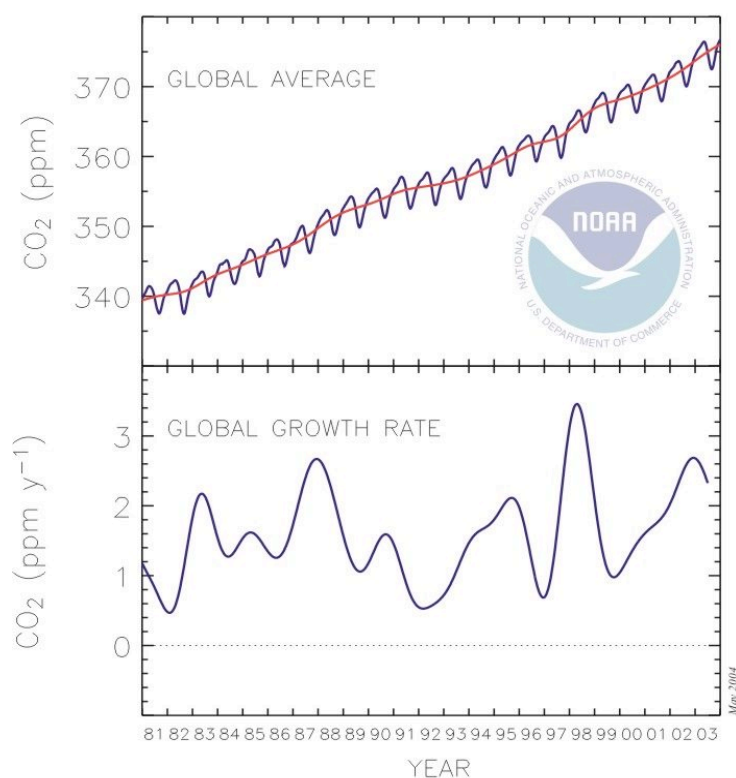


Figure 9 : Concentration moyenne du CO_2 atmosphérique (haut). Taux de croissance du CO_2 atmosphérique (bas). D'après www.cmdl.noaa.gov.

A la fin des années 1990, l'existence de longues séries temporelles de mesures atmosphérique (La SCRIPPS mesurait le CO₂ depuis 1958 et la NOAA depuis 1974) mit en évidence la grande variabilité du taux de croissance du CO₂ (Conway et al., 1994, Figure 9). De presque zéro certaines années (e.g. 1992), le taux de croissance peut être supérieur aux émissions de fuels fossiles d'autres années (e.g. 1998). Le caractère assez lisse dans le temps des émissions anthropogéniques (CDIAC, 2003) impose que cette grande variabilité doive être principalement liée à l'impact des variations climatiques sur les flux de CO₂: température, précipitation, El Niño / La Niña, sécheresses provoquant des feux de biomasse, éruptions volcaniques, Ainsi, Bacastow (1976) avait déjà remarqué la concomitance des forts taux de croissance de CO₂ avec les événements la Niña. La corrélation existant entre l'indice SOI caractérisant El Niño et les flux tropicaux de CO₂ inversés par a Rayner et al. (1999) leur a permis de trouver que les océans tropicaux répondaient rapidement à ENSO sous la forme d'une anomalie négative de flux tandis que la biosphère continentale répondait quelques mois plus tard sous la forme d'une forte anomalie positive de flux.

La compréhension des variations interannuelles du CO₂ atmosphérique et de leur liaison avec le climat est au moins aussi importante que l'estimation des flux nets moyens régionaux de CO₂ pour affiner notre capacité à prédire les futures concentrations de CO₂ (Cox et al., 2000 ; Friedlingstein et al., 2001), dans le cadre d'un changement climatique plus que probable aujourd'hui (IPCC, in prep.). Pour cela, un suivi à long terme de l'atmosphère et des échanges de CO₂ avec les réservoirs océaniques et continentaux est nécessaire. Ainsi, grâce aux moyens de mesures en place aujourd'hui (flux, concentrations) la forte sécheresse de 2003 en France a pu constituer un laboratoire en temps réel pour étudier l'adaptation des écosystèmes aux fortes perturbations climatiques (Ciais et al., 2005), et tester la capacité des méthodes inverses à retrouver l'anomalie positive de flux de CO₂ mesurée localement dans les écosystèmes (Peylin et al., in prep.).

Les informations atmosphériques essentielles pour optimiser les flux nets moyens de CO₂ sont les gradients spatiaux existants entre les différentes stations de mesures. Les informations essentielles pour optimiser les variations des flux de CO₂ sont les variations de ces gradients spatiaux dans le temps. Il est donc possible de séparer l'étude des variations interannuelles de celle des flux nets moyens (Bousquet et al., 2000). Dans la suite de ce chapitre, je présente dans un premier temps une synthèse des principaux résultats obtenus sur les sources et puits nets moyens de CO₂. J'ai contribué directement à un certain nombre de ces résultats et indirectement à travers l'expérience d'inter-comparaison des modèles de transport TRANSCOM qui a débuté en 1993 après la conférence de Cairairane (France) et se poursuit encore aujourd'hui. Dans un second temps, je reprends l'article que j'ai publié en 2000 dans la revue *Science* sur la variabilité interannuelle des sources et puits de CO₂. Enfin, je complète cet article par quelques résultats récents auxquels j'ai contribué sur les variations interannuelles des sources et puits de CO₂.

3. Sources et puits nets

- Les échelles mondiales et hémisphériques sont les mieux contraintes par les inversions

Les flux nets moyens optimisés aux échelles mondiale et hémisphérique apparaissent comme mieux contraints que les flux régionaux par les inversions atmosphériques (IPCC, 2001). La Figure 10 montre la synthèse faite par Gurney et al. (2002, 2003) pour les flux hémisphériques de CO₂ dans le cadre de l'expérience TRANSCOM III.

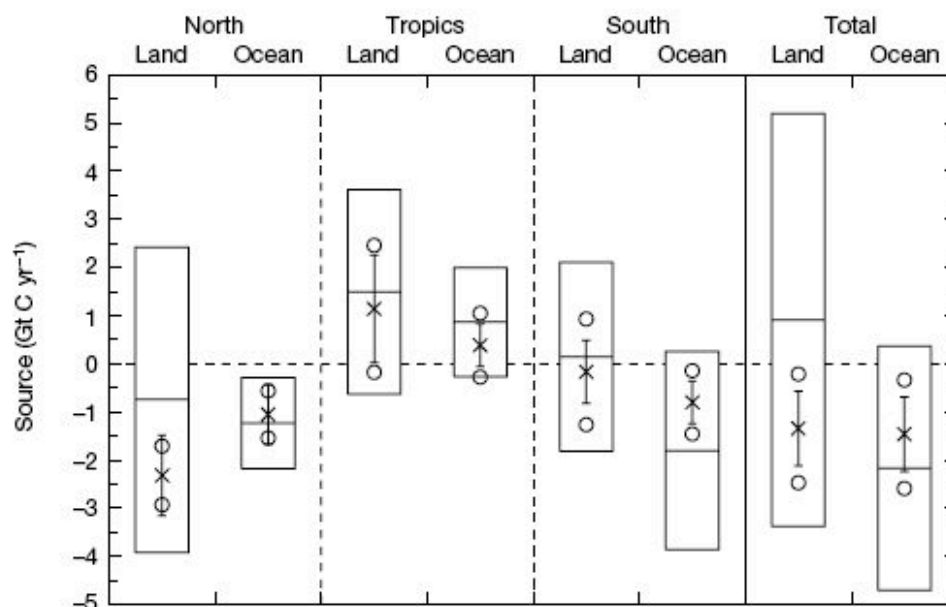


Figure 10 : Flux de CO₂ moyens inversés à l'échelle mondiale et par bandes de latitude. Les rectangles blancs représentent les incertitudes *a priori*. Les flux dus à la combustion du carbone fossile ont été retranchés. Les croix sont les flux optimisés. Les cercles représentent l'incertitude *a posteriori* retournée par l'inversion. Les barres d'erreur représentant l'écart-type des résultats dus aux 13 modèles de l'expérience TRANSCOM-3. D'après Gurney et al. (2002).

Tout d'abord, on peut remarquer que l'incertitude due aux différents modèles (barres d'erreur) est généralement plus faible que celle retournée par l'inversion (cercles), qui est due à l'information apportée par les observations. Ce résultat indique qu'aux échelles hémisphériques et mondiales, le problème inverse est plus limité par le manque de données que par la qualité de la modélisation du transport atmosphérique. Quand on descend à l'échelle régionale, surtout en milieu continental, la limitation par le transport atmosphérique peut devenir prépondérante (Carouge, 2006).

Un accord existe maintenant entre les inversions atmosphériques pour placer un puits moyen important de CO₂ dans les moyennes latitudes de l'hémisphère nord (Ciais et al. 1995, Bousquet et al., 1999a ; Rödenbeck et al., 2003). Aux moyennes et hautes latitudes de l'hémisphère nord, le puits de CO₂ continental est environ 2 fois plus important que le puits océanique. Les tropiques apparaissent comme une source de CO₂, aussi bien pour les océans que pour les continents. Cependant, les incertitudes restent grandes, surtout pour les continents. L'absence de séries de mesures longues sur les continents tropicaux (Amazonie, Afrique, Indonésie) rend, par exemple, difficile

l'attribution d'une source ou d'un puits de CO₂ aux forêts tropicales. Le réseau atmosphérique actuel de surface a une faible visibilité des flux nets tropicaux. Ce problème est accentué par le fait que la composante verticale du transport via la convection est essentielle à ces latitudes. Par ailleurs, le petit nombre de données isotopiques disponibles rend difficile la réduction des incertitudes sur partition de ce puits entre les océans et les continents.

Dans l'hémisphère sud, les inversions atmosphériques voient un puits océanique environ deux fois plus faible que dans l'inventaire utilisé comme a priori. Cet effet est dû à l'absence de mesures d'hiver utilisées dans la climatologie de Takahashi et al. (1999). L'introduction de mesures de pCO₂ des campagnes océanographiques OISO (Jabaud-Jan et al., 2004) a conduit à une réduction du puits de l'océan austral dans la climatologie car les pCO₂ hivernales de l'océan austral ne montraient pas une forte sous saturation comme les pCO₂ d'été. Ce résultat est l'un des plus importants de notre communauté car il montre l'apport des inversions atmosphériques pour améliorer des climatologies de sources et puits.

- Une partition encore incertaine du puits dans l'hémisphère nord

La question de l'hémisphère nord est plus délicate. La partition du puits de l'hémisphère nord entre l'Amérique du Nord, l'Europe et la Sibérie reste controversée, notamment à cause de l'absence de séries de mesures longues sur la Sibérie et des incertitudes due à la modélisation du transport atmosphérique, notamment à cause de l'effet rectifier vu précédemment. Après l'étude de Fan et al. (1998) qui trouvait que le puits était localisé essentiellement sur l'Amérique du Nord, j'ai trouvé un résultat opposé avec un puits moyen plus fort sur l'Eurasie que sur l'Amérique du nord (Bousquet et al., 2000, supplementary material). A l'aide de trois modèles de transport, et en faisant varier de nombreux paramètres de l'inversion, Peylin et al. (2002) ont établi l'état des contraintes sur la partition du puits des moyennes latitude de l'hémisphère nord (Figure 11).

Comme on le voit, même si le puits a tendance à être un peu plus fort sur l'Eurasie que sur l'Amérique du Nord, les incertitudes restent grandes et empêchent encore aujourd'hui de trancher définitivement cette question. Le développement du réseau de mesures au sol en Sibérie (projets Eurosib), en Europe (projet européen CARBOEUROPE) et en Amérique du Nord (projet NACP), au travers de projets intégrés de grande ampleur va permettre l'augmentation de la couverture spatiale de données dans tout l'hémisphère nord. La mise en place de campagnes aéroportées sur les continents eurasiens (projet YAK en cours en Sibérie) et américain fournira des contraintes aux modèles de transport pour mieux représenter le transport vertical de CO₂ dans la couche limite atmosphérique et dans la troposphère libre.

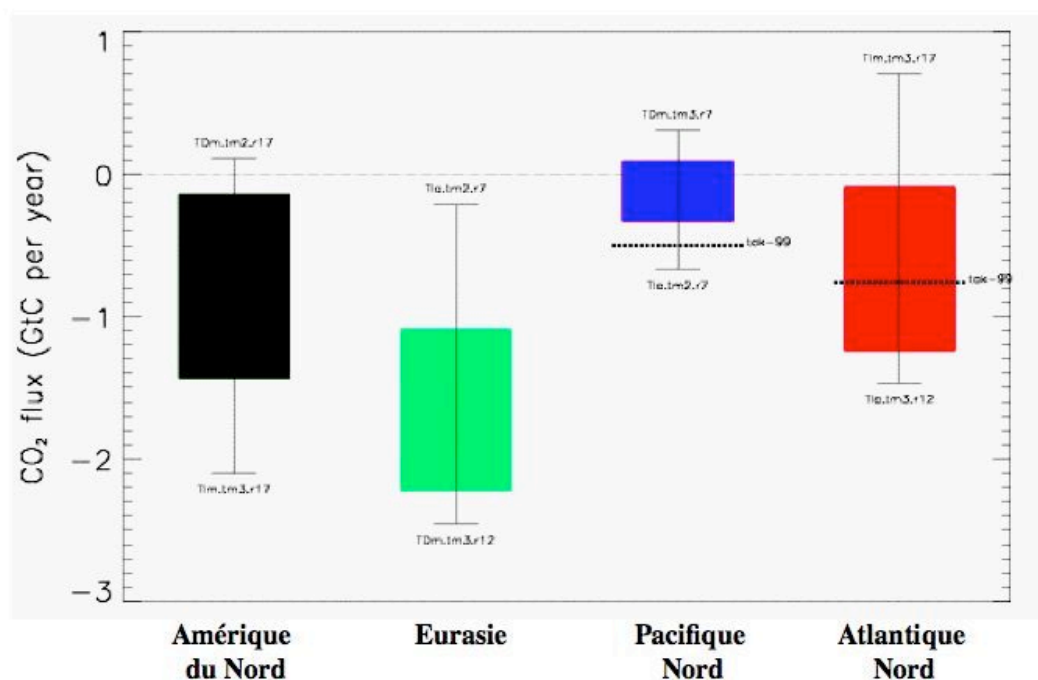


Figure 11 : Partition du puits de CO₂ de l'hémisphère nord entre deux régions continentales (Amérique du Nord et Eurasie) et deux régions océaniques (Pacifique Nord et Atlantique Nord). Les rectangles colorés représentent l'incertitude de l'estimation ($\pm 1\sigma$). Les barres d'erreur représentent les configurations donnant les plus petits et les plus grand flux pour chaque région. 'Tak99' représente l'estimation de la climatologie de Takahashi et al., (1999). D'après Peylin et al., (2002).

Si l'accord sur la partition en longitude du puits reste à trouver entre les différentes inversions, il y a un relatif accord pour la partition en latitude dans l'hémisphère nord non tropical. Le puits est plutôt placé aux latitudes moyennes tandis que les zones boréales sont soit neutres soit de petites sources de CO₂ (Peylin et al., 2005, Gurney et al., 2004). L'interprétation biogéochimique de ce résultat reste à faire.

-Un petit puits de CO₂ en Europe, mais très incertain

Bien que les incertitudes restent grandes, je me risque à faire un point sur le puits de CO₂ à l'échelle de l'Europe (Figure 12). J'ai participé à un exercice d'intercomparaison de modèles de transport mondiaux et méso-échelles pour l'estimation du flux net de CO₂ européen (Rivier et al., in prep).

Quatre modèles de transport (deux mondiaux et deux méso-échelles) ont été utilisés pour optimiser le flux net européen dans le cadre du projet AEROCARB. Ce travail a montré que l'Europe géographique (jusqu'à l'Oural, 15 Mkm²) pouvait être considérée comme un petit puits de CO₂ (-0.3 ± 0.4 GtC/an) mais avec une incertitude de l'ordre de grandeur du puits lui-même qui limite la portée de ce résultat. Cependant, une synthèse des estimations du flux net de CO₂ européen par des approches montantes (statistiques, inventaires) et descendantes (inversions) faite par Janssens et al. (2003) a montré que les deux types d'approches donnent des résultats cohérents

compte tenu des incertitudes avec un puits de -0.14 ± 0.30 pour les approches montantes et de -0.2 ± 0.4 GtC/an pour les inversions atmosphériques. Au total, l'Europe absorberait entre 7 et 12% de ses émissions anthropogéniques selon cette étude, mais avec une faible significativité statistique.

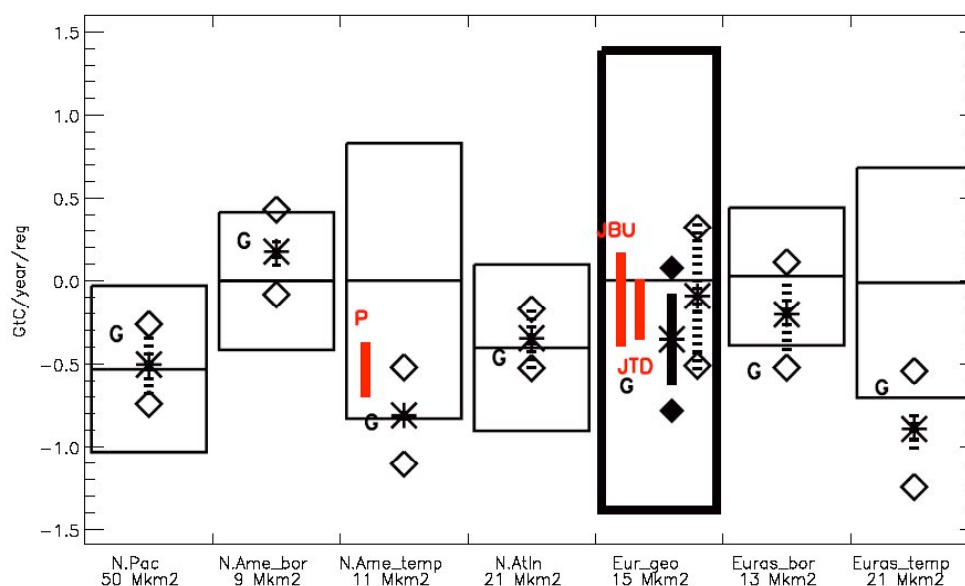


Figure 12 : Puits nets de CO₂ trouvé par inversion atmosphérique à l'aide de 4 modèles de transport différents (GtC/an) pour 7 régions couvrant les moyennes et hautes latitude de l'hémisphère nord. Les boîtes représentent les valeurs *a priori* (flux et incertitudes). Les étoiles représentent les flux après optimisation. Les losanges sont les erreurs d'estimation (retournée par l'inversion) et les barres d'erreur représentent la déviation standard des résultats des 4 modèles utilisés. « JTD » et « JBU » représentent respectivement la synthèse du puits européen faite Janssens et al. (2003) pour les approches top-down et bottom-up. « P » représente l'estimation de Pacala et al. (2001) pour l'Amérique du nord tempérée. D'après Rivier et al. (in prep).

-Bilan net du CO₂ à l'échelle sous continentale

Le tableau ci-dessous synthétise le bilan des sources et puits de CO₂ de l'échelle régionale à l'échelle mondiale obtenu pour les années 1990, pour les travaux auxquels j'ai contribué directement (Gurney et al., 2002 ; Bousquet et al., 2000).

Les différences entre les deux études mettent bien en relief la difficulté d'obtenir une image consistante des sources et puits de carbone à l'échelle régionale. Tout en étant compatibles entre elles compte tenu des incertitudes importantes, on observe des écarts importants des estimations moyennes, comme dans les tropiques : la forte source tropicale trouvée par Gurney et al. (2003) est compensée par des puits plus intenses que dans mon étude sur les régions tempérées de deux hémisphères. L'estimation du puits de l'Amérique du nord est aussi très différente entre les 2 approches. Il faut toutefois relativiser ces conclusions car les périodes représentées par ces deux études ne sont pas les mêmes et donnent un puits total différent.

Le passage d'une inversion annuelle (Gurney et al., 2002) à une inversion mensuelle (Gurney et al., 2003) modifie légèrement les flux optimisés (pas plus de 0.5 GtC/an de différence à l'échelle régionale), les changements principaux se produisant dans les régions les moins contraintes (e.g. Afrique tropicale). Par contre, l'inversion mensuelle produit des incertitudes entre les modèles plus importantes que pour l'inversion annuelle, surtout pour les flux continentaux. Au final, contrairement à l'inversion annuelle, l'incertitude régionale due au transport atmosphérique est souvent largement supérieure à celle retournée par la procédure inverse quand on optimise le cycle saisonnier des observations au lieu d'une simple moyenne annuelle. On verra au chapitre IV que l'assimilation d'observations à des échelles temporelles plus importantes accroît encore le problème de l'erreur de transport.

Régions	Gurney et al., 2002 Période : 92-96	Bousquet et al., 2000 Période : 90-98	IPCC, 2001 Période : 90-99
GLOBAL	-2.8 ± 0.1	-3.2 ± 0.1	-3.2 ± 0.1
CONTINENTS	-1.5 ± 0.6/0.7	-1.4 ± 0.8	-1.4 ± 0.7
<i>Hémisphère nord</i>	<i>-2.4 ± 0.3/1.0</i>	<i>-1.5 ± 0.8</i>	
Amérique du Nord	-0.7 ± 0.2/0.3	-0.1 ± 0.8	
Europe	-0.9 ± 0.2/0.4	-0.5 ± 0.4*	
Asie du Nord	-0.8 ± 0.3/0.6	-0.8 ± 1.0	
<i>Tropiques**</i>	<i>+1.8 ± 0.8/1.7</i>	<i>-0.3 ± 1.1</i>	
Amérique du sud	+0.7 ± 0.7/0.7	-	
Afrique	+0.8 ± 0.5/0.7	-	
Asie Tropicale	+0.3 ± 0.5/0.9	-	
<i>Hémisphère sud</i>	<i>-0.9 ± 0.7/0.9</i>	<i>+0.3 ± 0.7</i>	
OCEANS	-1.3 ± 0.6/0.7	-1.8 ± 0.6	-1.7 ± 0.5
<i>Hémisphère nord</i>	<i>-0.9 ± 0.2/0.5</i>	<i>-1.3 ± 0.3</i>	
Atlantique	-0.6 ± 0.2/0.3	-0.8 ± 0.4	
Pacifique	-0.3 ± 0.2/0.3	-0.5 ± 0.4	
<i>Tropiques**</i>	<i>+0.0 ± 0.4/0.4</i>	<i>+0.4 ± 0.4</i>	
Atlantique	-0.1 ± 0.2/0.2	-	
Indien	-0.3 ± 0.2/0.3	-	
Pacifique	+0.5 ± 0.2/0.2	-	
<i>Hémisphère sud</i>	<i>-0.5 ± 0.4/0.5</i>	<i>-0.9 ± 0.3</i>	
Atlantique	+0.0 ± 0.2/0.1	-	
Indien	-0.2 ± 0.2/0.2	-	
Pacifique	+0.5 ± 0.3/0.5	-	
Océan austral	-0.5 ± 0.2/0.3	-	

Table 2 : Flux net moyens annuel de CO₂ pour les études Gurney et al. (2003) et Bousquet et al. (2000). Les 2 incertitudes associées aux flux de Gurney et al. correspondent respectivement à l'erreur retournée par l'inversion et la déviation standard des 12 modèles utilisés dans l'expérience TRANSCOM. * : le flux européen correspond à une surface 30% supérieure à celle de Janssens et al. (2003). Ramené à la même surface on retrouve l'estimation citée dans Janssens et al. de -0.3±0.4 GtC/an. ** La limite des tropiques est située à 15° de latitude pour Gurney et al. (2002) et à 20° de latitude pour Bousquet et al. (2000). Les incertitudes de l'étude de Bousquet et al. sont des incertitudes totales, regroupant l'incertitude retournée par l'inversion et celle représentée par l'écart-type des différents tests de sensibilité effectués.

4. Variabilité interannuelle et décennale

Cette section reprend l'article de Bousquet et al., publié en 2000 dans la revue Science (copie de l'article à la fin du manuscrit) : Regional changes in Carbon dioxide fluxes of land and oceans since 1980.

La première inversion atmosphérique utilisant le formalisme bayésien et portant sur les flux interannuels a été publiée en 1999 par Peter Rayner (Rayner et al., 1999). Dans cette étude, les océans tropicaux étaient la zone contribuant le plus à la variabilité interannuelle. Par ailleurs, le puits continental de CO₂ était marqué par une forte augmentation à la fin des années 80 dans l'hémisphère sud puis dans l'hémisphère nord. A cette époque, Philippe Peylin et moi-même avons aussi mis au point une inversion atmosphérique pour optimiser les flux interannuels de CO₂. Il s'agissait d'une évolution du code numérique développé pendant ma thèse qui optimisait des flux climatologiques. Les résultats obtenus dans cette étude ont été publiés dans la revue *Science* en Novembre 2000 (Bousquet et al., 2000). Les différences avec l'étude de Rayner et al. étaient nombreuses, mais deux me semblent aujourd'hui expliquer la plupart des différences dans les résultats. En premier lieu, Rayner et al. ont utilisé seulement 12 à 25 stations de mesure de CO₂ contre 68 dans notre approche. Nous avons choisi d'utiliser toute l'information disponible chaque mois en assimilant les stations dès leur apparition dans le réseau. Rayner et al. ont utilisé seulement des stations avec des séries temporelles couvrant toute la période d'inversion. Ces stations, en plus petit nombre et essentiellement localisés dans la couche limite marine, ont pu déplacer le poids de l'inversion vers l'océan. En second lieu, les erreurs utilisées par les deux méthodes différaient. Nous avons utilisé des erreurs d'observations variables selon les stations et le temps alors que Rayner et al. avaient prescrit des erreurs constantes. Cette différence avait pour conséquence de mettre plus de poids sur les stations des tropiques et de l'hémisphère sud dans l'étude de Rayner et al.

Je voudrais maintenant présenter les principaux résultats de l'article de Bousquet et al. (2000). En utilisant pour la première fois un réseau de mesures étendu (68 stations) sur une période de 20 ans (1979-1998), nous avons optimisé les flux de CO₂ chaque mois pour 11 régions continentales et 8 régions océaniques. Huit inversions différentes ont été réalisées pour inclure des incertitudes non représentées directement comme le modèle de transport, le nombre de régions optimisées, les champs de vents utilisés, la taille du réseau de mesures, l'intensité des erreurs d'observations, l'utilisation de contraintes additionnelles ou l'inversion de données désaisonnalisées. Au total, le flux continental mondial inversé est deux fois plus variable en moyenne que le flux océanique mondial (Figure 13). Ce résultat était en contradiction avec ceux des études précédentes qui calculaient une prédominance plus ou moins forte de la variabilité des flux océaniques (Keeling et al., 1995 ; Rayner et al., 1999). Les événements El Niño (1982-83, 1987-88, 1997-98) sont associés à des fortes anomalies positives des flux continentaux inversés. Une forte anomalie négative des flux continentaux entre 1991 et 1993 est visible sur les continents en

réponse à l'éruption du mont Pinatubo en Juin 1991. Les flux océaniques font apparaître une tendance négative à long terme entre 1980 et 1995.

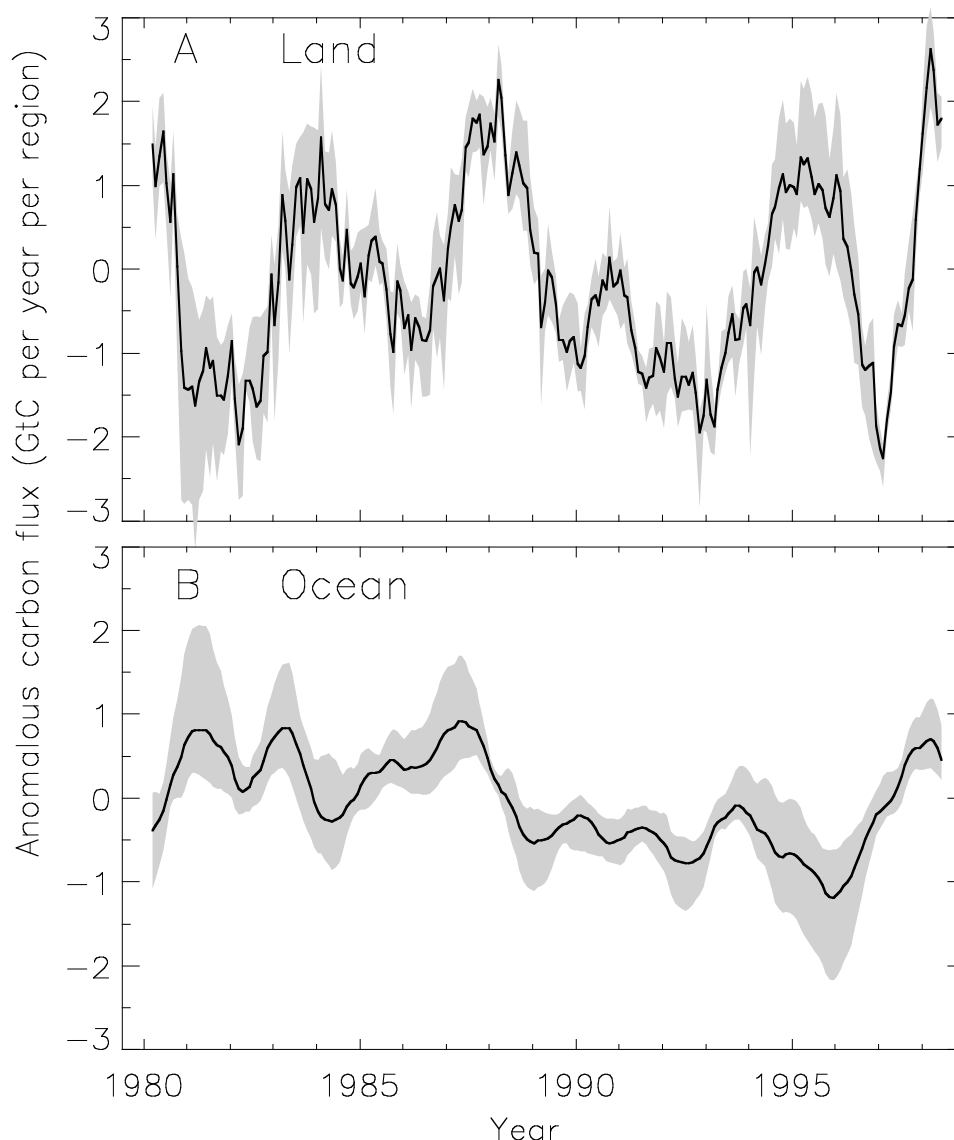


Figure 13 : Anomalie mondiale désaisonnalisée des flux de CO₂ continentaux (haut) et océaniques (bas) pour la période 1980-1998 (GtC/an). La courbe représente la moyenne de huit inversions. La zone grisée représente l'enveloppe des huit inversions. D'après Bousquet et al. (2000).

A cette époque, Pieter Tans, co-auteur du papier, et responsable du réseau de mesures de CO₂ de la NOAA, nous avait un peu provoqué en insistant sur le fait qu'un tel résultat, s'il était vrai, devait se voir dans les données atmosphériques elles-mêmes. Nous avons donc regardé les observations de CO₂ de près et montré dans la même étude que la variabilité des tendances atmosphériques à long terme aux stations continentales ou fortement influencées par les flux continentaux étaient plus fortes qu'aux stations situées dans la couche limite marine (Figure 14)

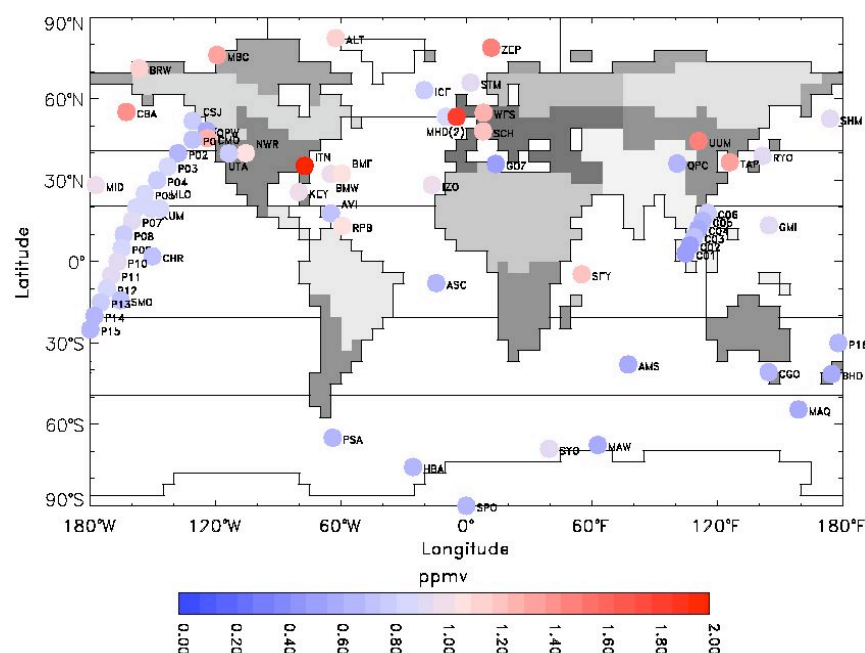


Figure 14 : Interannualité des tendances à long terme de CO₂ aux stations utilisées dans l'inversion (ppm). L'interannualité est représentée par la déviation standard des tendances désaisonnalisées aux stations et rapportées à la station pôle sud. Les 11 régions continentales et 8 régions océaniques utilisées dans la procédure inverse sont aussi représentées. D'après Bousquet et al. (2000).

La régionalisation des variations mondiales des flux nous a permis de trouver que la zone tropicale contribuait le plus aux variations interannuelles. Les continents tropicaux expliquent la majeure partie de la variabilité observée, sauf au début des années 1990 où les moyennes latitudes de l'hémisphère nord jouent un rôle important, en réponse à Pinatubo. Les océans tropicaux, et en particulier le pacifique équatorial, ont une plus forte variabilité que les régions océaniques, bien que la différence soit moins nette que pour les flux continentaux. Ainsi, l'océan Austral contribue aussi significativement à la variabilité, en expliquant notamment la tendance négative du flux océanique noté sur la Figure 10.

Un des points fort du papier, que nous continuons à promouvoir aujourd'hui, est la comparaison systématique des résultats de l'inversion avec des modèles biogéochimiques indépendants de l'océan ou de la biosphère continentale, et avec des données extrapolées. Je pense qu'il y a beaucoup à apprendre de telles confrontations, même si l'extrapolation de données peut s'avérer parfois hasardeuse. Ainsi, la comparaison de nos résultats pour le Pacifique équatorial avec le modèle OPA (Lequéré, 1999) et avec des données extrapolées compilées ensuite dans Feely et al., (2002) montre une très bonne convergence de l'estimation de la variabilité interannuelle des flux air-mer de cette région océanique (Figure 15). Les flux continentaux tropicaux inversés sont aussi en bon accord (Figure 15) avec ceux calculés par le modèle SLAVE de la végétation terrestre (Friedlingstein et al., 1995), sauf pour la période 1996-98. Il faut noter que SLAVE ne comprenait pas d'estimation des feux de biomasse.

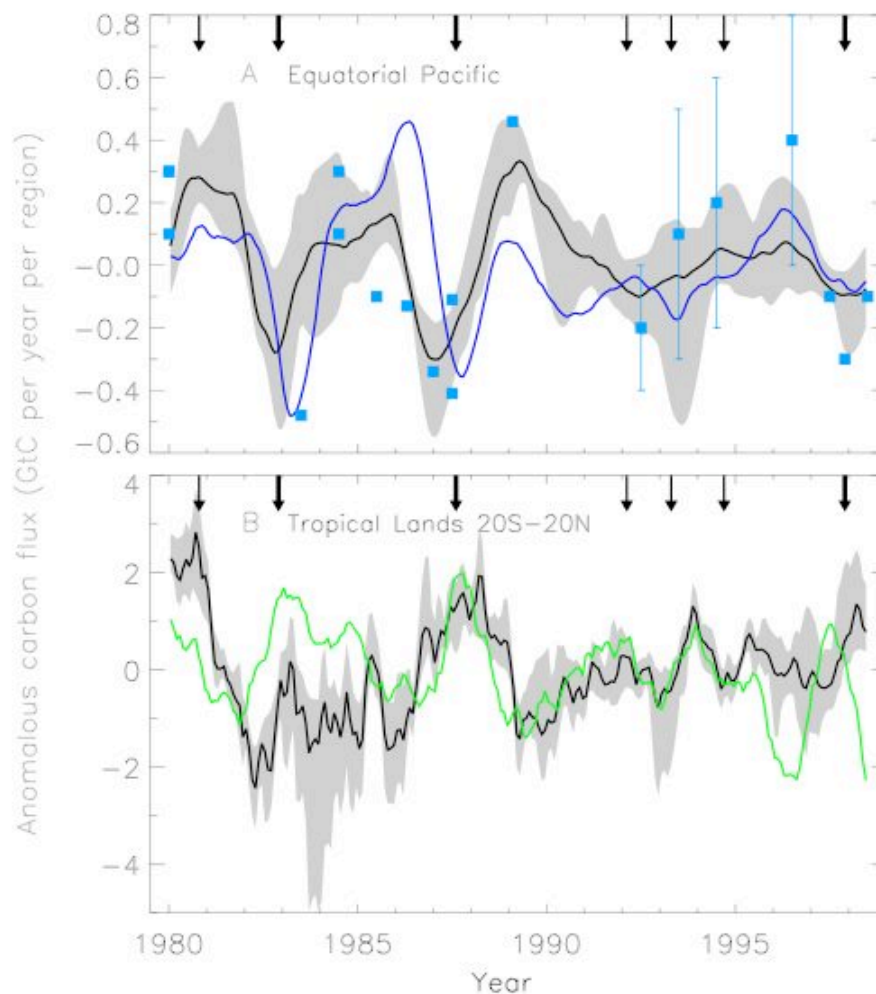


Figure 15 : Anomalie mondiale désaisonnalisée des flux de CO₂ du Pacifique équatorial (haut) et des continents tropicaux (bas) pour la période 1980-1998 (GtC/an). La courbe noire représente la moyenne de huit inversions. La zone grisée représente l'enveloppe des huit inversions. La courbe bleue représente les résultats du modèle océanique OPA. Les points bleus sont tirés de la compilation de données de Feely et al. (1999). La courbe verte est l'anomalie calculée par le modèle de végétation SLAVE (Friedlingstein et al., 1995). D'après Bousquet et al. (2000).

La période 1992-93 est marquée par une forte anomalie négative du flux de CO₂ aux moyennes latitudes de l'hémisphère nord. Par rapport à la période 1989-90, il s'agit d'un puits additionnel de 1.4 GtC/an. Cette anomalie est placée par l'inversion sur les continents et principalement en Amérique du Nord (Figure 16), l'Eurasie montrant dans le même temps une anomalie positive. Cependant, la réduction du puits de CO₂ sur l'Eurasie est environ le tiers de l'accroissement de puits sur l'Amérique du Nord. Les deux régions apparaissent anti-corrélées, et leur corrélation d'erreur est négative, mais cette dernière reste faible ($r=-0.35$), indiquant que le réseau de mesures devrait pouvoir différencier les deux régions. Toujours avec l'idée qu'une telle variation du

puits continental devait se voir dans les données atmosphériques, nous avons fait une analyse des données de part et d'autre du continent américain (Figure 16).

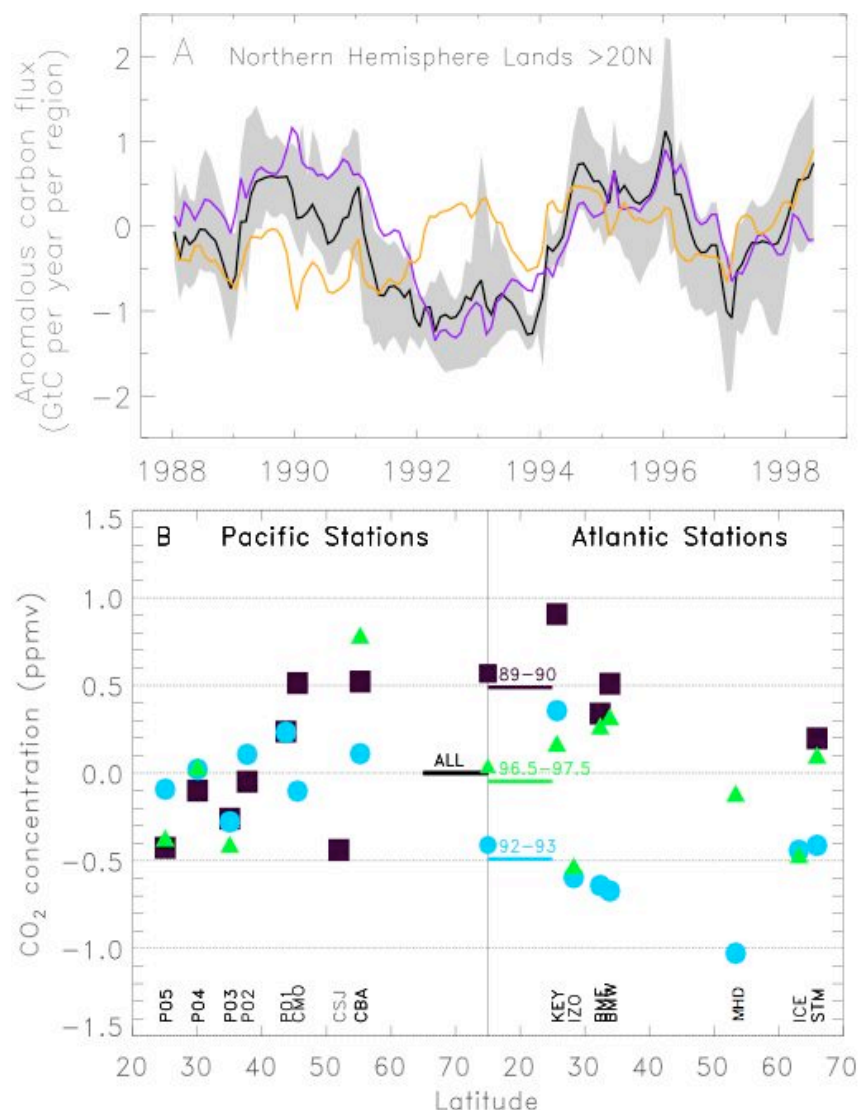


Figure 16 : Haut : Anomalie mondiale désaisonnalisée des flux de CO₂ de l'hémisphère nord. Le flux total (noir) est la somme du flux de l'Eurasie (orange) et du flux de l'Amérique du nord (violet). La zone grisée représente l'enveloppe des huit inversions pour l'hémisphère nord. Bas : Concentrations de CO₂ observées aux stations situées dans le Pacifique est et dans l'Atlantique pour deux périodes de 2 ans (1989-90 et 1992-93) et une période d'1 an (1996.5-1997.5). D'après Bousquet et al., (2000).

Les stations de l'Atlantique Nord étaient 0.5 ppm plus élevées en CO₂ en 1989-90 par rapport aux stations du Pacifique nord, mais étaient 0.5 ppm plus faibles en 1992-93. Cette diminution de 1 ppm est parfaitement cohérente avec la forte anomalie négative trouvée en Amérique du Nord en 1992-93. La Figure 16 illustre aussi un autre point important énoncé pour la première fois : les variations interannuelles des flux de CO₂ sont mieux contraintes par l'inversion que l'estimation des puits nets moyens. Les variations interannuelles sont contraintes par les variations des gradients

de concentrations entre stations tandis que les puits nets sont contraints par les gradients spatiaux eux-mêmes. Dans le cas de l'Amérique du nord, les gradients pacifique/Atlantique sont de l'ordre de 0.5 ppm alors que leur variations peuvent atteindre 1 ppm. Ce résultat se voit parfaitement dans les huit inversions réalisées pour lesquelles le puits net de l'Amérique du nord est très variable tandis que 7 des huit inversions localisent l'anomalie de 1992-93 sur l'Amérique du Nord. La huitième inversion, avec seulement 20 stations océaniques, réduit d'un facteur 2 le puits sur l'Amérique du Nord.

Enfin, nous tentons de relier cette forte anomalie négative du flux aux variations climatiques observées entre 1991 et 1993. L'éruption du Mont Pinatubo a provoqué un refroidissement de tout l'hémisphère nord, mais celui-ci a été plus sensible sur l'Amérique du Nord que sur l'Eurasie (Hansen et al., 1996). L'anomalie de flux sur l'Amérique du nord apparaît très corrélée avec l'anomalie de température au début des années 1990 ($r=0.8$). Une plus forte réduction de la respiration, très sensible à la température, par rapport à la photosynthèse peut expliquer l'accroissement du puits de CO_2 en 1992-93. Cet effet n'est cependant pas reproduit par le modèle SLAVE utilisé dans notre étude.

5. Compléments : résultats récents

Depuis 2000, l'étude des variations interannuelles de CO_2 par inversions atmosphériques s'est développée. J'ai été sollicité par plusieurs chercheurs pour comparer les résultats interannuels obtenus dans Bousquet et al. (2000) avec leur approche. Ces collaborations ont donné lieu à plusieurs publications (Lequéré et al., 2003 ; Lucht et al., 2002 ; Gruber et al., 2002 ; Schimel et al., 2001.). Dans la suite du chapitre, je présente quelques uns des résultats obtenus à travers ces collaborations.

- Inversions interannuelles

Lequéré et al., (2003) ont comparé les flux mondiaux océaniques et continentaux trouvés par Bousquet et al. (2000), avec une mise à jour de l'étude de Rayner et al. (1999), avec Keeling et al. (1995), et avec le modèle océanique IPSL-OPA forcé par le climat observé (Figure 17). Les différentes approches confirment bien que les flux continentaux dominent la variabilité interannuelle mais que les flux océaniques peuvent jouer un rôle important pour les variations à long terme. L'accord entre les approches (sauf Keeling) est très bon à ces échelles spatiales, même si la phase des flux océaniques est moins cohérente entre les approches.

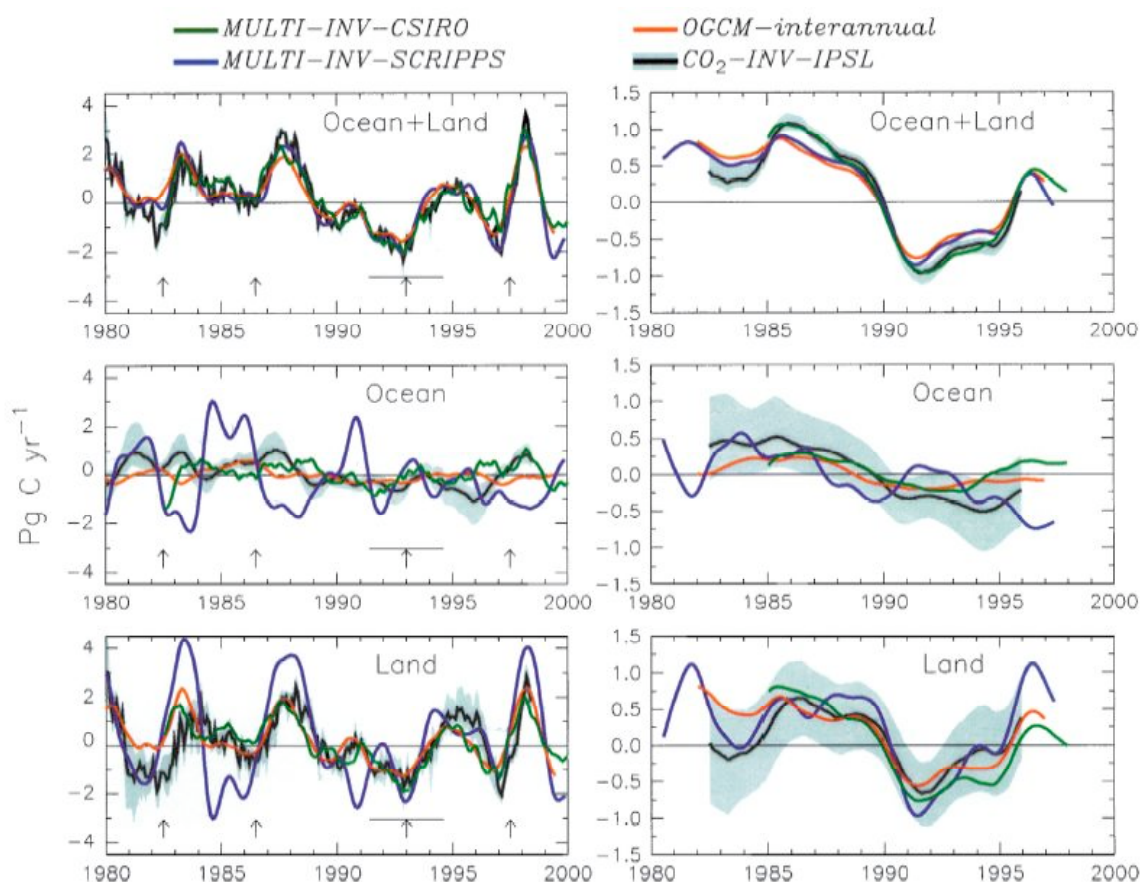


Figure 17 : Variabilité dans les flux continentaux et océaniques de CO_2 (PgC/an) pour différentes inversion (CSIRO, SCRIPPS, IPSL) et un modèle climatique (OGCM). Les flux désaisonnalisés ont été lissés pour éliminer la variabilité inférieure à 1 an (gauche) ou 5 ans (droite). La moyenne 1985-1995 est enlevée à chaque courbe. Les flèches indiquent les événements El Niño. D'après Lequéré et al., (2003).

D'autres groupes ont poursuivi et amélioré la technique d'inversion des flux interannuels. Rödenbeck et al. (2003) ont réalisé une inversion interannuelle en résolvant les flux à l'échelle du modèle (pour lever l'erreur d'agrégation) avec des corrélations spatiales d'erreur, une sélection des sorties du modèle pour être en cohérence avec les données et l'utilisation d'une météorologie interannuelle. Ce travail, qui constitue la référence actuelle des inversions interannuelles, arrive à des conclusions proches de celles de Bousquet et al. (2000) en ce qui concerne la variabilité interannuelle des flux de CO_2 pour les échelles mondiales et continentales. A l'échelle régionale, la partition des flux est sensible au réseau de mesures utilisé et l'apparition ou la disparition de stations pendant la période d'inversion peut provoquer des variations artificielles des flux (Rödenbeck et al., 2003), comme dans le pacifique sud ou le tropiques.

Un autre résultat de Bousquet et al. (2000), confirmé depuis sa publication, est la plus grande robustesse des flux interannuels inversés par rapport aux flux moyens nets. Tous les tests de sensibilité réalisés dans les différentes inversions publiées à ce

jour ont tous confirmés que les flux nets étaient moins stables que leurs variations temporelles. Le travail de Baker et al.(2006) illustre aussi ce point : le flux net moyen européen est très variable selon les modèles (Figure 18, entre -0.3 et -1.8 GtC/an) tandis que le flux interannuel est beaucoup plus cohérent en phase et en amplitude. Une explication possible est que les flux nets sont déterminés par les gradients spatiaux entre stations alors que les variations interannuelles sont déterminées par les variations de ces gradients spatiaux avec le temps. Ces dernières pourraient être plus intenses, et visibles à plus grande échelle, en raison de leur liaison avec des événements climatiques majeurs comme El Niño, une éruption volcanique majeure, ou une sécheresse prolongée.

Baker et al. (2006) a tenté de préciser ce résultat en quantifiant le degré de significativité statistique des variations interannuelles des flux inversés. Il a montré la significativité des flux interannuels pour les trois grandes bandes de latitude (Hémisphère nord, tropiques, et Hémisphère sud). A l'échelle sous continentale, 1/3 des 22 régions utilisées dans l'expérience TRANSCOM fournissent des flux interannuels significatifs à 5% près, dont l'océan Pacifique dans son ensemble, l'Asie tropicale, l'Europe, et l'Amérique du nord tempérée. Les incertitudes dues au manque de données dominent dans les tropiques, mais font jeu égal avec celles dues à l'erreur modèle aux moyennes latitudes de l'hémisphère nord. Ce résultat confirme donc partiellement l'impression venant de la pratique des inversions atmosphériques que les flux interannuels sont mieux contraints que les flux nets, pour lesquels l'accord entre les inversions reste limité au niveau des grandes bandes de latitudes (IPCC, 2001).

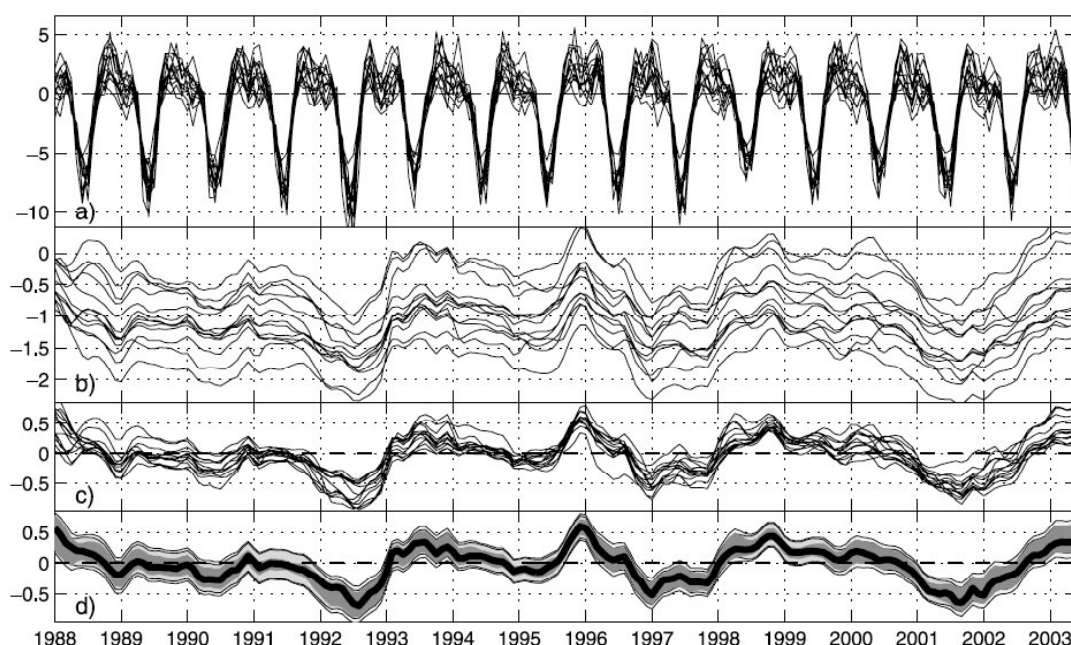


Figure 18 : (a) : Flux mensuels estimés pour l'Europe par 13 modèles de l'expérience TRANSCOM3. (b) : Flux désaisonnalisés. (c) : Flux désaisonnalisés avec la moyenne retirée (anomalie). (d) : Anomalie moyenne avec la déviation standard entre les 13 modèles (gris foncé) et erreur d'estimation moyenne retournée par l'inversion (gris clair).

-Comparaison top-down/bottom-up

Une autre direction qui s'est développée depuis 5 ans, et que nous avons initié dans Bousquet et al. (2000) est la recherche d'une liaison entre les flux trouvés par les inversions atmosphériques et les mécanismes pouvant les expliquer. Par construction, l'inversion de concentrations atmosphériques renseigne sur l'émission ou l'absorption d'un traceur mais pas sur les processus ayant conduits à ce flux. Il est donc naturel de comparer les flux inversés avec des variables liées aux processus eux-mêmes. Ces variables peuvent être des variables climatiques ou des flux calculés par des modèles biogéochimiques de la biosphère continentale ou marine.

- Flux continentaux

Pour les flux continentaux, Rödenbeck et al. (2003) et Peylin et al. (2005) ont illustré le contrôle des flux nets de CO₂ tropicaux (NEP) par les précipitations, en liaison avec leur effet sur la NPP et sur les feux de biomasse. Ainsi, Peylin et al. (2005) ont trouvé un bon accord de la NEP tropicale inversée avec celle calculée par les deux modèles biogéochimiques LPJ et SLAVE (Figure 19). Pour ces deux modèles, la NPP est largement contrôlée par les précipitations tandis que la température joue un rôle moins net. Pour la respiration hétérotrophe, la situation est plus contrastée car les deux modèles biogéochimiques régissent très différemment aux forçages climatiques, la respiration de LPJ étant beaucoup moins sensible aux variations de précipitations que celle de SLAVE. Les différences dans la représentation de la respiration hétérotrophe expliquent la plupart des différences de NEP entre les deux modèles.

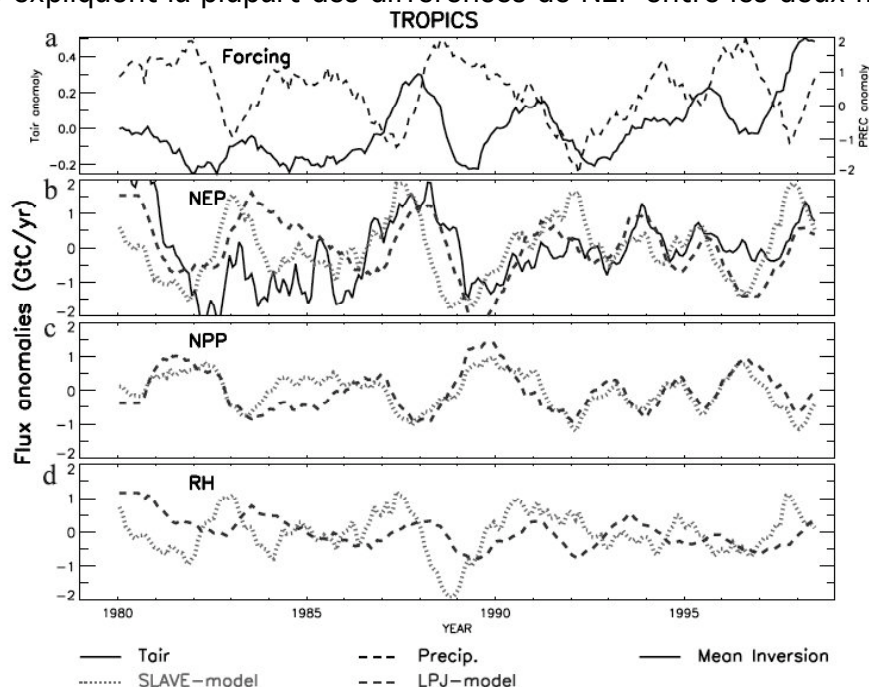


Figure 19 : (a) : Anomalies de températures et de précipitation sur le tropiques pour la période 1980-1998. (b,c,d) : NEP, NPP et respiration hétérotrophe exprimés en anomalies de flux pour deux modèles de végétation, SLAVE et LPJ. D'après Peylin et al., (2005).

J'ai participé à une étude de l'évolution des flux de CO₂ des hautes latitudes de l'hémisphère nord dans laquelle les flux calculés par le modèle biogéochimique LPJ étaient comparés aux flux calculés par l'inversion pour les hautes latitudes (Lucht et al., 2002). Dans ce travail, une tendance à l'accroissement de l'activité biologique associée à un allongement de la saison de croissance a été trouvée aux hautes latitudes de l'hémisphère nord. La cause d'une telle évolution est un petit réchauffement des zones boréales depuis 25 ans. Cette tendance a été brutalement interrompue par l'éruption du Mont Pinatubo en 1991 qui a produit une augmentation du puits de CO₂ dans l'hémisphère nord. L'inversion et le modèle LPJ produisent un accord de phase à ces latitudes (bas de la Figure 20). L'amplitude des variations trouvées par l'inversion est plus forte que celle de LPJ, ce qui peut être dû à un problème dans la dépendance de la respiration à la température ou bien au manque de stations atmosphériques boréales contraignant l'inversion.

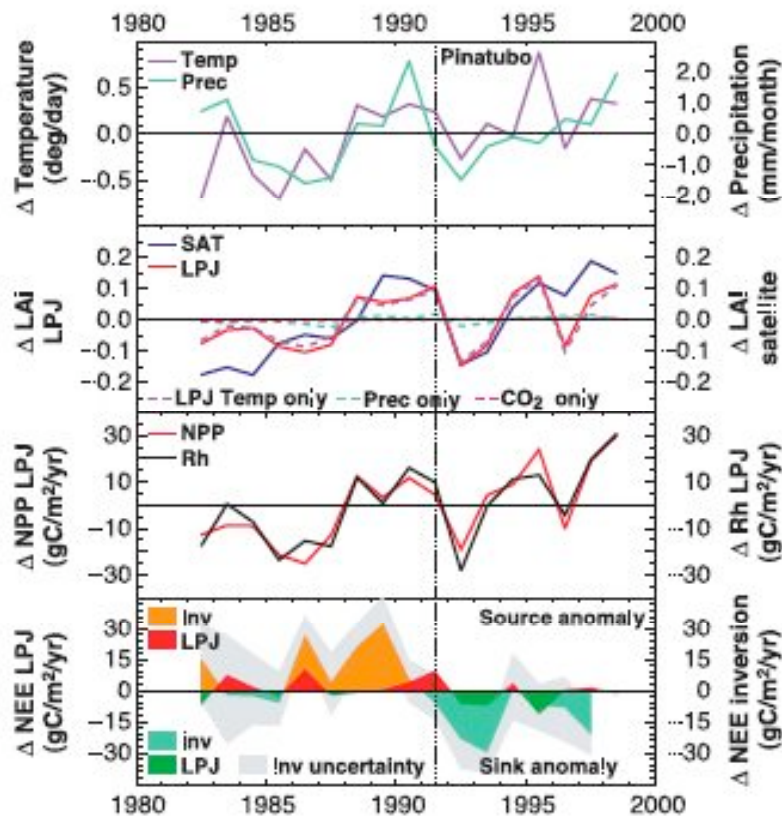


Figure 20 : de haut zen bas : Anomalies climatiques pour les régions boréales produites par le GCM de l'université d'Anglia (haut), LAI, NPP et respiration hétérotrophe, et NEE pour LPJ and une inversion atmosphérique (bas). D'après Lucht et al., (2002).

Il n'y a toujours pas de consensus sur la localisation et le mécanisme responsable du puits additionnel de CO₂ sur la période 1992-1993 dans l'hémisphère nord. Baker et al. (2006) place l'anomalie de puits plutôt dans les tropiques, en contradiction totale avec Bousquet et al. (2000) qui le place plutôt en Amérique du Nord, et en contradiction partielle avec Rödenbeck et al. (2003) qui le répartit entre l'Amérique

du Nord et l'Amazonie. Il semble que la baisse de température ($\sim 0.6^\circ$ entre 1991 et 1992) et du rayonnement utile ait provoqué une réduction plus importante de la respiration par rapport à la photosynthèse. La réduction de la photosynthèse aurait pu être limitée par l'augmentation du rayonnement diffus (favorisant l'assimilation de CO_2) causé par la présence d'aérosols volcaniques dans la stratosphère (Farquhar et Roderick, 2003 ; Gu et al., 2003). Cela dit, certaines études calculent aussi une réponse positive de la NPP à l'excès de précipitation qui a suivi l'éruption (Peylin et al., 2005 ; Nemani et al., 2002). La part relative du rayonnement diffus, de la baisse de la respiration et de la baisse de la photosynthèse est encore un sujet de débat aujourd'hui.

- Flux océaniques

Pour les flux océaniques, j'ai été responsable du projet INSU/PROOF FLAMENCO₂ depuis 2002 sur l'optimisation des flux air-mer en CO_2 . Le projet FLAMENCO₂ est centré sur l'étude des flux dans l'océan Austral. Pour la première fois, une comparaison des cycles saisonniers des flux air-mer dans l'océan Indien Sud, produits par les inversions, les modèles océaniques et les observations des campagnes OISO a montré une certaine convergence (Figure 21) en phase et en amplitude, différente de celle présente dans l'inventaire de Takahashi et al. (2002). Par ailleurs, la récurrence des campagnes OISO depuis 1998 permet d'envisager la comparaison des variations interannuelles des flux air-mer dans cette région. Une première comparaison (Figure 21) montre un accord raisonnable entre l'inversion et les données de la campagne OISO.

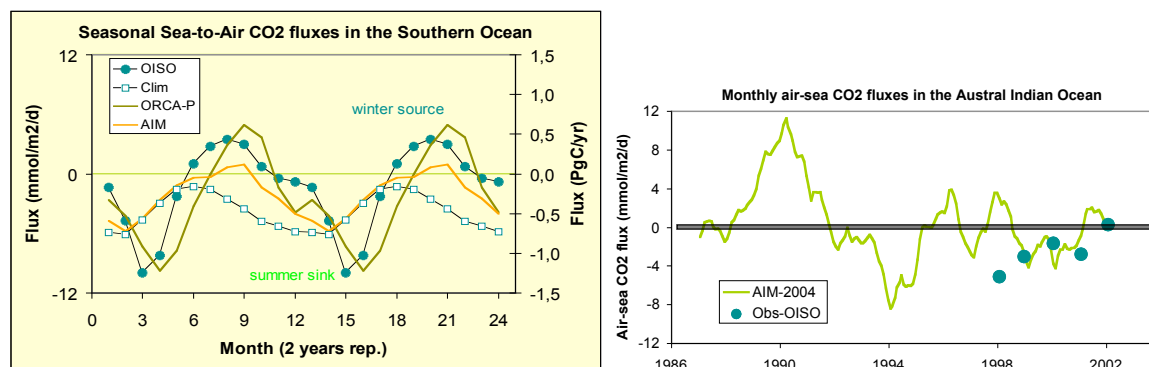


Figure 21 : Gauche : Comparaison des flux air-mer saisonnier de CO_2 estimés dans le secteur indien de l'océan austral : observations in-situ (données OISO), inversion atmosphérique (AIM, Bousquet, pers. comm. 2004), climatologie de Takahashi et al. (2002), et modèle océanique (ORCA). Les flux mensuels (exprimés en $\text{mmol/m}^2/\text{jour}$) de l'inversion ont été normalisés à la surface océanique du secteur indien austral (10.18 millions de km^2). Droite : Comparaison de la variabilité interannuelle trouvée par inversion dans l'océan indien sud (AIM) et les observations des campagnes OISO (en $\text{mmol/m}^2/\text{jour}$). D'après les rapports du projet INSU-PROOF FLAMENCO₂.

Toujours dans l'océan Austral, Peylin et al. (2005) ont montré que la tendance négative trouvée par l'inversion entre 1985 et 1995 pour les flux air-mer, et

cohérente avec celle trouvée par le modèle océanique IPSL-OPA, pouvait s'expliquer par des changements dans la profondeur de la couche de mélange océanique telle que modélisée par OPA.

J'ai aussi participé au projet européen NOCES sur les flux air-mer dans l'hémisphère nord. Ce projet m'a permis de comparer les flux air-mer inversés avec ceux calculés par une série de modèles océaniques pour les océans Atlantique Nord et Pacifique Nord (Figure 22)

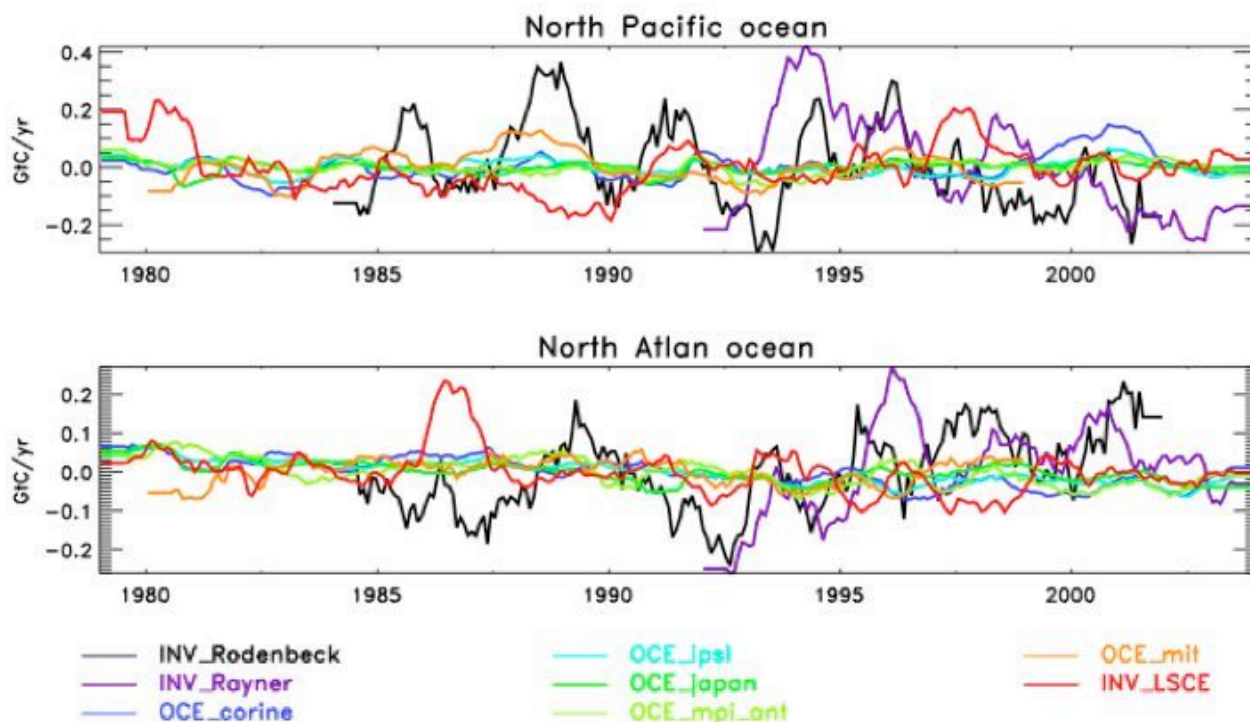


Figure 22 : Anomalies dé-saisonnalisées de flux de CO₂ pour deux bassins océaniques, le Pacifique nord (haut) et l'Atlantique nord (bas) en GtC/an. Plusieurs inversions et plusieurs modèles océaniques sont représentés (voir légende). D'après les rapports du projet européen NOCES.

Il ressort de cette comparaison que la variabilité produite par les inversions est au minimum deux fois plus forte que celle calculées par les modèles océaniques. Nous trouvons aussi que les variations interannuelles sont dominées par l'océan Pacifique, en particulier dans sa partie équatoriale, comme d'autres études récentes (Mc Kinley et al., 2004). Par ailleurs, l'accord entre les différentes inversions est loin d'être satisfaisant.

Une raison pour laquelle les inversions pourraient surestimer la variabilité des échanges de CO₂ à l'interface air-mer est la difficulté de partitionner cette variabilité entre les continents et les océans. Une partie de la forte variabilité trouvée en milieu continental pourrait être reportée sur les océans par l'inversion à cause du manque de stations (ou de traceurs spécifiques) pour bien séparer les deux milieux. Ce problème étant particulièrement sensible au réseau de mesures, il n'est pas étonnant que plusieurs inversions produisent des résultats différents.

Une raison pour laquelle la variabilité des flux air-mer pourrait être sous-estimée par les modèles océaniques tient dans l'existence de processus du même ordre de grandeur qui se compensent dans ces modèles. Ainsi dans l'Atlantique Nord, les effets de la dynamique de l'océan (mélange horizontal et convection), de la température de surface (SST), et de la biologie (représentée par le DIC) tendent à s'annihiler (Peylin et al., 2005). Les flux air-mer de la partie sub-polaire sont essentiellement contrôlés par le DIC et le mélange vertical par convection dans la colonne d'eau. Cependant, un apport important de DIC en surface pendant l'hiver par convection peut être rapidement contrecarré par l'activité biologique au printemps et un export vers le fond, avant que l'échange air-mer, qui a une cinétique plus lente, n'ait pu avoir un impact significatif dans l'atmosphère (Mc Kinley et al., 2004). D'une façon plus générale, les eaux chaudes d'été favorisent de fortes valeurs de $p\text{CO}_2$ que l'activité biologique tend à réduire, tandis que les eaux froides d'hiver tendent à diminuer $p\text{CO}_2$ que la convection a tendance à augmenter en ramenant du DIC en surface. Plus au sud, la pression partielle de CO_2 est contrôlée par la SST et se trouve corrélée à l'indice NAO, comme on peut l'observer à la station de BATS (Gruber et al., 2002). Sur cette base, Gruber et al. (2002) propose une extrapolation de 18 ans de mesures faites à la station de BATS pour produire le flux air-mer de tout l'Atlantique Nord. Cette estimation se compare d'ailleurs bien aux flux inversés dans Bousquet et al. (2000), comme le montre la Figure 23.

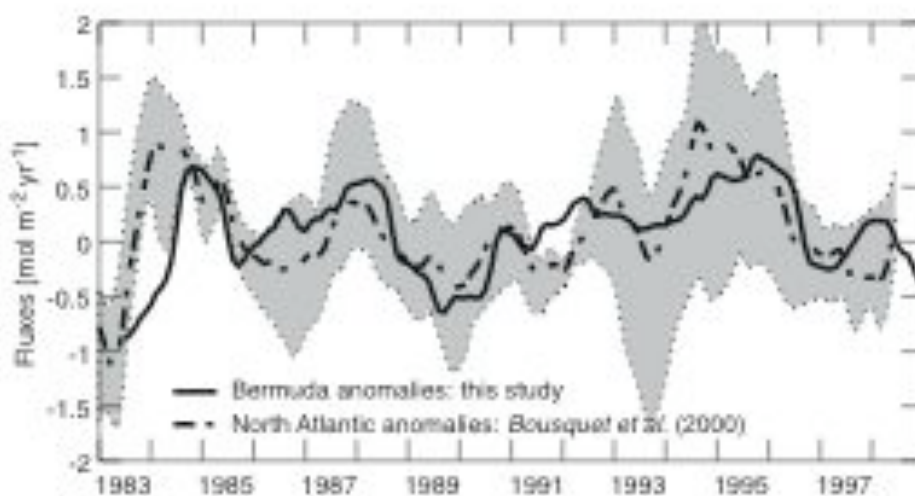


Figure 23 : Comparaison d'anomalies de flux de CO_2 obtenues par inversion atmosphérique (trait tireté et enveloppe) et à partir des mesures directes faites à la station océanique de Bermudes ($\text{mol}/\text{m}^2/\text{an}$). D'après Gruber et al., (2002).

Cependant, Mc Kinley et al. (2004) doutent qu'une telle extrapolation soit possible car dans leur modèle, les flux de CO_2 et l'indice NAO sont découplés à cause du temps d'équilibration des échanges de CO_2 à l'interface air-mer. De plus la corrélation de $p\text{CO}_2$ et de la SST ne s'étend pas au delà de 45°N ce qui limite fortement la pertinence de l'extrapolation faite par Gruber et al. (2002). Dans le pacifique Nord, la compétition entre les effets contradictoires de la SST et du DIC contribue aussi à limiter la

variabilité du flux air-mer dans les modèles océaniques (Peylin et al., 2005). Une seconde raison expliquant la faible interannualité des flux air-mer des modèles océaniques est une possible sous-estimation de la variabilité des champs dynamiques dans les modèles (Lequéré et al., 2003). Cependant la validation des modèles aux stations de BATS et HOT est le plus souvent satisfaisante (Mc Kinley et al., 2004 ; Lequéré et al., 2003 ; Peylin et al., 2005), limitant la portée d'un tel argument.

- *Conclusion*

La comparaison des approches montantes et descendantes est importante à poursuivre pour améliorer notre connaissance des flux régionaux de CO₂. Ainsi le bon accord obtenu entre des modèles océaniques, des inversions et des données extrapolées dans la région du Pacifique équatorial, même si elle ne constitue pas une preuve formelle, donne tout de même confiance dans la capacité des inversions atmosphériques à fournir des résultats fiables à l'échelle régionale quand il y a suffisamment de contraintes. L'étape suivante, dont je parlerai dans le chapitre V, est de fusionner ces deux approches dans un système d'assimilation complet du cycle du carbone qui optimise directement les paramètres des modèles biogéochimiques (Rayner et al., 2005).

III. Inversion des sources et puits de méthane (CH₄)

Le méthane (CH₄) est un gaz trace important de l'atmosphère dont la teneur a été multipliée presque par trois depuis 1800, pour atteindre 1800 ppb en moyenne aujourd'hui (IPCC, in prep.). D'après les mesures faites dans les carottes de glace, ce niveau est sans précédent depuis plus de 600000 ans (Spahni et al., 2005). Le méthane est le second gaz à effet de serre anthropique après le CO₂ (IPCC, 2001). Bien que 200 fois moins abondant que le CO₂, il est 20 fois plus efficace pour piéger le rayonnement infrarouge émis par le système Terres-oceans-atmosphère. De plus, CH₄ joue un rôle très important dans la chimie atmosphérique en affectant la capacité oxydante de l'atmosphère et comme précurseur de l'ozone troposphérique. Le temps de vie de CH₄ dans l'atmosphère est estimé autour de 8.4 ans (IPCC, 2001).

Le méthane est émis en surface par une variété de sources naturelles et anthropiques (Matthews and Fung, 1987, 1991 ; Olivier et Berdowski, 2001). Il existe trois processus principaux conduisant à la production de méthane : 1/ formation biogénique par des bactéries méthanogènes en milieu anaérobie, 2/ formation thermogénique, et 3/ combustion incomplète de biomasse ou de combustibles fossiles. Les zones inondées de la Terre (marécages, rizières) constituent une source biogénique importante de méthane, mais on trouve aussi dans cette catégories les émissions par décharges, les eaux usées ou les estomacs des ruminants ou les termites. Tous ces milieux sont caractérisés par l'existence de zones anaérobies. Les processus thermogéniques conduisent à la production de poches de méthane dans le sous-sol sur des temps géologiques. Récemment, Keppler et al. (2006) ont découvert que les plantes pouvaient émettre du méthane dans des conditions anaérobies. Le processus et l'ampleur de l'émission restent à déterminer, mais ils suggèrent que ces émissions, potentiellement importantes, sont liées à un processus non-microbien où la pectine de la plante joue un rôle central. Une source océanique de faible ampleur existe aussi due aux volcans sous-marins, aux sédiments et aux zones géothermales. Les différents types de processus se distinguent aussi par la composition isotopique ($\delta^{13}C$, δD) du méthane produit, ce qui permet d'ajouter des contraintes supplémentaires au cycle de méthane (Miller et al., 2002 ; Quay et al., 1999). Au total, les émissions de méthane sont estimées entre 500 et 600 Téra grammes par an (1TgCH₄/an=10¹²gCH₄/an), avec de grandes incertitudes sur les émissions des processus individuels et sur leur localisation et leur variabilité (IPCC, 2001 ; Wang et al., 2004).

Le principal puits de méthane est la réaction avec le radical hydroxyle OH, principal oxydant de la troposphère :



Cette réaction est la première d'une chaîne d'oxydation conduisant au monoxyde de carbone (CO) puis au CO₂ (Figure 1). De plus, en fonction des teneurs en oxydes d'azote, cette chaîne réactionnelle conduit, dans une grande partie de l'hémisphère nord, à une production nette photochimique d'ozone dans la troposphère. La destruction de CH₄ par OH représente environ 90% du puits total de CH₄ (IPCC,

2001). Le reste du puits est dû à une absorption par les sols, à la réaction avec le chlore radicalaire (Cl) dans la couche limite marine (Platt et al., 2004), et aux réactions avec OH, Cl et l'oxygène (O^1D) dans la stratosphère (IPCC, 2001).

La teneur atmosphérique en radicaux OH est donc fondamentale à connaître pour bien représenter le cycle du méthane. OH est produit par réaction entre la vapeur d'eau et l'oxygène atomique dans un état excité (O^1D) provenant principalement de la photolyse de l'ozone. La concentration moyenne de OH est environ $10 \cdot 10^5$ molécules/cm³ ($8-12 \cdot 10^5$ molécules/cm³), avec de grandes fluctuations spatiales et temporelles dépendant du rayonnement, et des teneurs vapeur d'eau et en ozone (Spivakovski et al., 2000). Le temps de résidence très court de OH rend difficile l'estimation de sa variabilité aux échelles régionales à mondiales. Des méthodes utilisant des proxys se sont donc développées pour estimer la concentration de OH et sa variabilité à ces échelles. Par exemple, l'utilisation d'un traceur atmosphérique réagissant avec OH et dont on connaît bien les émissions permet d'estimer la concentration de OH et sa variabilité. A ce titre le 1-1-1 trichloro-éthane, ou méthyl-chloroforme (MCF), a été largement utilisé (Prinn et al., 2001, 2005 ; Dentener et al., 2003a, 2003b ; Hein et al., 1997 ; Houweling et al., 1999 ; Krol & Lelieveld, 2003 ; Bousquet et al., 2006). ^{14}CO a aussi été utilisé par certains auteurs (Manning et al., 2005). Le bilan de CH_4 peut s'écrire :

$$\frac{dC}{dt} = E - S \quad \text{Eq. 23}$$

Où C est la charge atmosphérique en méthane (burden), E représente l'émission totale et S le puits total. Grâce à des mesures atmosphériques très précises, la charge atmosphérique en méthane est le terme le mieux connu de ce bilan. Le terme de puits est assez bien connu à $\pm 10\%$ environ, soit $\pm 50 \text{ TgCH}_4/\text{an}$ environ. L'incertitude sur les autres puits pourraient ajouter $\pm 30 \text{ TgCH}_4/\text{an}$. Au final, la contrainte sur l'émission totale E est assez bonne, mais la contribution spatio-temporelle des différents types de source qui contribuent à E reste largement incertaine.

Dans ce chapitre, je passe rapidement en revue les approches qui ont été mise en œuvre pour estimer les sources et puits de méthane (§1), avant de décrire l'optimisation des concentrations de OH par inversion des mesures atmosphériques de méthyl-chloroforme (§2), qui est un préalable pour réaliser une inversion des sources et puits de méthane. La méthodologie mise en œuvre pour réaliser les deux inversions est la même (§2). Comme pour le CO_2 , les sources et puits de CH_4 sont présentés en séparant les flux nets moyens (§3) de leurs variations interannuelles et décennales (§4).

1. Les prémices

Une grande variété d'études ont été réalisées pour estimer les sources et puits de méthane, à différentes échelles de temps et d'espace. Elles peuvent être regroupées en 2 catégories déjà vues pour le CO_2 (approches montantes et descendantes). Dans

le cas du méthane, les approches montantes utilisent des mesures directes de flux de méthane (ex : marécages, plant, décharges, ..) pour estimer des facteurs d'émissions ($\text{gCH}_4/\text{m}^2/\text{jour}$) qui sont ensuite extrapolés jusqu'à l'échelle régionale ou utilisés pour forcer des modèles biogéochimiques représentant les processus en jeu (Fung et al., 1991 ; Walter et al., 2001). Ces modèles peuvent aussi être économiques ou statistiques (ex : émissions dues à l'extraction des combustibles fossiles). Plus récemment, le couplage entre des reconstructions satellites des zones de feux de biomasse et un modèle de végétation a permis d'améliorer la localisation et l'estimation des émissions de méthane dues aux feux de forêts (Van der Werf et al., 2003, 2004).

Le méthane est surveillé dans l'atmosphère de façon régulière depuis 1983 par la NOAA et par d'autres organisations nationales, dont le LSCE pour la France (GLOBALVIEW- CH_4 , 2005 ; Dlugokencky et al., 2001, 2003). Plus de 80 points de mesure existent aujourd'hui, dont certains commencent à fournir des données continues (Prinn et al., 2000 ; WMO, 2003). Les premières reconstructions satellites apparaissent aussi (Buchwitz et al., 2005a, 2005b ; Frankenberg, 2005, 2006). Comme pour le CO_2 , les premières inversions atmosphériques ont utilisées des moyennes zonales de concentrations et des modèles 2D (latitude/altitude) pour estimer des émissions zonales climatologiques (Brown, 1993, 1995). La première inversion climatologique utilisant le formalisme bayésien et des données isotopiques de $^{13}\text{CH}_4$ a été réalisée par Hein et al. en 1997. Il s'agissait d'une inversion de type grandes régions mais avec une optimisation de chaque type de sources séparément. Les concentrations de OH étaient calculées par le CTM. Ce travail conduisait à une réduction d'erreur de 30% environ par type de source à l'échelle mondiale. Elle a été suivie par l'étude de Houweling et al. (1999) qui résolvait les émissions de méthane à l'échelle du modèle de chimie-transport, à l'aide d'un modèle adjoint. Les incertitudes résiduelles dans ce travail étaient plus importantes que dans Hein et al., mais probablement plus réalistes car l'erreur d'agrégation était minimisée. Par exemple, la réduction d'erreur à l'échelle du modèle était très faible (<1%) mais elle atteignait plus de 70% à l'échelle hémisphérique. Dans cette étude, les champs de OH étaient prescrits à partir d'une optimisation climatologique utilisant le méthyl-chloroforme. Dans leur étude semi-inverse sur la variabilité des émissions de méthane entre 1979 et 1993, Dentener et al. (2003) ont conclut que les variations observées dans l'atmosphère étaient cohérentes avec celles modélisées par leur CTM et que la variabilité des émissions de méthane étaient de l'ordre de $\pm 8 \text{TgCH}_4/\text{an}$, due aux émissions des zones inondées et des feux de biomasse.

Dans l'étude de Dentener et al., (2003), les variations interannuelles de concentration du radical OH étaient beaucoup plus faibles et pas en phase avec les estimations faites par d'autres études utilisant le méthyl-chloroforme. Quand j'ai commencé à m'intéresser aux sources et puits de méthane en 2003, la divergence de résultats existant entre les études sur le radical OH, et l'importance de OH dans le cycle du méthane, m'a conduit à travailler sur l'optimisation des champs 3D de OH en préalable à l'inversion de CH_4 . Je vais donc présenter les résultats obtenus sur cette question (§2) avant de synthétiser ceux obtenus pour CH_4 (§3 et §4).

2. Optimisation de OH

Cette section reprend l'article de Bousquet et al., publié en 2005 dans la revue Atmospheric Chemistry and Physics (copie de l'article à la fin du manuscrit) : Two decades of OH variability as inferred by an inversion of atmospheric transport and chemistry of methyl chloroform

Le methyl-chloroforme est un solvant industriel utilisé dans les industries de haute technologies. Dans le cadre du protocole de Montréal régissant les émissions de gaz contribuant à détruire la couche d'ozone planétaire, MCF est mesuré dans l'atmosphère par les programmes ALE/GAGE/AGAGE depuis 1978 (Prinn et al., 2001, 2005) et par NOAA/CMDL depuis 1990 (Montzka et al., 2000). Le MCF est principalement détruit dans l'atmosphère par sa réaction avec OH. Sa durée de vie est d'environ 5 ans (Prinn et al., 2001). Les observations (Figure 24) montrent une forte augmentation des teneurs jusqu'en 1991, avec un pic de concentration dans l'hémisphère nord à 150 ppt environ, puis une rapide diminution à mesure que les produits de substitution remplacent le MCF. Aujourd'hui les teneurs en MCF n'excèdent pas 40 ppt (Prinn et al., 2005).

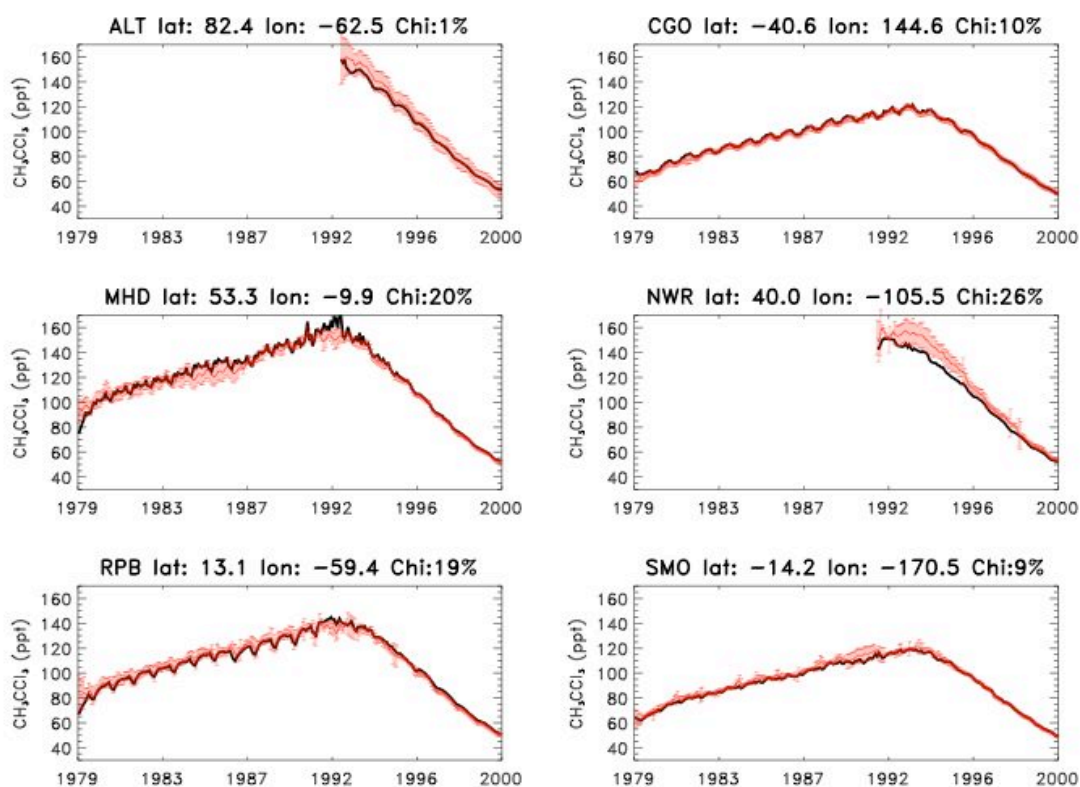


Figure 24 : Observations de methyl-chloroforme (rouge) et leurs incertitudes ($\pm 1\sigma$) pour 6 stations de mesures. Les résultats du modèle de chimie transport après inversion sont en noir. D'après Prinn et al., 2001 et Bousquet et al., (2005).

Les émissions de MCF sont données par l'inventaire d'émissions EDGAR3.2 (Olivier et Berdowski, 2001) pour la répartition spatiale et par l'inventaire de McCulloch et Midgley (2001) pour l'évolution temporelle et les incertitudes qui varient de $\pm 2\%$ à $\pm 25\%$ selon les périodes. Les émissions ont connu un pic en 1991 (~ 718 Gg) pour chuter à environ 20 Gg en 2000, c'est-à-dire leur niveau des années 1960. Les incertitudes sur les émissions de MCF sont relativement faibles au regard de celles associées aux champs de OH. On peut donc espérer contraindre les champs de OH et leur variation à l'aide des observations de MCF en utilisant la méthodologie présentée au chapitre 1. Cela dit Les incertitudes sur les émissions de MCF peuvent tout de même atteindre $\pm 25\%$ et ne peuvent donc pas être négligées dans l'inversion.

Plusieurs inversions ont utilisé MCF pour optimiser les champs climatologiques ou interannuels de OH. Concernant les variations interannuelles, Prinn et al. (2001) et Krol et Lelieveld (2003) trouvent une variabilité interannuelle forte ($\sim \pm 10\%$) du radical OH aux échelles mondiale et hémisphérique (Figure 25). Les 2 études ne s'accordent pas cependant à la fin des années 1990s à cause probablement de différences de modèles et de la difficulté de convertir en termes de variations de OH les petits gradients atmosphériques de MCF, dus à des émissions très faibles (Krol et Lelieveld, 2003). Si on en croit Dentener et al. (2003), de telles variations de OH d'une année sur l'autre ne sont pas compatibles avec le cycle du méthane car elles induiraient de très fortes variations des émissions de CH_4 , compte tenu du taux de croissance observé du méthane atmosphérique. Dans son travail, Krol critique lui aussi ses fortes variations et montre qu'elles sont certainement liées à des problèmes de modélisation (transport interannuel, émissions, résolution trop faible du CTM). Pour Krol et Lelieveld (2003), MCF peut seulement servir à optimiser les variations à long terme de OH mais pas ces variations interannuelles.

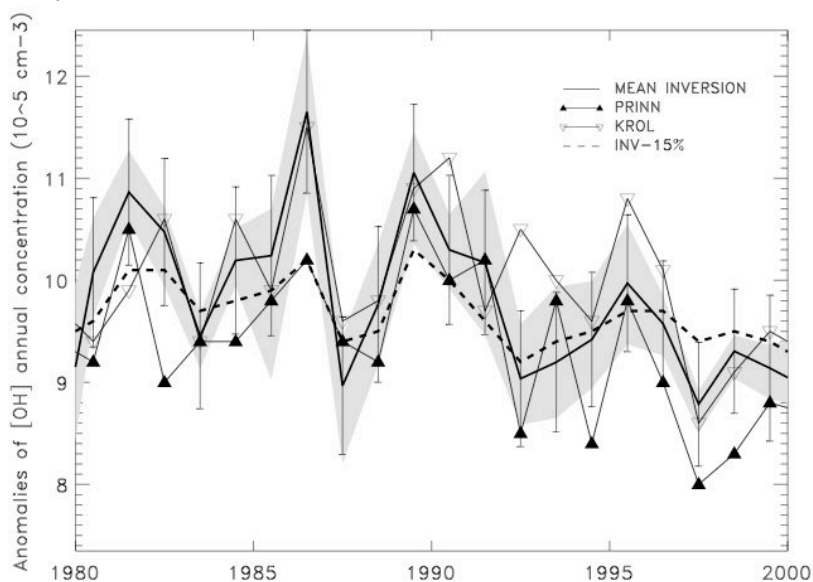


Figure 25 : Variations mondiales des concentrations de OH optimisées par plusieurs inversions. Trait plein noir : éventail d'inversion réalisées dans Bousquet et al. (2005) avec de fortes incertitudes a priori sur OH. Triangles pleins: Prinn et al. (2001). Triangles vides : Krol et al. (2003). Trait pointillé : Inversion I15% où les incertitudes a priori sur OH autorisent les émissions de MCF à varier dans la limite de leurs incertitudes (à $\pm 2\sigma$). D'après Bousquet et al., (2005).

Cependant, aussi bien Krol que Prinn trouvent des tendances à long terme de OH significatives, de l'ordre de $\pm 1\%/an$ avec leurs inversions des observations de MCF. Les deux études produisent une tendance à long terme positive pour la période 1978-1990 puis une tendance négative du même ordre ensuite (Figure 25). Cette valeur est contestée par Dentener et al. (2003) qui trouve une tendance de même signe mais plus faible pour la période 1979-1989 ($0.28 \pm 0.09\%/an$), à cause d'une combinaison de causes chimiques et météorologiques.

La méthodologie que nous avons mise au point permet d'optimiser les champs de OH pour 4 bandes de latitudes ($90-30^\circ S$, $30-0^\circ S$, $0-30^\circ N$, $30-90^\circ N$), à partir des observations de MCF et en tenant compte de l'interannualité du transport atmosphérique et des incertitudes sur les émissions de MCF dans une même procédure. Cette méthode est décrite en détail dans Bousquet et al. (2005). Elle est résumée sur la Figure 26.

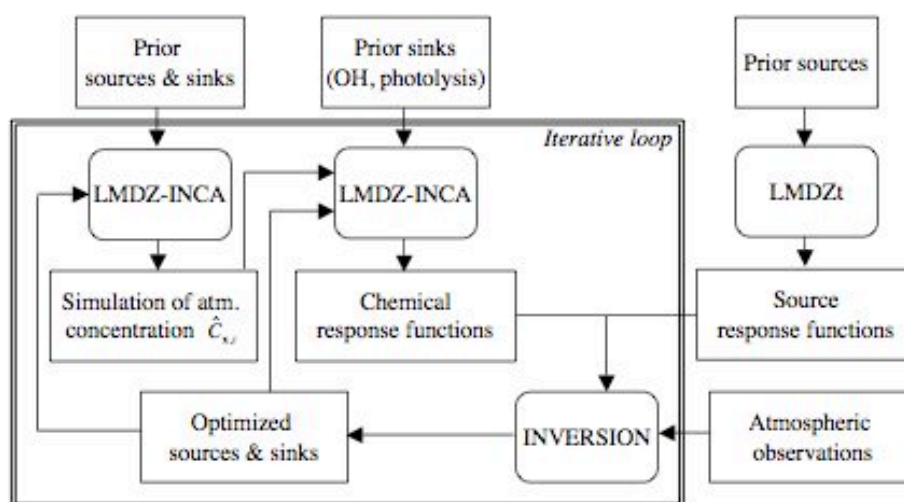


Figure 26 : Schéma résumant l'inversion des sources et puits d'une espèce chimique réagissant avec OH. Schéma principal : calcul itératif des fonctions de réponse de OH. A droite : calcul des fonctions de réponses des émissions de l'espèce chimique. Cette méthode s'applique à MCF et CH_4 successivement. D'après Bousquet et al., (2005).

Une inversion demande le calcul des fonctions de réponse, c'est à dire de la contribution de chaque puits ou source à la concentration observée pour chaque pas de temps inversé (ici le mois). La méthodologie que j'ai employée est adaptée de celle de Hein et al. (1997). Les fonctions de réponse des sources et des puits sont calculées séparément. Comme vu dans la partie méthodologie, cela revient à linéariser le problème inverse et à le résoudre de façon itérative. Pour les émissions (Figure 26, droite), le calcul se fait une seule fois car le problème est linéaire. On calcule les fonctions de réponse de chaque processus sur chaque région chaque mois grâce à la partie rétrotransport de LMDZ-INCA (voir chapitre I).

Pour la partie puits chimique (réaction avec OH), le problème se complique car le puits de CH_4 dépend de OH. On procède de façon itérative. On part d'une première

estimation des émissions et du champs de OH et on simule l'état de l'atmosphère sur la période d'étude (1979-2004). A partir de cet état de l'atmosphère, on calcule chaque mois la fonction de réponse du puits OH en appliquant le puits pendant un mois sur chacune des quatre bandes de latitudes, puis en le supprimant les mois suivants, à l'aide de simulations directes de LMDZ-INCA. Le premier jeu de fonctions de réponse du puits et les fonctions de réponse des émissions sont alors combinées dans une première inversion qui fournit un jeu de sources et puits optimisé. Ce jeu d'émissions et de facteurs correctifs des concentrations de OH est réinjecté dans LMDZ-INCA pour générer un nouvel état de l'atmosphère qui peut servir pour calculer de nouveau les fonctions de réponse OH, et refaire une inversion, etc ... En pratique l'élément limitant est le coût du calcul des fonctions de réponse chimiques qui doivent être intégrées sur toute la période d'étude à chaque itération. A titre d'exemple, le calcul d'une itération représente environ 1000h de supercalculateur NEC-SX6. Pour limiter ce problème, nous avons réalisé deux itérations seulement et l'interannualité du transport atmosphérique a été négligée dans la première itération. Par ailleurs, les fonctions de réponse sont propagées pendant 6 mois seulement (1 mois de puits/source + transport, puis 5 mois de transport seul). Au delà, on suppose que l'information est suffisamment diffusée pour pouvoir être simplement interpolée vers la valeur limite asymptotique donnée par la conservation de la masse émise.

Quand on applique cette méthode en prescrivant des incertitudes sur OH beaucoup plus importante que pour les émissions de MCF, nous retrouvons essentiellement les résultats de Krol et Prinn avec des fortes variabilités interannuelles et décennales (Figure 25). Cela revient en fait plus ou moins à figer les émissions à leur valeur a priori tant leur incertitude est beaucoup plus faible que celle prescrite pour OH. Les différents tests de sensibilité que nous avons effectués montrent que cette variabilité n'est pas due à l'interannualité du transport atmosphérique ou aux stations de mesures utilisées.

Par contre, lorsqu'on diminue les incertitudes a priori sur OH, la variabilité des champs de OH optimisés chute fortement tandis que les émissions de MCF varient plus d'une année sur l'autre. Il s'agit simplement d'un effet de poids entre les différentes composantes de l'inversion. Si on autorise les émissions de MCF à varier dans la limite de leurs incertitudes a priori (à $\pm 2\sigma$), les variations interannuelles de OH sont réduites de 65%, sans changement majeur de phase (scénario I15%, voir Bousquet et al., 2005, fig. 12). De même, les tendances gardent les mêmes signes, mais leur amplitude diminue significativement (Figure 25). Par conséquent, quand on prend en compte l'ensemble des incertitudes du problème, notamment celles des émissions, les observations de MCF ne peuvent fournir qu'un éventail possible (assez large) des variations de OH. Il faut aussi noter que la phase des variations de OH optimisée est beaucoup plus robuste que son amplitude. Pour l'inversion de CH₄, j'ai choisi de privilégier le scénario I15% ci-dessus. Le scénario à OH constant a aussi été prescrit comme test de sensibilité de l'inversion CH₄.

3. Inversion des sources et puits de CH₄: méthodologie & setup

La méthodologie utilisée pour optimiser les sources et puits de méthane à l'aide des mesures atmosphériques est formellement la même que celle utilisée pour optimiser les variations du radical OH à l'aide des mesures de MCF (Bousquet et al., 2005). Pour OH, les incertitudes sur les émissions de MCF sont plus faibles que associées à OH, et permettent donc d'optimiser les champs de OH (dans une certaine mesure). Pour CH₄, l'accumulation atmosphérique annuelle est très faible devant la somme des émissions car OH détruit plus de 90% des émissions de CH₄. Les mesures atmosphériques de CH₄ contraignent seulement la somme des sources et puits. Si on ne contraint pas l'un de ces deux termes, l'optimisation risque de trouver une solution avec des émissions mondiales beaucoup plus faibles ou beaucoup plus fortes que les intervalles donnés par les inventaires. On prescrit donc les champs de OH pré-optimisés à l'aide des observations de MCF dans l'inversion CH₄ afin d'optimiser les émissions régionales de méthane.

Pour la période 1984-2003, les réponses mensuelles des concentrations de méthane à l'action du puits du à OH et des émissions régionales ont été calculées à l'aide du modèle de chimie-transport LMDZ-INCA (Hauglustaine et al., 2004) forcé par les analyses et réanalyses interannuelles du centre européen (Uppala et al., 2004) et les champs de OH optimisés avec MCF. Les émissions de méthane sont optimisées chaque mois pour 10 processus, répartis sur 11 régions continentales et 1 océan mondial. Les 10 processus sont : les zones inondées (wetlands) boréales, les zone inondées tropicales, la tundra, les termites, les émissions liées à l'extraction, à la transformation et au transport des combustibles fossiles et à l'industriel, le bio-fuel, les ruminants, les décharges & les usines de retraitement des eaux usées, et l'absorption par les sols. Les 11 régions continentales correspondent aux régions définies pour l'expérience TRANSCOM3 (Figure 3). Cette double partition spatiale et par processus permet de faire des bilans de méthane à la fois géographique et par type de source. Les flux a priori proviennent des inventaires d'émissions EDGAR (Olivier et Berdowski, 2001) pour les sources anthropiques et GISS (Matthiew and Fung, 1987, 1991) pour les émissions naturelles. La structure spatio-temporelle des émissions dues aux feux de biomasse est donnée par Van der Werf et al., (2004). Aucune variation interannuelle n'est prescrite dans l'inversion sauf pour les émissions dues aux ruminants dont les variations suivent les statistiques de la FAO (FAO, 2005).

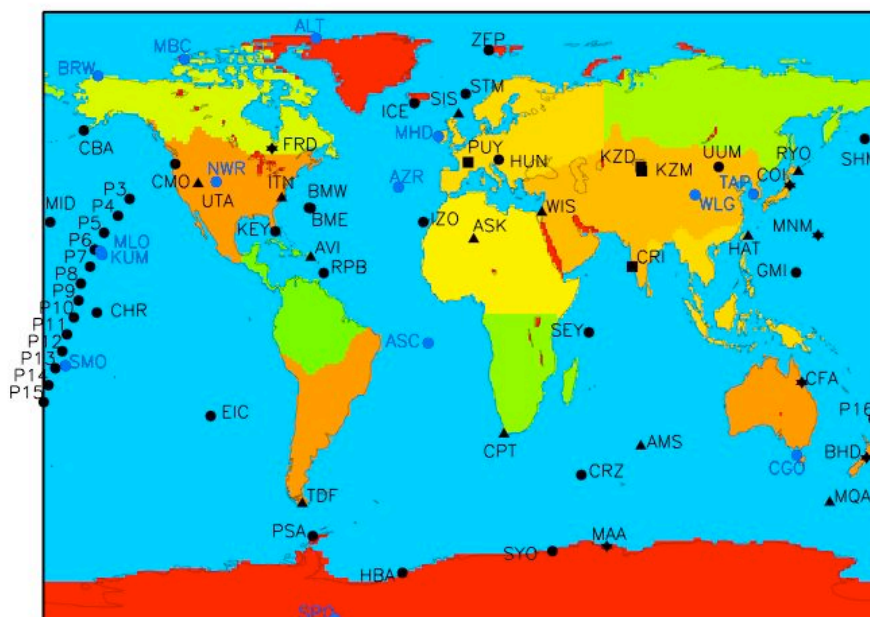


Figure 27 : Régions et sites de mesures utilisés pour l'inversion CH_4 . Différents jeux de stations ont été utilisés : 50 stations NOAA (ronds pleins), 12 sites d'autres laboratoires ou avec des séries temporelles plus courtes (triangles pleins), et 6 sites supplémentaires avec des séries temporelles courtes (carrés). Les sites où $^{13}\text{CH}_4$ est mesuré sont indiqués en bleu. D'après Bousquet et al., (2006).

Les observations de CH_4 sont collectées sur une base hebdomadaire et sont inversées sous forme de moyennes mensuelles. Les variances sur ces moyennes sont prises dans la base de données GLOBALVIEW- CH_4 quand elles existent et calculées comme la variance des flacons du mois sinon. Au total, 68 sites des mesures ont été utilisés dans l'inversion, dont 75% venant du réseau NOAA (Figure 27). Les stations sont assimilées à mesure de leur apparition dans le réseau. Aucune covariance d'erreur sur les observations n'ont été prescrites a priori. Les offsets entre réseau sont donnés par les « round-Robin » entre laboratoires. Les observations de 13 sites de mesure de $^{13}\text{CH}_4$ ont été intégrées à l'inversion en utilisant l'approche de Hein et al. (1997). Ces données couvrent la période 1998-2004. Elles permettent de séparer les sources de méthane en fonction de leur signature isotopique : combustion de biomasse ($\sim 20\text{‰}$ pour les plantes en C3 et $\sim 12\text{‰}$ pour les plantes en C4), processus microbiens ($\sim 60\text{‰}$) et sources liées aux combustibles fossiles ($\sim 40\text{‰}$), l'atmosphère étant proche de -47‰ (Miller et al., 2002). Pour 4 sites de mesure, j'ai étendu les séries temporelles sur la période 1989-2004 en utilisant les mesures du réseau SIL (Quay et al., 1999). A Niwot Ridge, les mesures de la NOAA ont été étendue à l'aide de celle de l'université de Californie sur la période 1994-2004 (Tyler et al., 1999). A titre d'illustration, la Figure 28 montre les observations et l'ajustement après optimisation pour 4 stations de CH_4 et de $^{13}\text{CH}_4$.

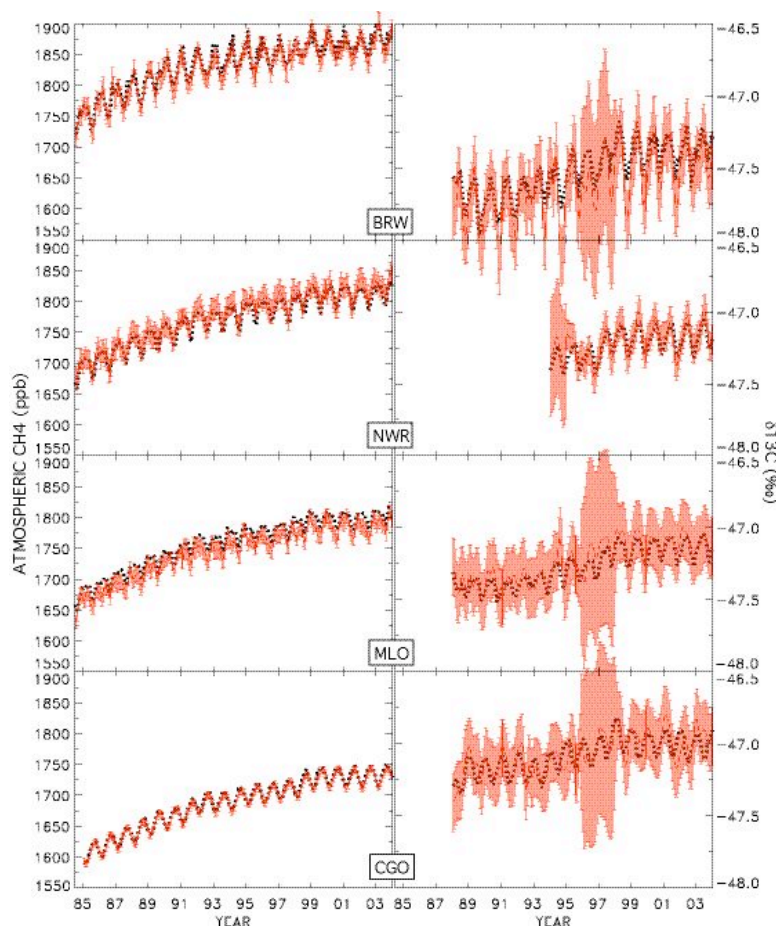


Figure 28 : Observations (rouge) et ajustement du modèle après optimisation (noir) pour 4 stations de CH_4 et de $^{13}\text{CH}_4$. Les incertitudes des stations $^{13}\text{CH}_4$ sont grandes en 1996-97 car les données de cette période sont reconstituées par interpolation. D'après Bousquet et al., (2006).

J'ai réalisé une inversion de référence et 17 inversions supplémentaires pour tester la sensibilité des résultats aux paramètres de l'inversion : incertitudes sur les flux a priori et les observations, le nombre de régions/processus optimisés, Le nombre des sites de mesures utilisés, l'utilisation de données isotopiques, l'utilisation ou non du transport interannuel, l'utilisation de champs de OH constant d'une année sur l'autre, et l'introduction d'une source additionnelle due aux plantes (Bousquet et al., 2006). Les résultats de cette étude pour les sources et puits nets et pour les variations interannuelles sont résumés dans les deux sections suivantes.

4. Sources et puits nets de CH_4 .

La source mondiale de méthane est estimée à $525 \pm 8 \pm 6 \text{ TgCH}_4/\text{an}$ pour la période 1984-2003, avec un puits de $485 \text{ TgCH}_4/\text{an}$ dû à OH (Table 3). La première incertitude est l'erreur d'estimation retournée par la procédure inverse. La seconde erreur est la déviation standard des résultats des 18 inversions réalisées. En général, l'erreur de sensibilité des inversions est inférieure à l'erreur d'estimation, ce qui indique une relative robustesse des résultats obtenus. Une exception notable est visible pour l'Amérique du sud tropicale et les régions continentales de l'hémisphère

sud, probablement les moins contraintes par les observations atmosphériques (Table 3). Notre estimation de la somme mondiale des émissions de CH_4 est comprise dans l'intervalle donné par l'IPCC (500-600 TgCH_4/an). Elle est en bon accord avec des estimations récentes faites à partir de reconstructions satellites de colonnes atmosphériques de CH_4 autour de 535 TgCH_4/an (Bergamashi et al., 2006). Etant donnée la faible incertitude sur le taux de croissance atmosphérique de CH_4 , la somme totale des émissions est essentiellement déterminée par le champs de OH utilisé. La comparaison avec les études précédentes est rendue difficile par les différences existant sur la somme mondiale des émissions (entre 500 et 610 TgCH_4/an) et sur les périodes couvertes. Ainsi, avec un même modèle de chimie-transport, mais pour des périodes et avec des techniques d'inversion différentes, Hein et al. (1997) et Houweling et al. (2000) trouvent des estimations de la somme totale des émissions aux deux extrémités de l'intervalle donné par l'IPCC, avec 592 TgCH_4/an et 505 TgCH_4/an respectivement.

La somme des émissions anthropiques est de $324 \pm 10 \text{ TgCH}_4/\text{an}$, proche de la révision récente de EDGAR avec 320 TgCH_4/an , et compatible à $\pm 2\sigma$ avec celles de Wang et al. (2004) (307 TgCH_4/an) et de Mikaloff-Fletcher et al. (2004) (350 TgCH_4/an). Les émissions naturelles que nous optimisons sont de $201 \pm 10 \text{ TgCH}_4/\text{an}$. Les différences sur la somme mondiale des émissions entre les études est essentiellement due à ces émissions naturelles (entre 145 et 248 TgCH_4/an) et en particulier aux émissions des zones inondées, comprises entre 100 TgCH_4/an (Wuebbles & Hayhoe, 2002) et 231 TgCH_4/an (Mikaloff-Fletcher et al., 2004).

Les émissions pour les régions boréales et tempérées de l'hémisphère nord, pour les régions tropicales et pour les régions tempérées de l'hémisphère sud sont respectivement $257 \pm 8 \pm 6 \text{ TgCH}_4/\text{an}$, $195 \pm 11 \pm 15 \text{ TgCH}_4/\text{an}$ and $53 \pm 7 \pm 14 \text{ TgCH}_4/\text{an}$. Les émissions sont plus fortes dans les régions nord, en désaccord avec le travail récent de Fletcher et al. (2004). Encore une fois, le modèle de chimie-transport, la période couverte et les champs de OH utilisé par Fletcher et al. diffèrent de notre étude. Les émissions liées aux combustibles fossiles ($110 \pm 13 \pm 7 \text{ TgCH}_4/\text{an}$) ainsi que les émissions dues à la combustion de biomasse ($38 \pm 7 \pm 2 \text{ TgCH}_4/\text{an}$) augmentent par rapport à l'inventaire mais les émissions dues à la culture du riz sont revues à la baisse ($31 \pm 5 \pm 2 \text{ TgCH}_4/\text{an}$). Les émissions dues aux zones inondées sont stables ($147 \pm 15 \pm 9 \text{ TgCH}_4/\text{an}$) mais avec une augmentation des émissions des zones inondées tropicales ($104 \pm 12 \pm 9 \text{ TgCH}_4/\text{an}$) et une diminution des émissions des zones inondées boréales ($43 \pm 8 \pm 3 \text{ TgCH}_4/\text{an}$). Les émissions de CH_4 dues aux zones inondées de notre étude sont compatibles avec celles de Houweling et al. (1999) (163 TgCH_4/an) mais sont plus faibles que celles trouvées par Mikaloff-Fletcher et al. (2004) (202 TgCH_4/an). Une grande disparité demeure aussi pour les émissions des rizières qui varient de 31 TgCH_4/an pour notre étude et celle de Scheehle (2002) à 112 TgCH_4/an pour Chen & Prinn (2005), en passant par des estimations intermédiaires autour de 50-60 TgCH_4/an pour Wang et al. (2004) et Mikaloff-Fletcher et al., (2004). Une partie de l'incertitude sur ces émissions vient de la difficulté de les séparer des émissions des zones inondées (naturelles). Notre estimation des émissions liées aux combustibles fossiles (extraction et transport du charbon, pétrole et gaz) est dans la partie haute de l'intervalle de l'IPCC (110 TgCH_4/an). Récemment l'inventaire EDGAR (année de

référence : 2000) a été revu une estimation de ces émissions en hausse de 9% à 98 TgCH₄/an, plus proche de notre estimation que le précédent inventaire (année de référence 1995) a été fournie.

La tendance à long terme des émissions est positive pour les années 1980 (+1.3±0.3 TgCH₄/an) mais négative pour les années 1990 (-1.0±0.2 TgCH₄/an). Ces tendances sont largement contrôlées par l'Eurasie et les régions tropicales et par les émissions liées aux combustibles fossiles et aux décharges (Table 3). L'évolution de ces tendances montre aussi que ce sont surtout les émissions qui contrôlent l'évolution à long terme du taux de croissance du CH₄ et moins les variations de la capacité oxydante de l'atmosphère via OH, si on en croit les résultats de l'inversion préalable de MCF.

La réduction d'erreur, rapport entre l'erreur d'estimation et l'erreur a priori, donne des indications sur la contrainte apportée par les réseau de mesures atmosphériques sur une régions ou pour un processus donné. La réduction d'erreur est plus prononcée quand on agrège les flux géographiquement que lorsqu'on les agrège par processus. Ce résultat peut s'expliquer par le fait que le bilan géographique est directement contraint par les gradients atmosphériques tandis que le bilan par processus dépend des différences de structure spatiale dans les émissions (parfois sur la même région) et des quelques mesures isotopiques. Au total, nous trouvons une réduction d'erreur importante (~50%) pour les zones inondées et les régions non tropicales, une réduction d'erreur significative (~30%) pour la combustion de biomasse et les régions tropicales, et une réduction d'erreur faible à nulle pour la plupart des autres processus individuels. La matrice de variance-covariance a posteriori peut s'interpréter en termes de corrélations d'erreur (Tarantola, 1987). A l'échelle des régions individuelles, on trouve des corrélations d'erreurs négatives pour des processus à l'intérieur d'une même région ou entre deux régions pour un même processus. Par exemple, les erreurs sur les flux de CH₄ des zones inondées de l'Asie du nord sont anti-corrélées avec celles sur le flux des zones inondées de l'Europe ($r=-0.46$), ou encore les erreurs sur les flux de CH₄ des décharges de l'Asie du nord sont anti-corrélées avec celles sur le flux lié aux combustibles fossiles ($r=-0.36$). Ces corrélations indiquent une difficulté du réseau de mesures atmosphériques à séparer les processus individuels régionaux ou les régions elles-mêmes. Toutefois, la détermination d'un niveau de significativité est difficile car ces corrélations ne sont pas facilement associables à un test statistique classique.

Enfin, l'utilisation des observations de ¹³CH₄ a deux effets principaux sur les sources et puits nets de l'inversion : 1/ une augmentation des émissions liées à la combustion de la biomasse (+27%) déjà notée par Miller et al. (2002), et 2/ une réduction de la signature isotopique de la source tropicale de -51.8‰ à -50.4‰, à cause d'une réduction de la signature isotopique des flux de combustion de biomasse (-18.5‰). Les autres signatures isotopiques sont peu affectées, probablement à cause de notre choix de prescrire des incertitudes a priori assez faibles (±2‰). Si on relâche les incertitudes *a priori* sur les signatures isotopiques, les changements apportés par les mesures de ¹³CH₄ sur les flux de CH₄ deviennent faibles car ce sont alors les signatures isotopiques qui sont modifiées, et parfois de façon irréaliste.

Table 3 : Bilan des sources et puits nets de CH₄ pour Bousquet et al. (2006) et pour différentes études antérieures.

period Unit	SOURCES & SINKS						INVERSION	TREND	ISOTOPIC SIGNAT.		IPCC 2001	Fletcher et al.		Wang et al.	Houweling et al.
	1984-2003						SPREAD	1984- 2003	1989-2003		1990s	1998-1999		1994	1993-95
	TgCH ₄ /yr						TgCH ₄ /yr	TgCH ₄ /yr	‰		TgCH ₄ /yr	S2 scenario		TgCH ₄ /yr	TgCH ₄ /yr
	<i>a</i> <i>priori</i>		<i>a</i> <i>posteriori</i>						<i>a</i> <i>priori</i>	<i>a</i> <i>posteriori</i>		TgCH ₄ /yr	‰	Best guess	
TOTAL	497		525	±	8		6	-1,8	-52,8	-51,5	500-600	610		506	505
SOURCE BREAKDOWN															
Total wetlands	150	±	30	147	±	15	9	-0,3	-58,0	-58,0	92-237	227		176	
Swamps	90	±	20	104	±	12	9	0,0	-58,0	-57,9		206 ± 44		149 ± 10	
Bogs and Tundra	60	±	20	43	±	8	3	-0,3	-58,0	-58,1		25 ± 14		28 ± 6	
Rice agriculture	39	±	6	31	±	5	2	-0,1	-63,0	-62,8	25-100	54 ± 17		57 ± 8	
Ruminant animals	90	±	15	90	±	14	2	-0,2	-60,0	-59,9	80-115	91 ± 18		83	
Termites	20	±	4	23	±	4	2	0,1	-70,0	-69,9	20-20	29 ± 18		20 ± 3	
Biomass burning	28	±	10	38	±	7	2	0,2	-19,0	-18,5	23-55	88 ± 18		41	
Biofuel	12	±	4	12	±	4	2	0,0	-37,0	-36,9					
Energy	91	±	14	110	±	13	7	-1,5	-40,4	-40,6	75-109	82 ± 21		77	
Coal & industry	47	±	10	47	±	10	5	-1,8	-37,0	-36,9				30	
gaz	44	±	10	63	±	9	5	0,2	-44,0	-43,9				47	
Landfills	50	±	11	55	±	11	5	-0,9	-55,0	-54,8	35-73	35 ± 14		49	
Ocean	15	±	6	19	±	6	2	0,0	-60,0	-60,0	10-15			4	
REGIONAL BREAKDOWN												S1 scenario	Range		
Non trop. North. hemis.	264	±	30	257	±	8	6	-2,1	-51,7	-51,1		253	-54.1/- 52.6		
North America	77	±	17	72	±	6	3	0,4	-51,3	-50,9		70 ± 9			
Europe	77	±	15	80	±	7	5	-1,5	-52,3	-51,2		70 ± 8			
North Asia	110	±	20	104	±	10	8	-0,7	-52,5	-51,1		113 ± 13			
Tropics	165	±	20	195	±	11	15	-0,6	-51,8	-50,3		276	-51.7 / - 48.5		
South America	35	±	10	40	±	7	14	-0,1	-48,0	-43,3		73 ± 16			
Africa	56	±	13	85	±	9	7	-0,7	-51,2	-49,5		90 ± 17			
Asia	74	±	10	69	±	8	4	0,2	-55,8	-55,4		113 ± 10			
Non trop. South. hemis.	53	±	15	53	±	7	14	0,3	-54,6	-53,9		88 ± 15	-54.9 / - 51.5		
Ocean	15	±	6	19	±	6	2	0,0	-60,0	-60,0	10-15				
NET SOURCE	-12		19											14	
TOTAL SINKS	509		506											492	488
OH	484	±	1	485	±	1	<1	-0.3%/yr	-5,4	-5,4	490-556			458	
Soils	25	±	4	21	±	3	15	0,1	-22,0	-21,9	10-30			34	

5. Variabilités interannuelle et décennale de CH₄

Cette section reprend l'article de Bousquet et al., publié en 2006 dans la revue Nature (copie de l'article à la fin du manuscrit) : Contribution of anthropogenic and natural sources methane emissions variability.

Le taux de croissance atmosphérique de CH₄ (Figure 29) présente de grandes variations interannuelles superposées sur une tendance à long terme décroissante depuis le début des années 1990 (Dlugokencky et al., 1998). De 12 ± 2 ppb/an pendant les années 1980, ce taux de croissance a brusquement décliné en 1992, après un pic en 1991, et est resté bas depuis avec une valeur de 4 ± 4 au cours des 10 dernières années. Le pic de 1991 est attribué à la réduction de la production de OH consécutive à l'éruption du mont Pinatubo aux Philippines en Juin 1991, à cause d'une injection d'aérosols stratosphérique limitant le rayonnement UV dans la troposphère (Dlugokencky et al., 1996). La chute de 1992 est imputée à une réduction des émissions par les zones inondées à cause du refroidissement consécutif à l'éruption (Walter et al., 2001). La chute de l'économie de l'ex-URSS après 1991 est un effet qui a été avancé pour expliquer la tendance à long terme négative observée sur la Figure 29 (Dlugokencky et al., 1994). Les années récentes montrent toutefois de fortes variations interannuelles en 1997-98 et en 2002-03 qui ont été attribuées à l'augmentation des feux de biomasse, surtout en Asie tropicale et dans les régions boréales (Van der Werf et al., 2004 ; Page et al., 2002 ; Simmonds et al., 2005).

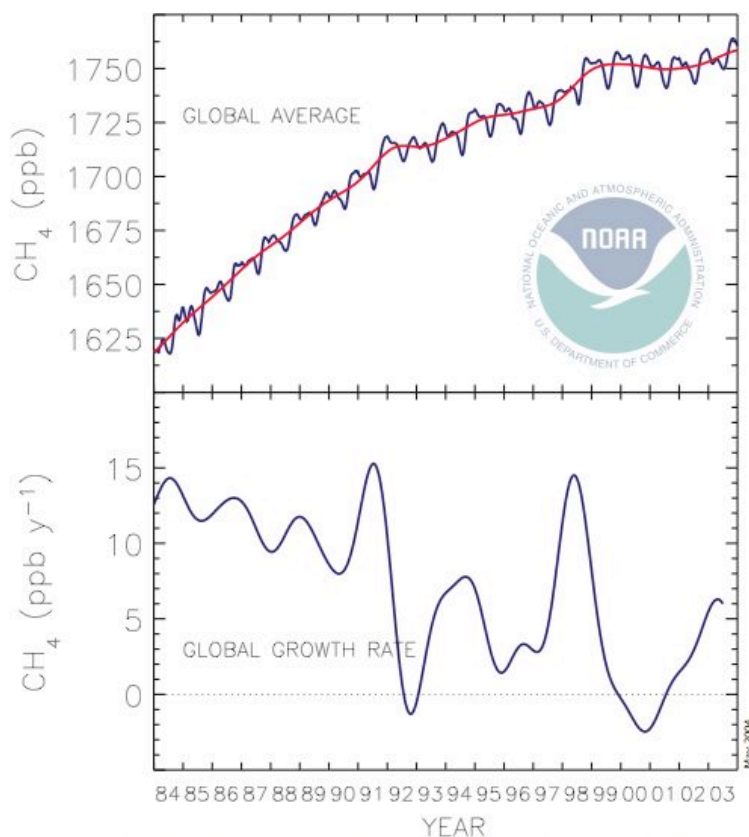


Figure 29 : Evolution de la concentration moyenne de méthane (haut) et du taux de croissance (bas) mondiaux pour la période 1984-2003. D'après www.cmdl.noaa.gov.

Les études menées jusqu'à récemment ne traitaient qu'une partie des processus ou que quelques années mais pas la totalité du cycle du méthane sur les 20 dernières années (Langenfelds et al., 2002 ; Wang et al., 2004, Dentener et al., 2003, Mikaloff-Fletcher et al., 2004). Depuis 2003, j'ai mis en place des collaborations avec les différents expérimentateurs réalisant des mesures de méthane à travers le monde (NOAA, CSIRO, SIL, UC, ...), ainsi qu'avec des équipes modélisant les flux de méthane dus à la combustion de biomasse (G. Van der Werf et al., 2003, 2004) et reconstituant les surfaces inondées par satellite (Prigent et al., 2001). Ces collaborations m'ont permis de faire une synthèse de l'évolution régionale et par processus des émissions de CH₄ par inversion du transport et de la chimie atmosphérique depuis 1984 (Bousquet et al., 2006). Cette synthèse est la première inversion qui couvre l'ensemble de la période de mesures et l'ensemble des processus contribuant à émettre du méthane dans l'atmosphère.

- Bilan géographique

A l'échelle hémisphérique, la plupart de la variabilité interannuelle est expliquée par les tropiques (Figure 30).

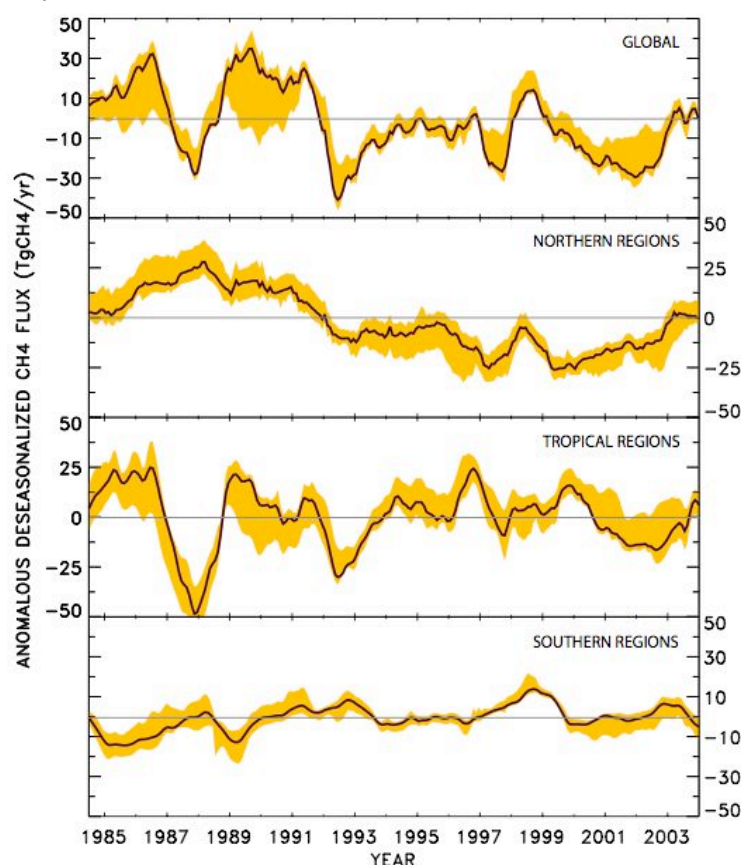


Figure 30 : Anomalie désaisonnalisée mondiale et par bandes de latitude (régions nord, tropiques, régions sud) des émissions de CH₄ (TgCH₄/an). La variabilité interannuelle est principalement déterminée par les tropiques tandis que les régions nord déterminent la tendance à long terme, en baisse depuis le début des années 1990. D'après Bousquet et al., (2006).

Les régions nord montrent des variations moins importantes avec systématiquement moins d'émissions dans les années 1990 que dans les années 1980, sauf en 1997-98 et 2002-2003. Les années 1987-88, 1991-92, 1997-98 et 2001-02 correspondent à une plus faible destruction par OH du méthane atmosphérique. Dans l'inversion, un effet compensatoire existe entre les variations de OH optimisées à l'aide des observations de MCF (Bousquet et al., 2005) et les émissions de CH₄, car la somme des deux doit équilibrer le taux de croissance atmosphérique. Par conséquent, une partie de la variabilité trouvée dans les émissions pourrait être un biais dû à une variabilité irréaliste de OH. Dans le cas extrême où OH est maintenu constant d'une année sur l'autre, la variabilité des émissions est réduite de 50%, surtout dans les années 1980 quand les variations de OH sont les plus fortes dans le scénario de base. Cependant, si l'amplitude de la variabilité des émissions de CH₄ dépend de façon critique de celle des OH, la phase des variations est peu beaucoup plus robuste dans les différentes inversions. A l'échelle régionale, l'affectation de la variabilité interannuelle un processus particulier est difficile compte tenu de la densité faible et inégale du réseau de mesures et du petit nombre de mesures isotopiques. Des corrélations d'erreur négatives existent entre les régions nord pour différents processus indiquant une difficulté pour le réseau de séparer les processus à l'intérieur des régions. La partition géographique (tous processus confondus) est cependant plus robuste et nous allons la présenter. Les variations interannuelles des régions nord sont dominées par l'Asie du Nord, bien que l'Amérique du nord et l'Europe présentent aussi des variations significatives (Figure 31).

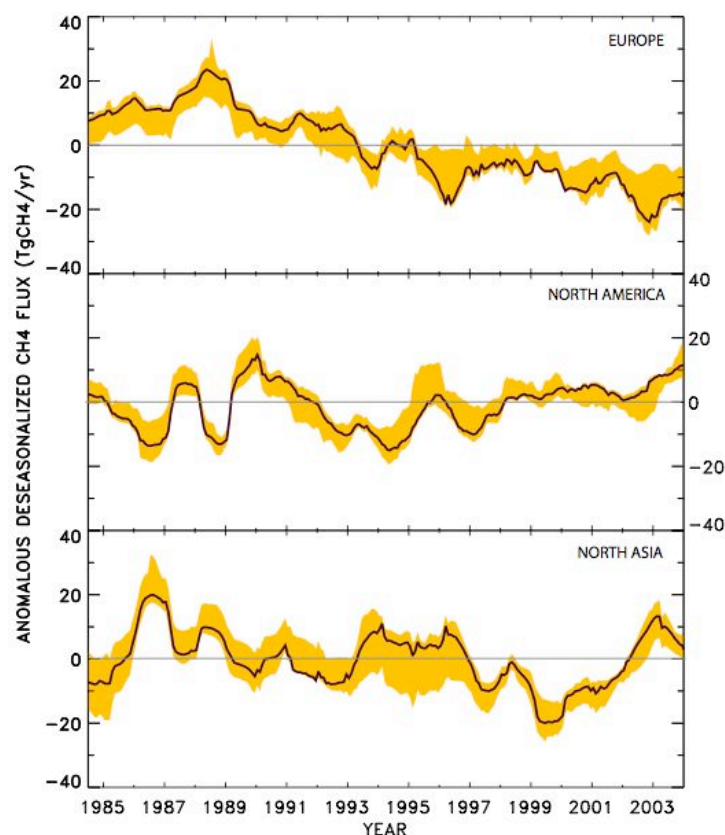


Figure 31 : Anomalie désaisonnalisée des émissions de CH₄ pour les trois zones de la région nord : Europe, Amérique du Nord et Asie du Nord (TgCH₄/an). D'après Bousquet et al., (2006).

Sur la période 1984-2003, l'Europe et l'Asie du nord présente une tendance négative de -1.5 ± 0.3 TgCH₄/an et -0.7 ± 0.4 TgCH₄/an respectivement, tandis que l'Amérique du nord présente une petite tendance positive de $+0.4 \pm 0.2$ TgCH₄/an. La tendance est continue en Europe depuis 1989 avec une réduction cumulée de 25TgCH₄ des émissions sur 15 ans. Ce n'est pas le cas pour les émissions de l'Asie du nord qui augmente fortement après 1999, comme vu précédemment et retrouvent, en 2003, leur niveau des années 1980. En Europe, la baisse des émissions est surtout due aux émissions liées aux combustibles fossiles, aux décharges et au ruminants, qui représentent 82% des émissions européennes dans notre étude.

-Bilan par processus

Au niveau des processus, les zones inondées ont la plus forte contribution aux variations interannuelles des émissions avec ± 12 TgCH₄/an ($\sim 70\%$). Les feux de biomasse contribuent nettement moins avec ± 3.5 TgCH₄/an ($\sim 15\%$) sauf pour la période 1997-98. Ce résultat n'est pas en accord avec des études précédentes qui trouvaient une contribution prépondérante des feux de biomasse (Langenfeld et al., 2002, REF). La comparaison avec un modèle simple des flux de méthane dûs aux zones inondées, basé sur Fung et al., (1991), et forcé par les analyses du centre européen et par les zones inondées reconstituées par satellite par Prigent et al. (2001) montre un bon accord de phase et d'amplitude avec nos résultats (Figure 32). Pendant la période 1993-2001, les émissions calculées par le modèle de flux ont une tendance décroissante prononcée (-2.5 TgCH₄/an) principalement causée par une forte baisse des surfaces inondées reconstituées par satellites ($-1.1\%/an$) dans les tropiques. L'inversion produit aussi une tendance négative (surtout après 1999) mais plus faible (-0.6 TgCH₄/an). Des surfaces de zones inondées en baisse pourraient refléter les conditions de sécheresse récurrentes observées dans les tropiques après 1990 (Uppala et al., 2004) et plus au nord depuis 1999 (Hoerling et al., 2003). Les anomalies de feux de biomasse ont été comparées avec celles calculées par Van der Werf et al., (2004) à partir de reconstructions satellites des zones de feux et des surfaces brûlées qui ont été intégrées dans un modèle de végétation pour calculer des émissions. Avant 1996, les reconstructions satellites ne sont pas disponibles. Nous avons alors utilisé les mesures atmosphériques de CO pour reconstruire les anomalies de feux de biomasse (Bousquet et al., 2006). L'accord avec l'inversion est bon en phase et amplitude. L'inversion utilisant les mesures de ¹³CH₄ donne l'estimation de l'anomalie de 1997-98 la plus proche de celle de Van der Werf mais avec une avance de phase de 6 mois environ (Figure 32).

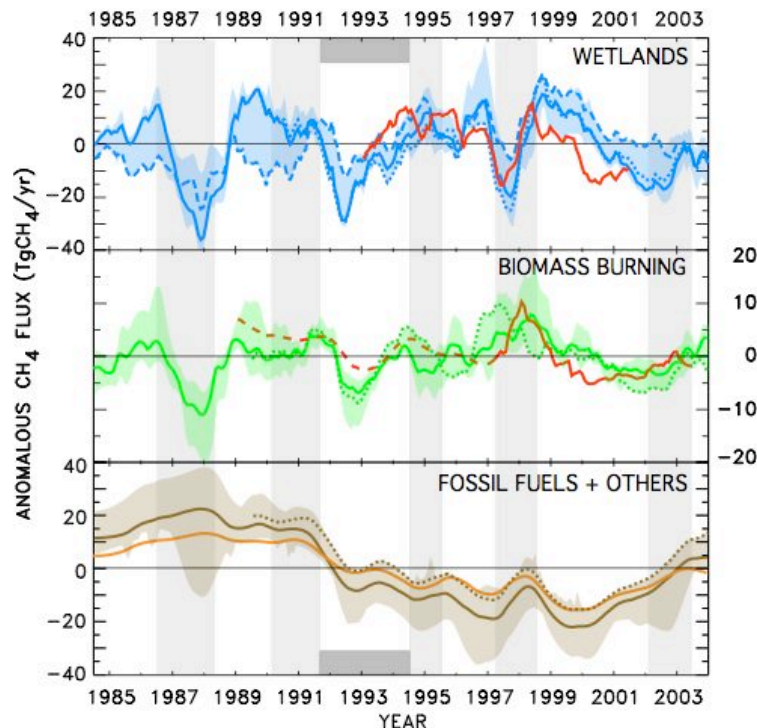


Figure 32 : Anomalie désaisonnalisée des émissions de CH_4 pour trois regroupements de processus zones inondées naturelles et rizières, combustion de la biomasse, et autres dont carbone fossile. (TgCH_4/an). Les bandes grisées figurent les événements El Niño et les bandes grisés sombres la période post-Pinatubo. D'après Bousquet et al., (2006).

Les autres types d'émissions, surtout anthropiques, présentent des variations temporelles plus lisses (Figure 32). Les émissions anthropiques ont une nette tendance négative après 1992 ($-1.0 \pm 0.2 \text{ TgCH}_4/\text{an}$) qui explique la baisse du taux de croissance atmosphérique dans cette période, tandis que les concentrations de OH diminuent légèrement. Cette tendance est surtout sensible dans les régions nord et pour les émissions liées au carbone fossile et aux décharges. Ce résultat peut être expliqué par la chute de l'économie soviétique au début des années 1990. Il est compatible 1/ avec des estimations récentes faites dans l'inventaire EDGAR3.2 pour la période 1990-95 (Olivier et al., 2001), et 2/ avec la mise en place de plan de réduction des émissions par les décharges dans plusieurs pays développés comme les USA (EPA, 2005). Cependant, après 1999, nous trouvons que les émissions anthropiques repartent à la hausse, surtout en Asie du Nord. Ce résultat pourrait s'expliquer par le boom de l'économie chinoise après la crise de 1997-98 qui conduit notamment à une accélération de la production de charbon dans ce pays qui a l'une des plus forte réserve mondiale de ce combustible. Sans une baisse simultanée des émissions dues aux zones inondées en liaison avec des conditions de sécheresse récurrentes dans les régions nord (Hoerling et al., 2003), le taux de croissance ne serait probablement pas resté bas depuis 1999. Cette compensation entre zones inondées et émissions fossiles, si elle se vérifie, suggère que la pause dans l'augmentation du méthane dans l'atmosphère est seulement temporaire.

-Analyse de deux événements majeurs

Les variations de taux de croissance du méthane ont été marquées par 2 événements majeurs, en 1991-93 et en 1997-98. La période 1991-93 est particulièrement complexe car elle est marquée par l'éruption du mont Pinatubo aux Philippines en Juin 1991 et par l'effondrement de l'économie soviétique. Nous trouvons une réduction de 5% des OH tropicaux sur cette période. Ce résultat est compatible une baisse de l'activité photochimique consécutive à la baisse du rayonnement UV dans la troposphère due à l'augmentation des teneurs en aérosols stratosphériques. En termes d'anomalies, cette réduction de OH correspond à une source additionnelle de CH_4 de $+26 \text{ TgCH}_4$ sur la période. Pour les émissions, nous trouvons une forte baisse des émissions dues aux zones inondées sur la période, centrée sur 1992 ($-24 \pm 6 \text{ TgCH}_4$). Cette baisse est cohérente avec le refroidissement de l'hémisphère nord consécutif à l'éruption et avec des estimations par un modèle de processus (Walter et al., 2001). Les émissions anthropiques diminuent aussi avec une amplitude (-10 TgCH_4), du même ordre de grandeur que celui trouvé par des études précédentes (Dlugokencky et al., 2001, 2003). Les émissions dues aux feux de biomasse sont aussi en baisse mais moins significative (-5 TgCH_4).

En 1997-98 s'est produit le plus important événement El Niño jamais enregistré. Des conditions sèches en Asie tropicale et boréale ont causé une intensification des feux de biomasse dans ces régions (Van der Werf et al., 2004). Nous trouvons une anomalie d'émissions dues aux feux de $8 \pm 2 \text{ TgCH}_4$ dans les tropiques et $2 \pm 1 \text{ TgCH}_4$ dans les régions nord, en assez bon accord avec l'estimation mondiale de 11.5 TgCH_4 de Van der Werf et al. (2004). Une diminution des concentrations de OH, possiblement liée à l'augmentation des émissions de CO ou d'autres composés organiques volatils, contribue à l'augmentation du taux de croissance de CH_4 pour $+26 \text{ TgCH}_4$ sur la période. Dans le même temps, les émissions dues aux zones inondées sont stables en moyenne sur la période. Cependant, cette stabilité est en fait le résultat d'une baisse des émissions dans les régions nord en 1997 ($-9 \pm 5 \text{ TgCH}_4$) suivie d'une augmentation en 1998 dans les régions sud ($+10 \pm 5 \text{ TgCH}_4$). Ces variations d'émissions dues aux zones inondées sont cohérentes avec des conditions climatiques plus ou moins sèches sur ces régions (Uppala et al., 2004).

-Source de méthane par les plantes

Une étude récente par Keppler et al. (2006) suggère que le méthane peut être produit par les plantes à l'aide d'un processus aérobie restant à identifier mais dans lequel la pectine pourrait jouer un rôle important. A partir de mesures en chambre sur différentes espèces de plantes, ces auteurs extrapolent une source mondiale de méthane comprise entre 62 et 236 TgCH_4 . Une telle source, si elle existe remet en cause les bilans de méthane présentés depuis 15 ans. Nous avons cherché à savoir si cette source pouvait s'intégrer dans le bilan de CH_4 fait précédemment. Nous avons utilisé les facteurs d'émissions de Keppler et al. (2006) dans le modèle de végétation ORCHIDEE (Krinner et al., 2005). La structure spatiale des émissions est basée sur l'indice foliaire (LAI) et la valeur mondiale des émissions trouvée ainsi est de 150 TgCH_4 , correspondant à la valeur moyenne de l'étude de Keppler et al. L'inversion réalisée en incluant cette source additionnelle produit un ajustement aux station quasiment identique à celui des autres scénarios. Cependant, la source due aux plantes est réduite de 30% dans l'inversion ($\sim 100 \text{ TgCH}_4$), surtout dans la zone

tropicale. La variation interannuelle des émissions optimisées est importante (± 10 TgCH₄/an), surtout dans les années 1980. Un résultat important est que l'inclusion de la source due aux plantes modifie peu les variations interannuelles des émissions liées aux zones inondées et aux feux de biomasse dans les années 1990 (Figure 33), même si elle les modifie plus significativement dans les années 1980. On a vu que pour la décennie 1980, moins de stations étaient disponibles pour contraindre l'inversion et que des questions se posaient sur les fortes variations de OH trouvées à l'aide des observations de MCF (Bousquet et al., 2005).

Sur la période 1984-2003, les variations des émissions anthropiques sont lissées par l'adjonction de la source due aux plantes qui prend une bonne partie des variations interannuelles des émissions anthropiques (Figure 33).

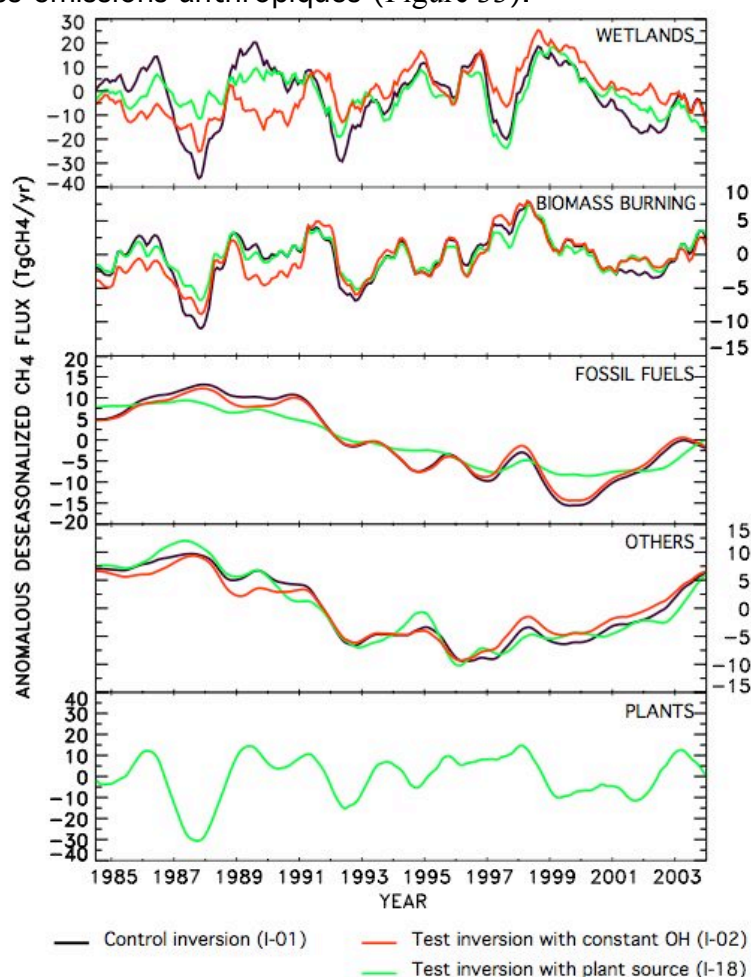


Figure 33 : Anomalie désaisonnalisée des émissions de CH₄ pour quatre regroupements de processus (zones inondées naturelles et rizières, combustion de la biomasse, carbone fossile, et autres) et pour une possible source due aux plantes (TgCH₄/an). Noir : inversion de référence. Rouge : inversion avec OH constant d'une année sur l'autre. Vert : inversion avec une source due aux plantes. D'après Bousquet et al., (2006).

Ces deux types de sources sont plus diffuses que les émissions liées aux zones inondées et aux feux de biomasse, ce qui pourrait expliquer un transfert plus facile de

la variabilité entre elles et le peu d'effet de la source sur aux plantes (dans les années 1990) sur les zones inondées et les feux de biomasse. Cependant, il faut noter que les tendances à long terme des émissions anthropiques restent proches du scénario de référence, montrant une bonne stabilité à ce test, malgré la diminution de leur variabilité interannuelle. Au final, le réseau atmosphérique actuel ne permet pas de confirmer ou d'infirmer l'hypothèse d'une forte source de CH₄ par les plantes.

IV. Limitations et erreurs des inversions atmosphériques

Les inversions atmosphériques ont montré depuis plus de 20 ans leur capacité à apporter des contraintes sur des cycles biogéochimiques majeurs du système Terre-océan-atmosphère, pour des échelles spatiales allant du mondial au régional. Toutefois, un certain nombre de limitations sont apparues à mesure que les techniques se développaient. Par ailleurs, comme les inversions atmosphériques correspondent à la recherche d'une solution optimale, elles sont particulièrement sensibles à toutes les erreurs systématiques qui seront automatiquement compensées par une modification (erronée) des flux estimés. Dans ce chapitre, je me propose de faire un tour d'horizon des principales limitations et erreurs systématiques existantes dans les inversions au travers de travaux auxquels j'ai participé ou encadré. Je passerai successivement en revue, le problème du manque d'observations, les erreurs de modélisation, l'erreur d'agrégation, les erreurs liées aux choix des stations et à la sélection des données, et les contraintes additionnelles.

1. Manque de données

Historiquement, la première limitation qui est apparue dans les inversions atmosphériques (et qui est toujours d'actualité) est le manque d'observations atmosphériques pour contraindre les sources et puits à optimiser. Même avec des systèmes avec plus d'observations que de flux inconnus, l'inégale répartition des stations à la surface du globe, et la possible redondance du contenu en information, impliquent que de nombreuses régions du globe influencent peu ou pas les mesures entrant dans la procédure inverse. C'est le cas par exemple des régions tropicales, que ce soit pour le CO_2 ou le CH_4 . J'ai en particulier montré qu'on ne pouvait ni confirmer ni infirmer l'hypothèse d'une forte source de méthane par les plantes car sa trace au niveau du petit nombre de stations de mesures du méthane dans les tropiques ne se distingue pas suffisamment de celle des autres sources. Dans l'étude de Gurney et al. (2002) sur le CO_2 , l'incertitude d'estimation, qui traduit la contrainte apportée par le réseau de mesures reste assez élevée à l'échelle régionale sur une base de temps de résolution annuelle.

La thèse de Claire Carouge sur l'optimisation des flux européens de CO_2 a été pour notre équipe l'occasion de réaliser une première inversion à l'échelle du modèle en utilisant une version zoomée sur l'Europe de LMDZ ($0.5^\circ \times 0.5^\circ$ dans le zoom). Le réseau de mesures continues européen de 2001, année de référence de la thèse, comportait 10 stations. Une analyse des variances de la matrice **B** après optimisation (chapitre 1) nous a montré que la réduction d'erreur imposée par le réseau, pourtant le plus dense au monde à l'heure actuelle, restait faible ($<25\%$) et cantonnée au voisinage immédiat des stations (figure 34), malgré la mise en place de corrélations d'erreur sur les flux *a priori* (voir §5). L'extension planifiée du réseau améliore un peu la situation en accroissant la zone de réduction d'erreur autour de 15% à presque toute l'Europe de l'Ouest (sauf Espagne et Italie). Cette réduction d'erreur reste toutefois assez faible et pose le problème de la diffusion de l'information contenue dans les données atmosphériques (voir §5).

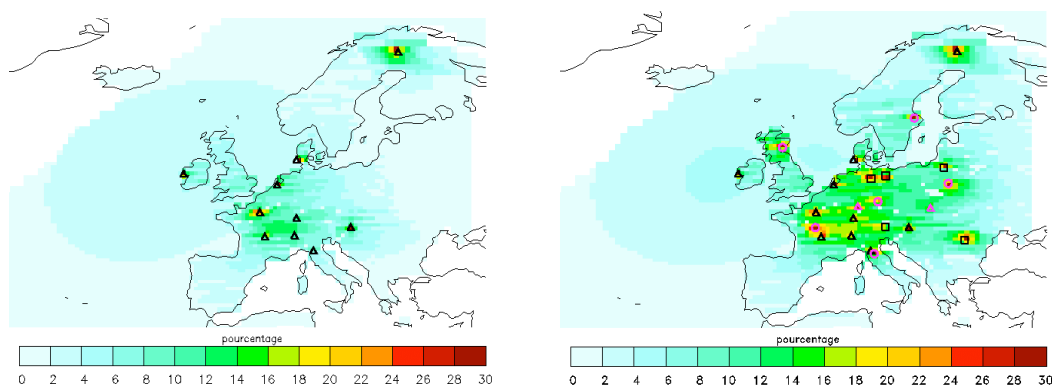


Figure 34 : Cartes des réductions d'erreur réalisée à l'aide d'une inversion à l'échelle du modèle pour l'année 2001 avec LMDZ zoomé sur l'Europe (Thèse Claire Carouge). La réduction d'erreur est définie comme le rapport, exprimé en %, entre l'erreur d'estimation (a posteriori) et l'erreur a priori. Gauche : réseau actuel. Droite : réseau futur. D'après Carouge (Thèse, 2006).

2. Erreurs systématiques de modélisation

Les modèles de transport atmosphérique mondiaux reproduisent généralement bien les processus d'advection grande échelle. Ils ont prouvé leur capacité à modéliser le CO₂ pour un réseau de mesures marin ou côtier, tel qu'il l'était jusqu'à la fin des années 1990. Par contre, en milieu continental, ils apparaissent soumis à des erreurs systématiques qui sont liées le plus souvent à des problèmes de résolution spatiale ou aux paramétrisations utilisées notamment pour représenter les processus de mélange sous maille sur la verticale (convection, diffusion turbulente).

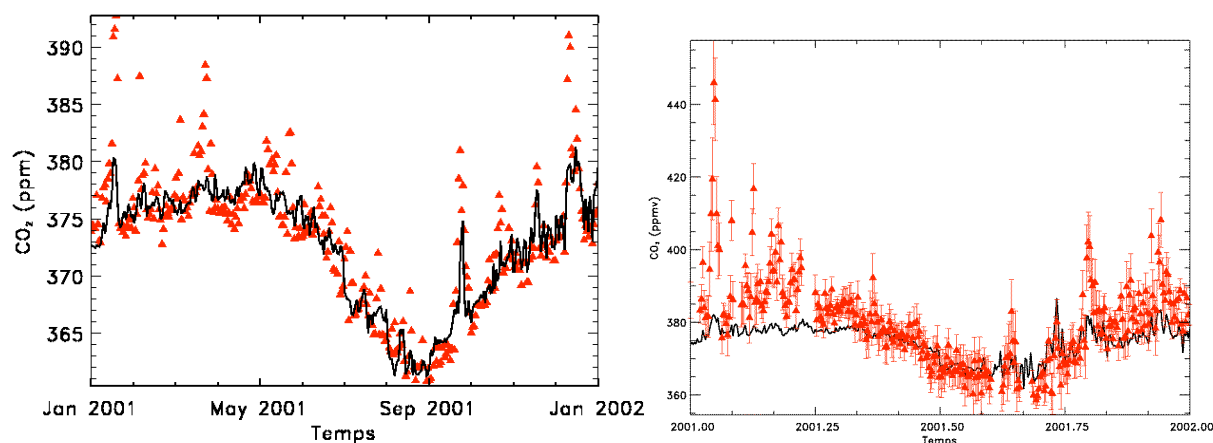


Figure 35 : Gauche : comparaison modèle/mesures des concentrations de CO₂ à la station de Mace-Head (Irlande) pour un scénario non optimisé de flux pour l'année 2001. Droite : comparaison modèle/mesures des concentrations de CO₂ à la station de Cabauw (Hollande) pour un scénario non optimisé de flux. D'après Carouge (Thèse, 2006).

Par exemple, les concentrations horaires de CO₂ simulées par des modèles mondiaux avec des résolutions typiques de 3°x3° aux stations européennes comme celle de

Mace-Head (Figure 35) font apparaître un bon phasage des événements synoptiques mais une sous estimation des pics de CO_2 , qui est parfois supérieure aux gradients entre stations contraignant les inversions. Ces différences sont attribuables soit à des émissions de surface mal représentées soit à une mauvaise représentation du transport atmosphérique. A la station côtière de Cabauw (Hollande), les émissions couramment utilisées ($1^\circ \times 1^\circ$, valeur constante annuelle) ne peuvent pas représenter les nombreuses sources locales proches de cette station située dans une zone de très forte densité de population (Figure 35). On observe de très forts ($>40\text{ppm}$) pics de CO_2 et une teneur de fond élevée en hiver fortement sous-estimés par le modèle (LMDZ dans ce cas). Elles sont de plus probablement amplifiées par une mauvaise représentation du mélange dans la couche limite. En effet, la plupart des modèles apparaissent trop diffusifs la nuit dans la CLA continentale. Les forts gradients de CO_2 observés en surface pendant la nuit dus à la covariance des émissions (respiration et fossiles) et d'une couche de mélange peu épaisse, sont trop lissés par les modèles, ce qui conduit à une sous estimation du cycle diurne par les modèles mondiaux comme pour la station continentale rurale de Heigenytsal en Hongrie (Figure 36). De telles différences, si elles sont dues à des problèmes de représentation du transport atmosphérique, se traduisent directement en biais dans les flux inversés. La difficulté de représentation du cycle diurne et l'amélioration relative des résultats quand on utilise des moyennes journalières nous ont conduit à choisir la base de temps journalière pour réaliser l'inversion européenne à haute résolution (Thèse C. Carouge).

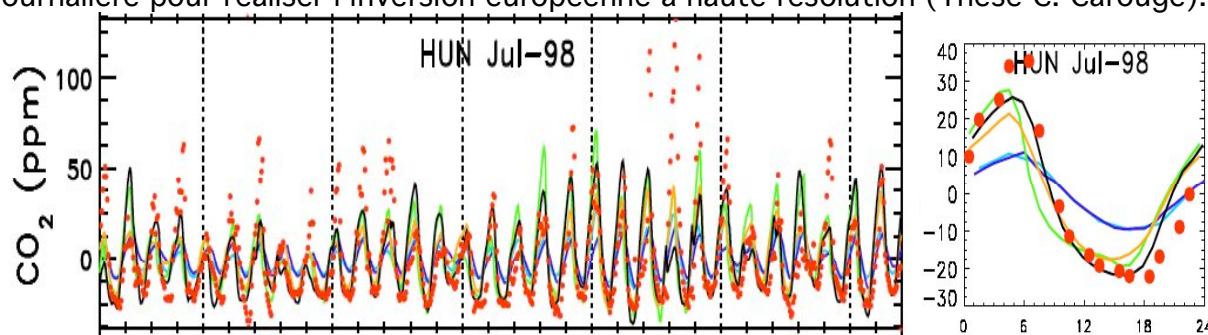


Figure 36 : Gauche : Concentration horaire de CO_2 à la station hongroise de Heigatsal pour le mois de Juillet 1998 (ppm) pour cinq modèles de transport. Droite : Cycle diurne moyen en ppm (échelles différentes). Les données sont en rouge. D'après Geels et al., (2006).

Historiquement, les stations continentales de mesure se sont installées loin des sources, et en particulier en montagne afin d'échantillonner un air représentatif d'une plus grande zone. La topographie des modèles mondiaux est fortement lissée à cause de la faible résolution horizontale. Ainsi la station de SCH située à 1205 m d'altitude se trouve à environ 700 m dans le modèle LMDZ à basse résolution. Si on échantillonne le modèle en surface on est donc trop bas par rapport à la réalité. Si on échantillonne à l'altitude réelle de la station, on est trop haut (Figure 37). J'ai travaillé à l'optimisation du niveau d'extraction des modèles pour les stations de montagne. A l'aide d'une procédure automatique minimisant la distance du modèle aux observations de CO_2 , nous avons pu trouver un niveau moyen optimal pour ces stations. Ce niveau se trouve entre l'altitude réelle de la station et le sol dans le modèle (Figure 38). Ce problème peut être classé dans la catégorie plus large des erreurs de représentativité

dues à la comparaison de sorties de modèles donnant une concentration moyenne pour une boîte avec des mesures ponctuelles en temps et en espace.

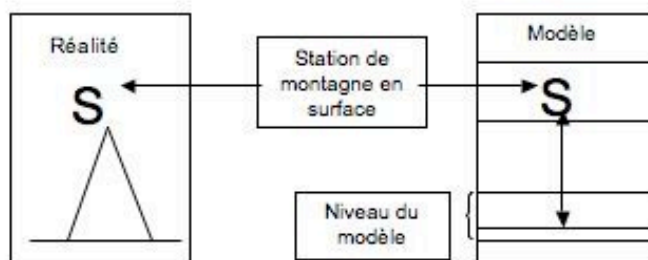


Figure 37 :Schéma du problème de topographie d'un modèle et son impact sur la représentation dans le modèle d'une station de surface en montagne. D'après le stage d'Olivia Leroy, 2006.

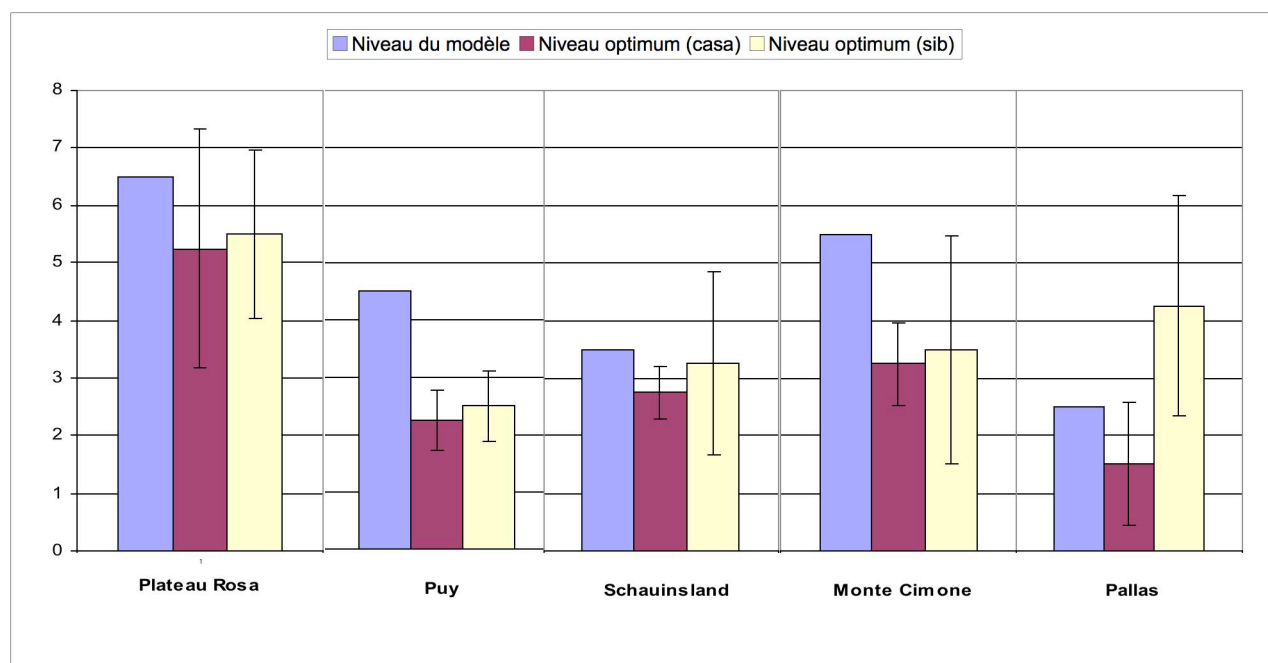


Figure 38 : Détermination du niveau optimum pour 5 stations de montagne avec deux modèle des végétation CASA et SIB. Bleu : niveau correspondant à l'altitude réelle de la station. Violet : Niveau optimisé avec CASA. Jaune : Niveau optimisé avec SIB. Les incertitudes ont été déterminées à partir des niveaux saisonniers.

Dans un travail récent d'intercomparaison de modèles mondiaux et méso échelle, Geels et al. font les cinq recommandations suivantes qui synthétisent et étendent les remarques précédentes : 1/ les stations proches du niveau de la mer sont préférables aux stations de montagne qui sont difficiles à représenter dans des modèles à faible résolution spatiale, 2/ Au niveau de la mer, seules les données de l'après midi correspondant à une couche de mélange maximale sont exploitables car les modèles représentent mal les données nocturne associées à de fortes accumulations, 3/ la simulation d'observations faites à quelques centaines de mètres du sol (hautes tours)

est beaucoup plus facile que lorsque les données sont recueillies en surface, 4/ la représentation par les modèles des moyennes journalières observées calculées à partir des mesures de jour seulement est meilleure que pour les données horaires, et 5/ étant données les limitations précédentes, les modèles mondiaux semblent difficiles à utiliser pour l'optimisation des flux de CO₂ continentaux à l'échelle des pays.

Comment améliorer notre connaissance des erreurs systématiques de modélisation ? L'approche la plus couramment utilisée est d'utiliser des traceurs dont les sources et puits sont supposées bien connues et de comparer les sorties du modèle à des observations de ces traceurs. On peut ainsi séparer les effets du transport et des émissions. Deux traceurs ont été utilisés principalement dans ce sens (pour le CO₂) : le radon-222 et l'hexafluorure de soufre (SF₆). On a aussi vu l'utilisation du méthylchloroforme pour contraindre les OH nécessaires à l'optimisation des émissions de CH₄. Le radon-222 est un gaz radioactif de temps de vie de 3.8 jours quasiment exclusivement émis par les surfaces continentales et de façon homogène au premier ordre. Il est utilisé pour contraindre les échanges de gaz au-dessus des terres émergées. Le SF₆ est un gaz émis lors de la production d'électricité qui est utilisé pour contraindre le transport inter-hémisphérique et les échanges troposphère-stratosphère. J'ai participé aux intercomparaisons modèles/modèles et modèles/mesures du projet européen EVERGREEN pour ces deux traceurs (Bergamaschi et al., 2006b).

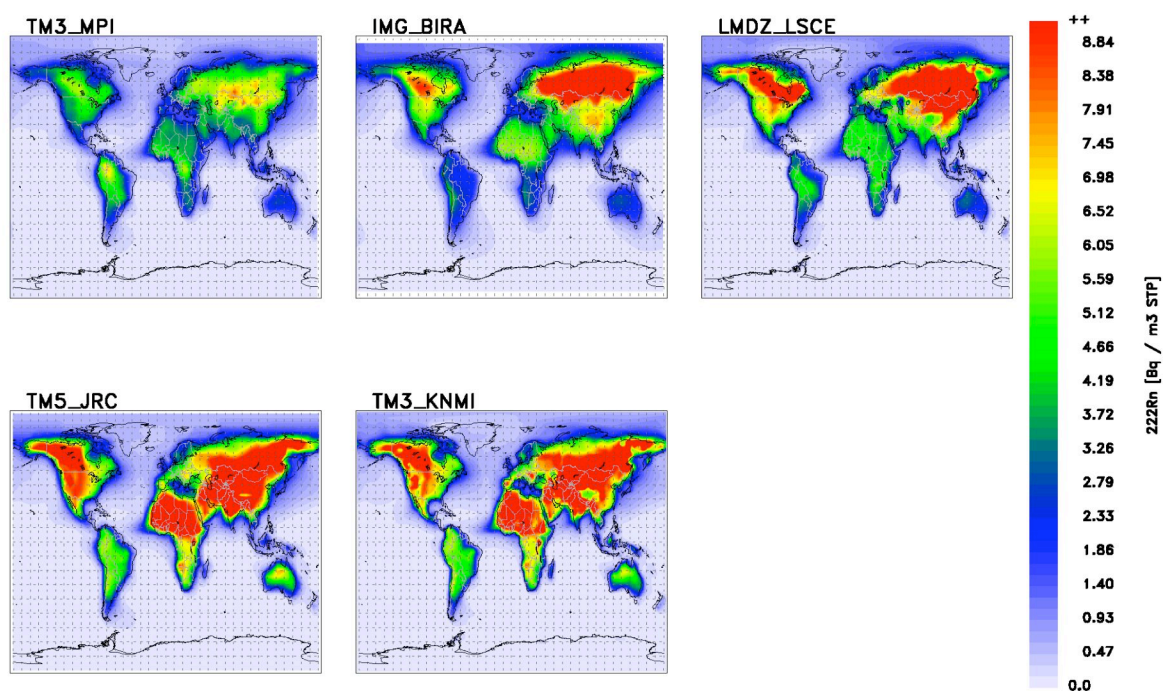


Figure 39 : Carte de la concentration de radon-222 en surface en décembre 2001 et pour 5 modèles de transport. D'après le rapport du projet européen EVERGREEN (Bergamaschi et al., 2006b).

A titre d'exemple, les différences d'accumulation du radon en surface en décembre 2001 sont représentées sur la Figure 39. En termes de variations temporelles aux

stations, la comparaison des modèles avec les données horaires de radon-222 à SCH donne des résultats mondialement satisfaisants mais avec une sous-estimation de certains pics nocturnes déjà notée précédemment et parfois une surestimation si le modèle est échantillonné trop bas en altitude pour les stations de montagne (Figure 40). Les résultats concernant SF6 sont plus mitigés à cause d'incertitudes encore grandes sur les observations et de la possibilité de l'existence de sources non prises en compte dans les inventaires (Rivier et al., 2006).

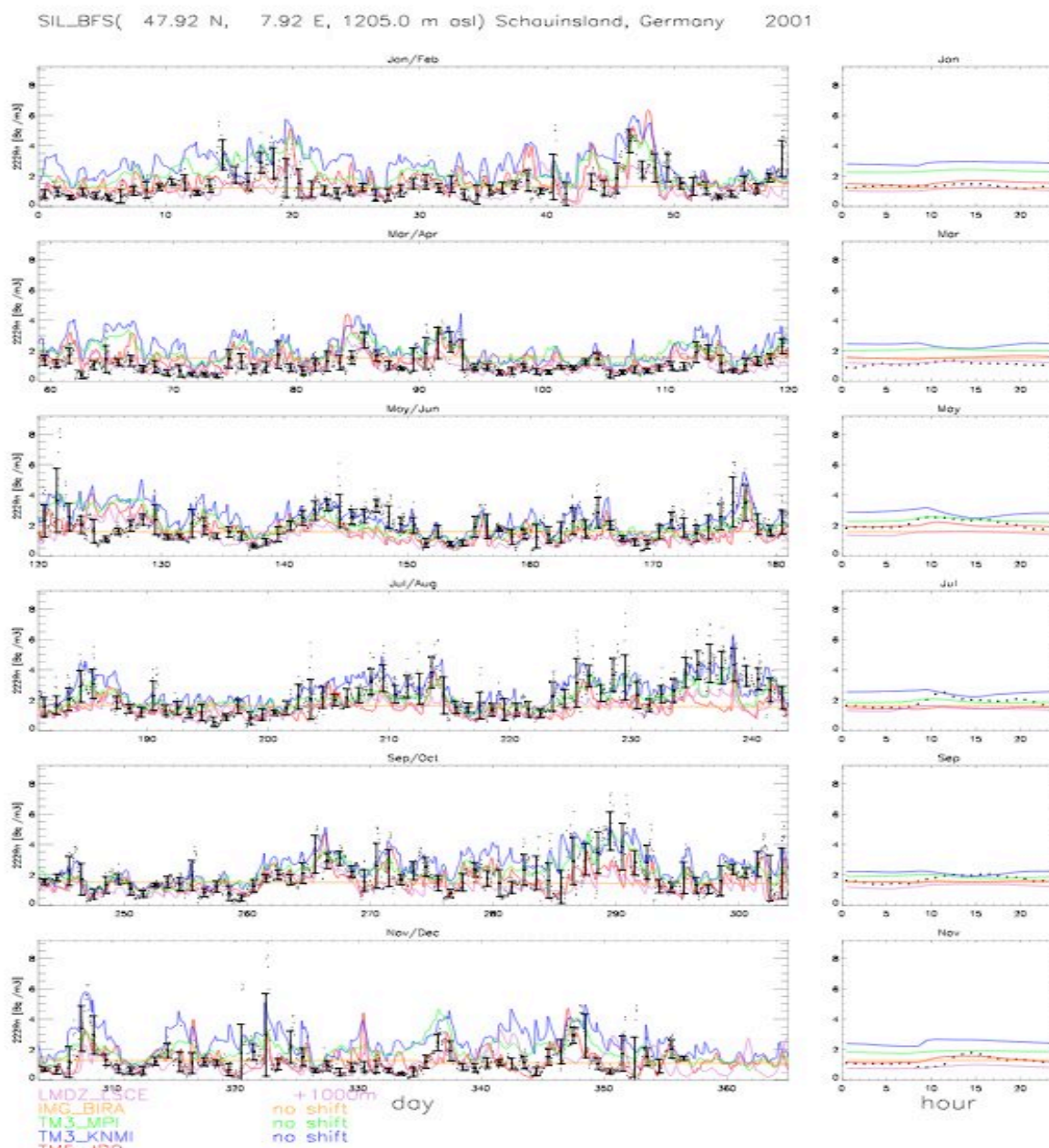


Figure 40 : Comparaison modèle/données pour le radon-222 à la station de Schauinsland (Allemagne) pour cinq modèles et des sorties horaires. D'après les rapports du projet européen EVERGREEN (Bergamaschi et al., 2006b).

Pour LMDZ, le développement d'un schéma de couche limite sèche, basé sur la paramétrisation de Mellor et Yamada pour la diffusion turbulente petite échelle et sur un schéma non local de type flux de masse pour les mouvements méso-échelle, devrait améliorer la dynamique de la couche limite dans ce modèle (Hourdin et al., 2002). Dans ce schéma, on représente la convection par une cellule avec un panache montant (thermique) alimenté par de l'air instable issu de la surface et compensé par un mouvement descendant. J'ai mis en oeuvre cette version du modèle à l'aide d'Abderrahmane IDELKADI au LSCE et les premiers résultats obtenus pour le radon sont encourageants (Figure 41) même si le coup en calcul augmente fortement. Par rapport à la simulation de contrôle, l'amplitude des cycles diurnes du radon-222 est bien mieux représentée avec la nouvelle version de couche limite (MY+Thermiques) qu'avec l'ancienne version. L'augmentation de la résolution verticale du modèle joue aussi un rôle significatif.

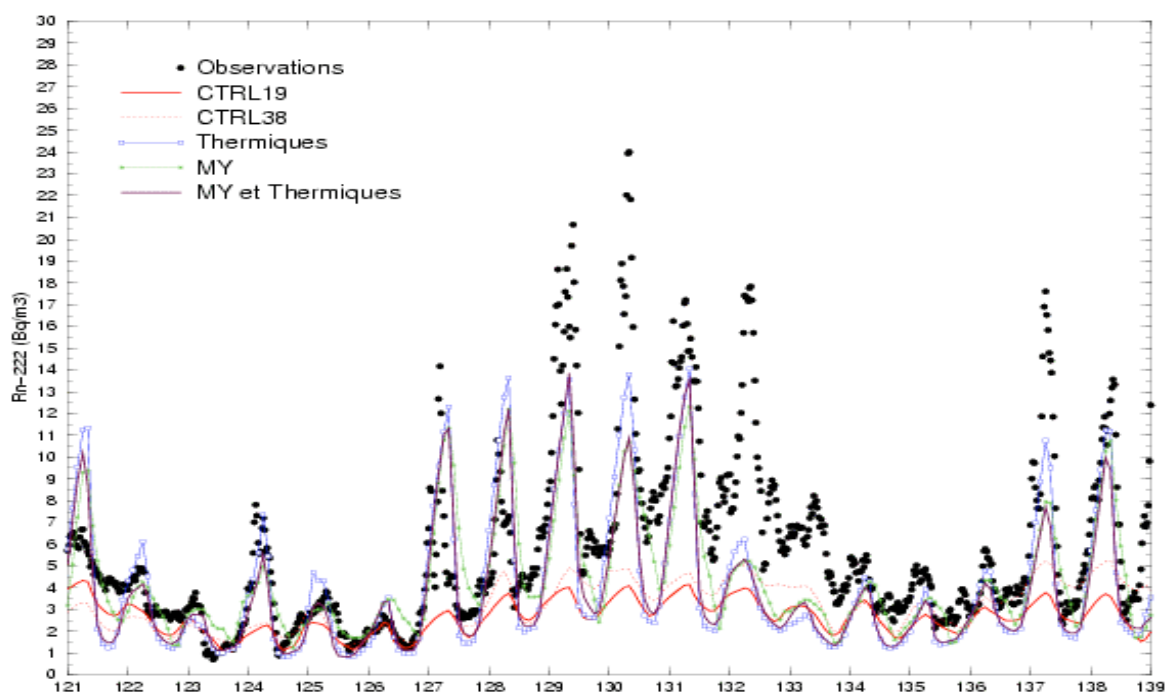


Figure 41 : Concentrations horaires de radon-222 simulées par différentes versions de la couche limite de LMDZ pour le mois de Mai 2001 à la station de Heidelberg (Allemagne). D'après A. Idelkadi (pers. Com.).

L'étape suivante dans l'utilisation de traceurs proxy du transport atmosphérique est de les intégrer aux schémas d'inversion afin de contraindre directement des paramètres du transport atmosphérique. Ces paramètres peuvent être des coefficients de diffusion turbulente ou des facteurs homothétiques dans les schémas en flux de masse. Ce travail nécessite l'utilisation d'un modèle adjoint explicite du modèle de transport atmosphérique pour calculer les sensibilités du transport à ces paramètres et mettre à jour les trajectoires des concentrations. Des prémices d'une telle méthode ont déjà été testées sur l'analyse d'événements synoptiques (REF HESS) mais pas de façon systématique dans les inversions atmosphériques. La systématisation de la méthode 4D-VAR devrait faciliter un tel travail (Chevallier et al.,

2005). C'est un beau sujet de recherche pour les années à venir compte tenu de l'importance des erreurs en milieu continental.

3. Erreur d'agrégation

La plupart des inversions réalisées à ce jour ont utilisé un regroupement des flux sur de grandes régions avant inversion. Dans ce cas, seul un coefficient par région est optimisé à chaque pas de temps. Cela revient à supposer des corrélations égales à un entre les pixels composant chaque région. Plus on regroupe les pixels, plus le contenu en information des observations sera grand pour chaque région, et plus l'erreur d'estimation retournée par l'inversion sera faible. A contrario, le regroupement des pixels fige la distribution spatiale à l'intérieur d'une région. On augmente ainsi une erreur appelée erreur d'agrégation (Figure 42) par Kaminski et al. (2001). L'erreur d'agrégation peut être fortement limitée si on résout les flux à l'échelle du modèle à condition toutefois de pouvoir définir des corrélations d'erreur (voir §5). Peylin et al (2001) ont développé l'idée qu'un optimum existe peut-être et que l'optimisation des flux sur un grand nombre de petites régions permettrait de limiter l'erreur d'agrégation tout en évitant la nécessité d'introduire des corrélations d'erreur.

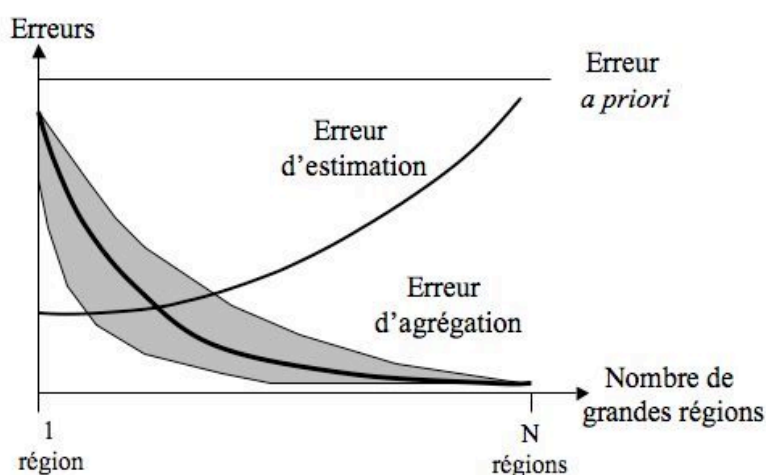


Figure 42 : Vue schématique de l'erreur d'estimation et de l'erreur d'agrégation. D'après Peylin et al., 2001.

La gravité du problème de l'erreur d'agrégation dépend du gaz étudié. Pour CO_2 , les mécanismes expliquant les puits sont variés et tout pixel contenant de la biosphère peut potentiellement contribuer au puits mondial. L'erreur d'agrégation est donc un problème majeur pour ce gaz. Pour CH_4 , le problème paraît moins critique car chaque processus naturel contribuant à émettre du méthane a des spécificités pouvant faciliter la localisation des pixels émetteurs. Ainsi, les zones inondées peuvent être localisées par satellite avec une bonne précision, de même que les feux de biomasse. Les émissions anthropiques sont attachées à des infrastructures facilement localisables (pipelines, décharges, mines, usines, routes,..). Le travail fait sur les

inventaires d'émissions permet d'espérer une bonne représentation de la localisation des émissions. Dans ce cadre, l'optimisation des flux pour des regroupements de pixels plus de sens que pour CO₂. De plus ce type d'inversion permet de conserver différents processus qui peuvent aussi être contraint par les observations isotopiques. Je pense que la tendance sur cette question de l'erreur d'agrégation dépendra de notre capacité à produire des scénarios de sources et puits de CO₂ et des inventaires d'émissions réalistes dans leur distribution spatiale et temporelle. Si tel est le cas, l'inversion des flux pour un grand nombre de régions cohérentes par processus est à mon sens un compromis prometteur pour limiter l'impact de l'erreur d'agrégation sur les résultats des inversions tout en évitant la mise en place difficile de corrélations d'erreur.

4. Stations et sélections

Les mesures atmosphériques constituent la contrainte majeure des inversions. Leur intégration est faite de différentes façons selon les équipes.

Concernant le choix des stations, deux approches ont dominé jusqu'à maintenant. Pour certaines équipes, il faut assimiler exclusivement des stations présentant des données pendant toute la période d'inversion. Cela permet d'éviter d'introduire de possibles biais quand une station apparaît ou disparaît dans la procédure inverse. Ces biais apparaissent dans les régions les moins contraintes du système, comme l'océan Pacifique sud par exemple (Rödenbeck et al., 2003). Nous avons défendu un point de vue différent en assimilant toutes les observations disponibles dans l'inversion et en faisant des tests de sensibilité afin de vérifier que l'introduction ou la suppression d'une station ne créait pas de discontinuité aux échelles spatiales discutées. Cette approche permet généralement de multiplier par 2 ou 3 le nombre d'observations utilisées dans l'inversion. Elle est valide tant qu'on ne raffine pas trop l'échelle spatiale à laquelle les résultats sont présentés. Par ailleurs, les stations pour lesquelles on suspecte une erreur de modélisation flagrante ne sont pas utilisées. Ainsi, les résultats obtenus pour les flux de CO₂ de l'Europe de l'est avec et sans la station située près de la mer noire (BSC) montre la très forte sensibilité des résultats de l'inversion à cette station, due soit à un effet de transport local mal représenté (contraste terre/mer Noire) soit à la mauvaise représentation de sources anthropiques locales (Figure 43).

Une approche alternative récente à la non-utilisation d'une station mal représentée par le modèle est d'ajuster les erreurs d'observation *a priori* en fonction de la contribution de chaque station à la fonction de coût afin que chaque station ait à peu près le même poids (Michalak et al., 2005). Cette méthode permet de fixer de façon statistiquement cohérente les erreurs associées à chaque observation tout en limitant le risque d'erreur systématique due à une mauvaise représentation du transport.

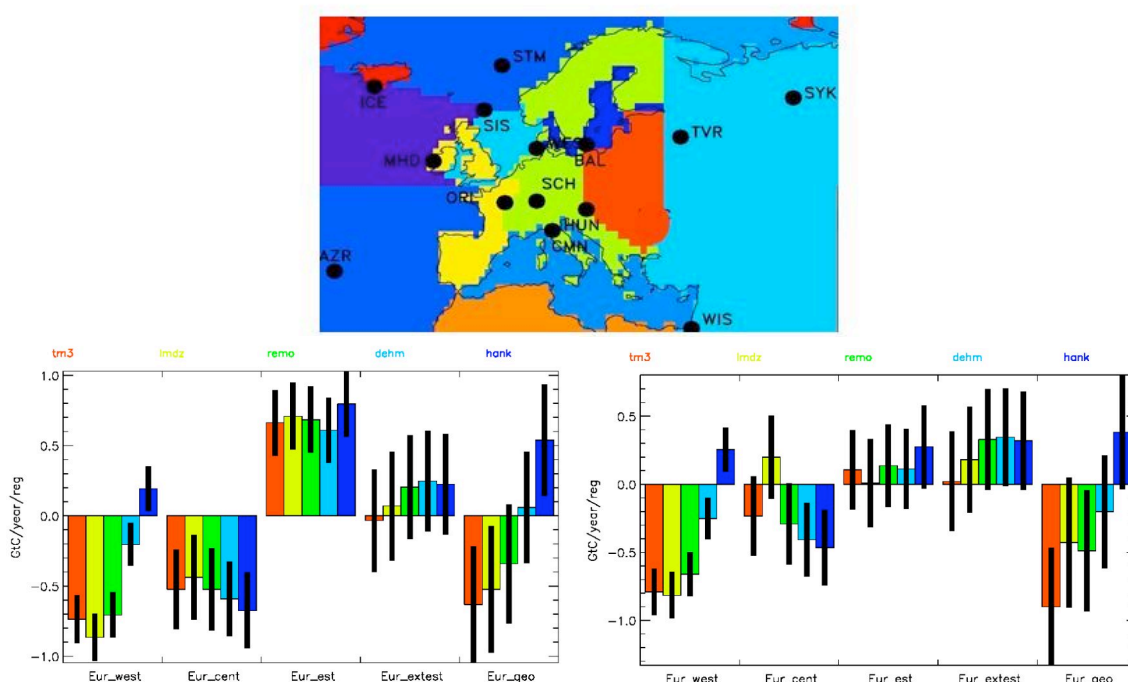


Figure 43 : Flux de CO₂ optimisés par 5 modèles de transport atmosphérique pour 5 régions européennes (haut) avec la station de BSC (gauche) et sans BSC (droite). D'après Rivier et al., in prep.

La sélection des observations utilisées est aussi un problème important. Les observations atmosphériques ont longtemps été assimilées sous forme de moyennes mensuelles filtrées avec procédures comme celle de Thonning et al., (1989) : un polynôme et 4 harmoniques étaient complétés par des résidus filtrés. Le calcul de la moyenne mensuelle a d'abord été fait sans sélection particulière. La plupart des données de CO₂ étant des données flacons prélevés pendant la journée, il y a un risque de biais jour/nuit important. Ce risque n'était pas très important quand le réseau de mesures était essentiellement marin, mais il augmente fortement avec l'assimilation de données en milieu continental où le contraste jour/nuit est important. Les procédures actuelles tendent donc soit à calculer les moyennes mensuelles dans le modèle de façon synchronisée avec les observations (Peylin et al., 2005) soit à assimiler directement chaque flacon en extrayant le modèle au même moment (Rödenbeck et al., 2003).

Par ailleurs, on a vu la difficulté de représenter certaines observations, en particulier pour certaines stations continues. Des procédures de classement des observations horaires en observations locales/régionales ou maritime/continentale sont mises en place par les groupes d'expérimentateurs à partir de critères météorologiques, statistiques, ou de traceurs comme le radon-222 (Biraud et al., 2000). J'ai participé à la classification des données de la station de Mace-Head en trois types : local, marin, continental pendant ma thèse (Bousquet et al., 1996). Ces critères, dont un exemple est donné pour l'année 2001 (Figure 44), sont encore utilisés aujourd'hui et ont permis de définir deux stations MHD dans la base de données GLOBALVIEW-CO₂ (MHD océanique et MHD continental).

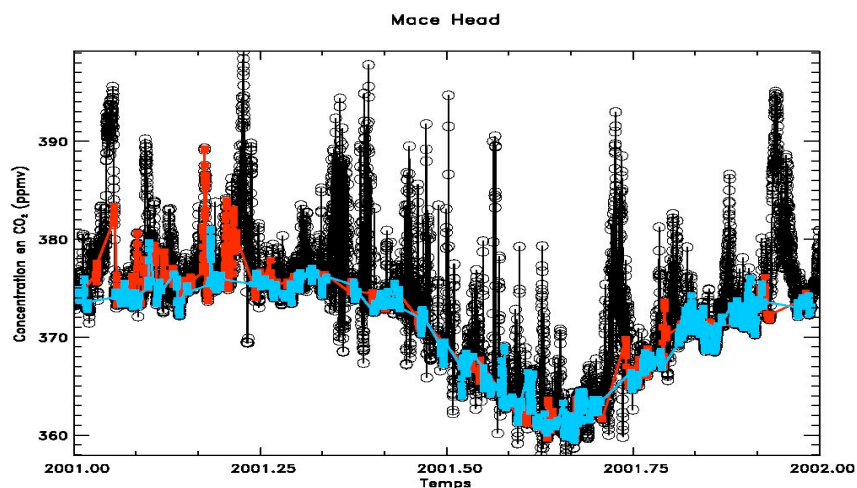


Figure 44 : Données horaires à MHD pour l'année 2001. Noir : données classées locales. Bleu : données classées océaniques. Rouge : Données classées continentales. D'après Ramonet (pers. Com.).

Récemment, le travail de thèse de Claire Carouge a quantifié l'influence de la sélection sur les résultats de l'inversion des flux journaliers de CO_2 . Les variations saisonnières sont très sensibles à la sélection opérée. Sans sélection, la sous-estimation des concentrations d'hiver et des pics positifs dans le modèle a priori conduit à un flux de CO_2 européen positif beaucoup plus intense que celui calculé par ORCHIDEE (Krinner et al., 2005). En été, la surestimation des concentrations modélisées, notamment aux stations de montagne) donne un puits marqué. Au total, l'amplitude du cycle saisonnier inversé est beaucoup plus grande que pour ORCHIDEE. Les diverses sélections réalisées par C. Carouge entraînent une réduction significative de l'amplitude du cycle saisonnier (Figure 45). Intégré sur l'année, le flux de l'Europe de l'ouest (hors émissions fossiles) passe alors d'une forte source quand aucune sélection n'est faite (+1.2 GtC/an) à un petit puits (-0.2 GtC/an) compatible avec des estimations actuelles (Janssens et al., 2003) pour une sélection éliminant les observations s'écartant de plus de 3-sigma de la moyenne.

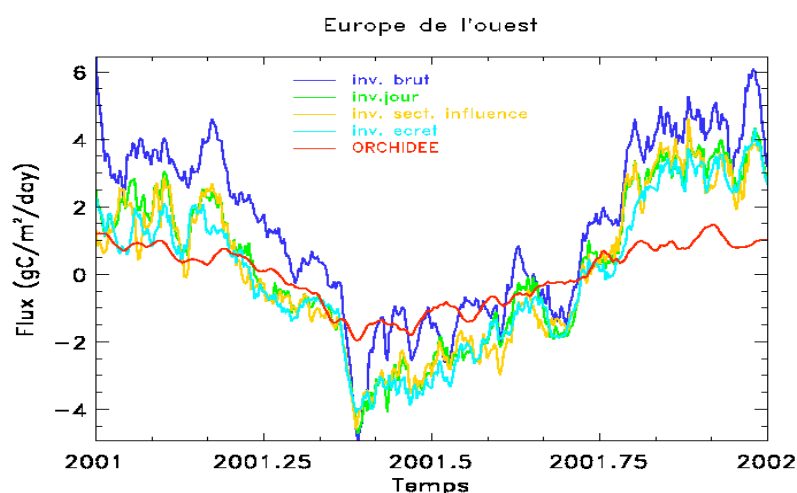


Figure 45 : Flux de CO_2 optimisés pour différentes sélection des observations. D'après Carouge (Thèse, 2006).

La systématisation des procédures de sélection des données à toutes les stations et leur mise en place dans les modèles de transport est fondamentale pour pouvoir assimiler les données continues. La difficulté est que chaque station a ces propres critères et qu'ils ne sont pas souvent communiqués aux modélisateurs. Un groupe de travail mixte modélisateurs/expérimentateurs est actuellement en place au niveau européen pour améliorer la situation. La fourniture par les expérimentateurs de données horaires accompagnées des informations nécessaires à la sélection, et la mise à disposition par les modélisateurs des sorties des modèles de transport sont deux actions décidées par ce groupe. Un élément important est que la sélection doit se faire en fonction des performances du modèle et pas indépendamment, car l'erreur d'observation de l'inversion est définie par une différence modèle/mesure. In fine, la mise en place de ces critères de sélection a pour objectif de limiter au maximum les erreurs de modélisation en assimilant seulement les observations que le modèle peut représenter en fonction des limitations évoquées au §1. C'est un gros travail de recherche qui reste à faire aujourd'hui.

5. Intégration d'informations supplémentaires

L'approche bayésienne utilise des informations a priori sur les flux à optimiser pour régulariser le problème inverse. Ces informations concernent une estimation des flux, de leur variance et des covariances d'erreur. Les flux anthropiques sont généralement donnés par des inventaires d'émissions basés sur des modèles statistiques ou économiques. Les flux naturels sont déterminés par des modèles de végétation ou océaniques parfois contraints par des observations in situ ou satellites (Krinner et al., 2005). Comme ces estimations influencent les résultats de l'inversion, l'amélioration des inventaires est très importante pour limiter une possible erreur dans l'inversion. Par exemple, jusqu'à présent les émissions de CO₂ dues à la combustion des fossiles étaient prescrites dans les inversions sous forme d'une valeur unique annuelle répétée à chaque pas de temps. En particulier, aucun effet saisonnier, hebdomadaire, ou diurne n'était pris en compte. Une inter-comparaison en cours de divers scénarios d'émissions fossiles montre l'impact significatif de la prise en compte de ces variations sur les gradients atmosphériques (Figure 46). L'amélioration des inventaires d'émissions et des modèles biogéochimiques, ainsi que leur capacité à fournir une estimation des incertitudes associées aux flux sont deux problèmes cruciaux de notre discipline qui devront être abordés dans les années qui viennent.

L'estimation des flux fossiles de CO₂ peut aussi être faite à l'aide de traceurs proxy mesurés dans l'atmosphère. Une étude récente par Rivier et al. (2006) a montré que les données de SF₆, CO et C₂Cl₄ pouvaient être utilisés de façon équivalente en hiver pour représenter la contribution du CO₂ fossile dans l'atmosphère. Cependant, sur l'ensemble de l'année, la sous-estimation de la variabilité des observations de SF₆ et la consommation de CO par les radicaux hydroxyle OH (surtout en été) sont des limitations fortes de l'utilisation de ces deux traceurs, et C₂Cl₄ reste le traceur le plus adapté pour représenter le CO₂ fossile, avec une incertitude de 30 à 40% tout de même. Cette incertitude significative, qui est due principalement au calcul de la pente entre C₂Cl₄ et CO₂, limite l'utilisation de la méthode proxy même si les erreurs de modélisation sont réduites car on utilise un ratio entre traceurs (e.g. : CO₂/C₂Cl₄)

ayant des distributions de sources voisines. L'utilisation de données de $^{14}\text{CO}_2$ peut aussi fournir des estimations de la contribution des émissions de carbone fossile (Levin et al., 2003), mais le coût des mesures rend leur généralisation difficile.

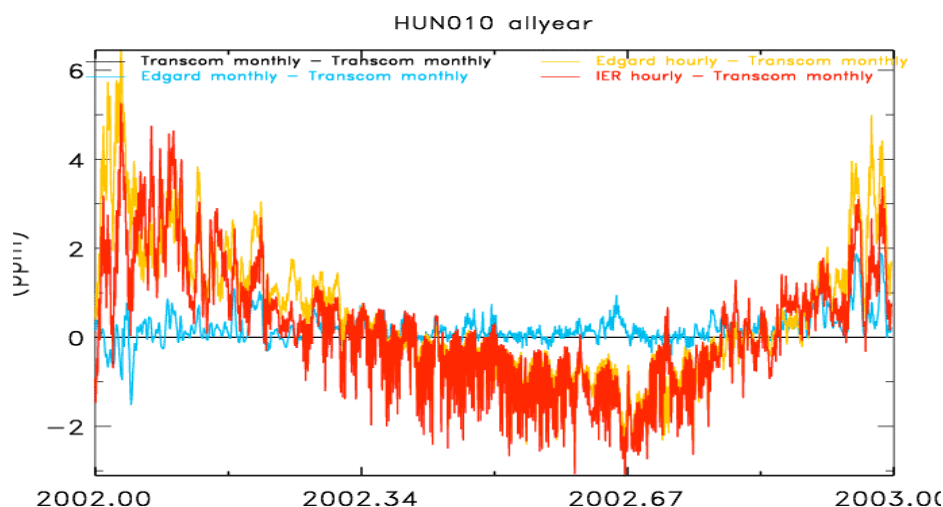


Figure 46 : différences entre trois scénarios d'émissions fossiles et le scénario de référence TRANSCOM pour l'année 2002 et la station HUN. Les scénarios IER et EDGAR présentent des variations horaires. D'après Peylin, (pers. Com.).

Pour les covariances d'erreur, La structure spatiale de la réduction d'erreur (§1) révèle l'extension spatiale assez limitée d'une mesure atmosphérique : la réduction d'erreur est maximale autour des stations et décroît rapidement ensuite. Comment étendre l'influence des mesures atmosphériques ? L'approche qui a été retenue dans une inversion à l'échelle du modèle est de mettre en place des corrélations d'erreur sur les flux à optimiser. Cette approche permet de limiter l'erreur d'agrégation tout en liant les flux entre eux avec une contrainte faible. Des corrélations basées sur décroissance isotrope avec une longueur de corrélation ont été décrites dans la méthodologie. Cette approche a l'avantage d'être simple, mais ne reflète pas l'anisotropie forte du transport atmosphérique et de la biosphère continentale.

Dans la thèse de Claire Carouge, nous avons testé deux autres types de corrélation d'erreur. Le premier utilise les flux de CO_2 de NEE calculés par le modèle de végétation ORCHIDEE. On utilise les corrélations entre les flux de chaque pixel du modèle comme corrélation d'erreur. Ces corrélations font donc intervenir indirectement les variables météorologiques forçant ORCHIDEE et les paramétrisations du modèle. Le second type utilise les 12 biomes d'ORCHIDEE pour déterminer la corrélation d'erreur de chaque pixel avec l'ensemble des autres. Ces deux jeux de corrélation laissent apparaître des structures qui nous paraissent plus réalistes que l'isotropie générée par des corrélations en distance (Figure 47).

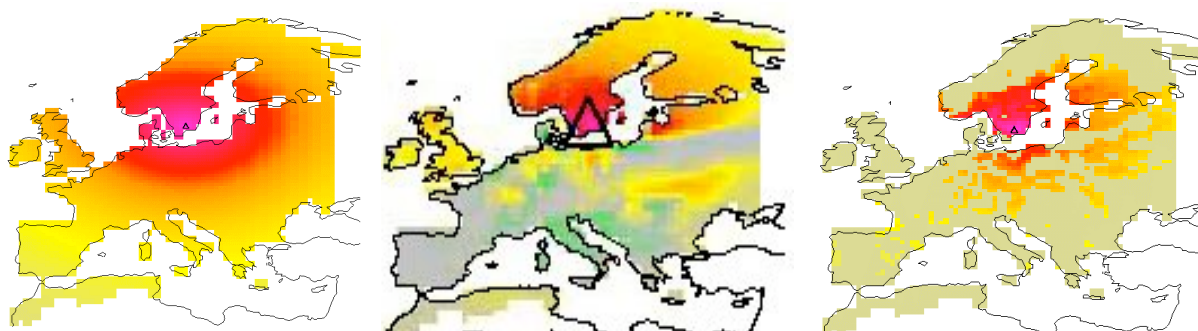


Figure 47 : Corrélation d'erreur pour un point localisé au sud de la Scandinavie (triangle noir) par trois méthodes différentes : distance, METEO+ORCHIDEE (NEE), et ORCHIDEE (biomes). D'après Carouge (thèse, 2006).

Malheureusement, l'étude basée sur des données synthétiques menée par Claire Carouge ne nous a pas permis de montrer qu'un jeu de corrélation était plus performant qu'un autre pour retrouver les flux nets de CO₂ prescrits pour construire les pseudo-données.

La détermination de corrélation d'erreur spatiale est un problème encore ouvert des inversions atmosphériques à haute résolution. En particulier, l'utilisation de modèles de végétation pour estimer ces corrélations peut poser des problèmes. Récemment, Chevallier et al. (2006b) ont montré que la distribution des erreurs du modèle ORCHIDEE par rapport à des mesures directes de flux de CO₂ n'était pas Gaussienne et qu'il n'était pas possible de trouver des corrélations spatiales d'erreur supérieures à 50% même pour des sites proches. Ces deux résultats remettent en cause 1/ l'hypothèse de gaussianité qui facilite la mise en place de l'approche bayésienne, et 2/ la possibilité de mettre en place des corrélations spatiales d'erreur permettant d'étendre l'influence des mesures atmosphériques. Une extension du travail de Chevallier et al. (2006b) à plus de sites et pour un autre modèle de végétation permettrait de trancher cette dernière question.

Il est clair pour moi que cette question de la mise en place de corrélations d'erreur spatiales (et temporelles) est un sujet de recherche majeur de notre discipline car elle conditionne notre capacité à utiliser les observations continues de CO₂ en milieu continental pour contraindre les flux de surface à l'échelle régionale. Si l'impossibilité de définir ce type de corrélation se confirme, il sera probablement nécessaire de réaliser les inversions sur des régions prédéfinies mais en plus grand nombre que par le passé et pour lesquelles les distributions spatiales sont le mieux connues possibles grâce à des inventaires plus précis.

V. Perspectives

La communauté scientifique des inversions atmosphériques est jeune, puisqu'elle a vraiment démarré il y a seulement 25 ans, mais elle est remarquablement bien structurée et a produit de nombreux résultats améliorant la connaissance des cycles biogéochimiques. Cette communauté a su se fédérer dans des grands projets internationaux (TRANSCOM) ou européens (CARBO-EUROPE, GEMS, NITRO-EUROPE, EVERGREEN, GEOMON ..) dans lesquels des intercomparaisons fructueuses ont été menées. Elle a aussi su garder une saine concurrence entre les différents groupes travaillant sur ces questions et ainsi permettre l'essor de méthodes variées dont les différences nourrissent des débats d'idées souvent passionnants. Cependant, si l'apport des inversions atmosphériques est incontestable sur les échelles spatiales mondiales et continentales, et sur les échelles temporelles allant du mois à la décennie, leur capacité à contraindre les cycles biogéochimiques aux échelles régionale et infra-mensuelle reste largement à démontrer. Les inversions ont montré leur force dans la détermination des grandes tendances interannuelles sur de grandes régions en assimilant des mesures éloignées des sources, mais la demande sociétale les attend maintenant sur la vérification des émissions de polluants et de leurs variations à l'échelle des pays ou des régions. La possibilité de réaliser un tel objectif n'est pas prouvée aujourd'hui, à cause des limitations décrites au chapitre précédent concernant le manque de données, la difficulté de représenter le transport atmosphérique et l'hétérogénéité des flux de surface en milieu continental, ou encore les problèmes méthodologiques. Notre communauté doit probablement accomplir sa première révolution pour arriver à quantifier les cycles biogéochimiques régionaux en milieu continental. Comment y parvenir ?

- Développer les réseaux de mesures

Le manque d'observations est historiquement la première cause de limitation des inversions atmosphériques. Le développement du réseau de surface se poursuit aujourd'hui avec la mise en place de stations flacons ou continues dans des zones importantes et mal observées comme l'Amazonie, la Sibérie, ou l'Afrique tropicale (REF). Des stations continues, généralement associées à des tours élevées sont en cours d'installation en Europe, en Amérique du Nord et en Asie. La mesure à différents niveaux d'une tour de plusieurs centaines de mètres devrait permettre d'étendre les zones d'influences de ces stations (Figure 48).

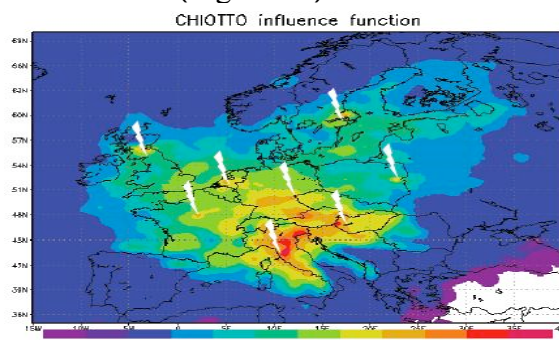


Figure 48 : Zones d'influence du réseau de tour élevées du réseau du projet européen CHIOTTO. D'après

www.cmdl.noaa.gov/ccgg/co2experts/presentations/vermeulen_a_90_o.pdf.

Des mesures aéroportées sont réalisées à l'aide de petits avions privés depuis la fin des années 1990 et leur fréquence augmente dans le cadre de projets continentaux en Europe (CARBOEUROPE) ou en Amérique du Nord (NACP). Ces données peuvent servir à mieux comprendre le transport des traceurs sur la verticale et éventuellement contraindre ce transport ou des émissions spécifiques dans le cas de mesures simultanées de proxys comme le radon ou le CO. Elles ont été peu utilisées dans les inversions jusqu'à présent car les séries temporelles sont courtes et demandent de faire des moyennes par bande d'altitude. Un exemple de séries temporelles pour les profils réalisés au dessus de la forêt d'Orléans est présenté sur la Figure 49. Des projets de mesures de CO₂ par des avions de ligne commerciaux sont aussi en cours de mise en place pour le CO₂ (ex :CARIBIC).

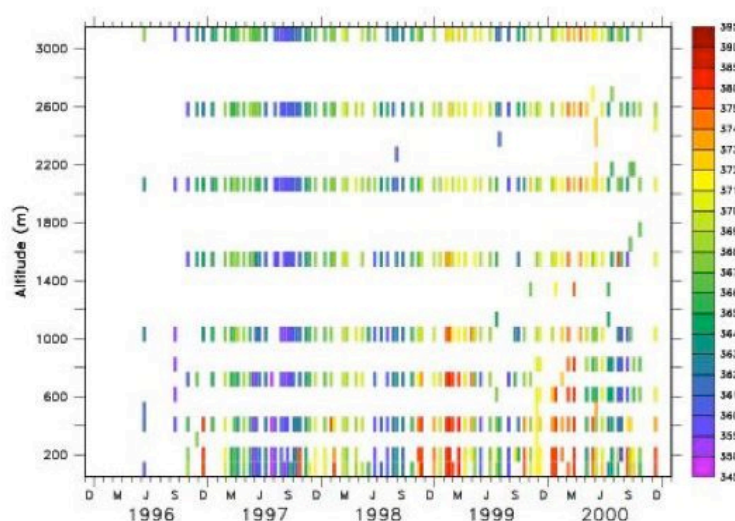


Figure 49 : Profils verticaux de CO₂ au dessus de la forêt d'Orléans (ppm). D'après Ramonet (pers. Com.).

La plus grosse évolution attendue dans les années qui viennent en ce qui concerne les mesures atmosphériques de CO₂ ou de CH₄ est la reconstruction d'observations de colonnes de ces gaz à partir de mesures satellites de radiance dans l'infrarouge. De telles reconstructions existent déjà pour CO (MOPITT) et ont fournis des premiers résultats d'inversions atmosphériques (Petron et al., 2004). De nombreuses études ont été menées pour étudier le potentiel de telles observations sur la réduction d'erreur sur l'estimation des flux régionaux de CO₂ et de CH₄. Ces travaux ont pu être réalisés car les incertitudes estimées par les inversions atmosphériques ne dépendent pas des observations mais des incertitudes associées. Les résultats de ces études ont fourni des estimations de l'incertitude à atteindre pour les reconstructions satellites pour qu'elles apportent des informations sur les flux de surface. Une précision de l'ordre de $\pm 1\%$ sur les colonnes reconstituées serait nécessaire pour améliorer notre connaissance des sources et puits de surface.

Pour CO₂, des estimations de la précision requise autour de ± 1 ppm ($\pm 0.3\%$) ont été récemment obtenues (Houweling et al., 2004). Cela représente un objectif ambitieux compte tenu des nombreuses causes d'erreur (souvent systématiques) à la fois instrumentales pour la mesure des radiances et méthodologiques pour passer des

radiances aux colonnes. L'assimilation de moyennes spatiales et/ou temporelles des reconstructions instantanées permettra de réduire les erreurs d'observations mais au détriment de la résolution. Ainsi, avec SCIAMACHY, Houweling et al. (2004) estiment qu'une précision de 5 ppm serait suffisante pour apporter des informations sur les flux à l'échelle régionale. J'ai participé à une étude pour l'agence spatiale européenne (ESA) sur le potentiel des reconstructions satellites pour la détermination des émissions anthropiques. Dans le cas du CO₂, nous avons estimé le nombre de colonnes qu'il faudrait agréger pour résoudre les gradients spatiaux dus aux émissions fossiles de CO₂ en Europe (Figure 50), compte tenu d'une précision sur les colonnes individuelles de ± 1 ppm et de deux erreurs extrêmes de modélisation (± 0.2 et ± 1.5 ppm). Les gradients annuels à résoudre sont de l'ordre de 0.15 ppm sur une échelle spatiale de l'ordre de 1000 km. Pour une erreur modèle faible (± 0.2 ppm), il faudrait ainsi moyenner 45 colonnes reconstituées avec une fonction de poids piquée sur la basse troposphère pour résoudre ce gradient. Si l'erreur modèle augmente, ou si la fonction de poids est homogène, le nombre de points nécessaires devient trop grand.

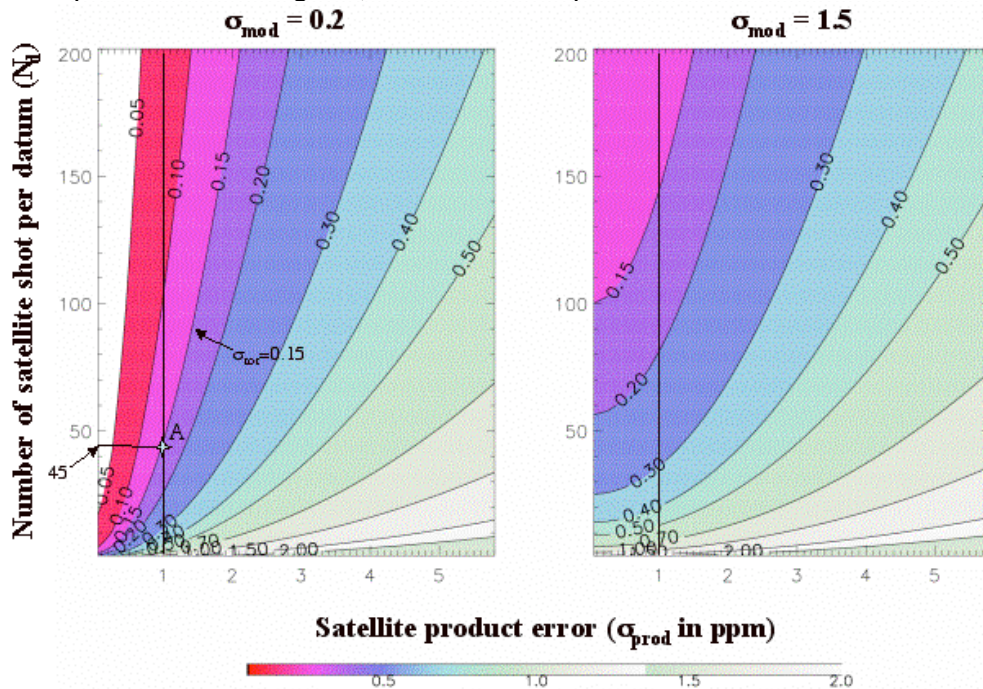


Figure 50 : Abaque des lignes d'égale erreur totale (iso- σ_{tot}) pour deux valeurs de l'erreur modèle σ_{mod} : 0.2 ppm (optimiste) et 1.5 ppm (pessimiste). Pour résoudre un gradient spatial de 0.15 ppm, il est par exemple nécessaire d'agréger 45 données individuelles (point A). D'après le rapport du projet ESA AO-3086.

Pour CH₄, les premières reconstructions sont apparues récemment grâce à SCHIAMACHY et montrent des incompatibilités avec les inventaires actuels, en particulier dans les tropiques (Frankenberg et al., 2005). Les premières inversions avec SCIAMACHY sont en cours de publication (Bergamaschi et al., 2006a). L'interféromètre IASI devrait fournir prochainement d'autres reconstructions (Turquety et al., 2004 ; Clerbaux et al., 2003). Des tentatives (Chedin et al., 2005) ont été réalisées pour déduire des colonnes de CO₂ à partir des séries temporelles de

radiances fournies par des satellites non dédiés au CO₂ (TOVS, AIRS). Ces reconstructions ont été utilisées dans des inversions des flux de surface (Chevallier et al., 2005), mais les gradients de flux optimisés paraissent trop élevés, traduisant de probables problèmes dans les reconstructions. Ces travaux ont toutefois permis de mettre au point les méthodes inverses qui seront utilisées avec les satellites dédiés au CO₂ : OCO (Américain, lancé en 2008) et GOSAT (Japonais, lancé en 2009). Ces instruments sont associés à des fonctions de poids (pour le calcul des colonnes) renforçant la surface par rapport aux missions anciennes (TOVS) dont la fonction de poids était maximale en moyenne ou haute troposphère. Il paraît clair aujourd'hui que les reconstructions satellites apporteront des contraintes supplémentaires sur les sources et puits de surface sur des échelles de temps (mois à année) et d'espace (régional) suffisamment grandes. Leur capacité à faire mieux et à contraindre par exemple les émissions anthropiques ou les émissions à l'échelle des pays, dépendra des précisions réelles atteintes, in fine, sur les colonnes individuelles reconstituées. Il faut toutefois rester prudent. Par exemple, la communauté travaillant sur les espèces précurseurs de l'ozone utilisent différentes reconstructions satellites qui montrent une dispersion significative du même ordre que celle des différents modèles employés (Figure 51, Van Noije et al., 2006).

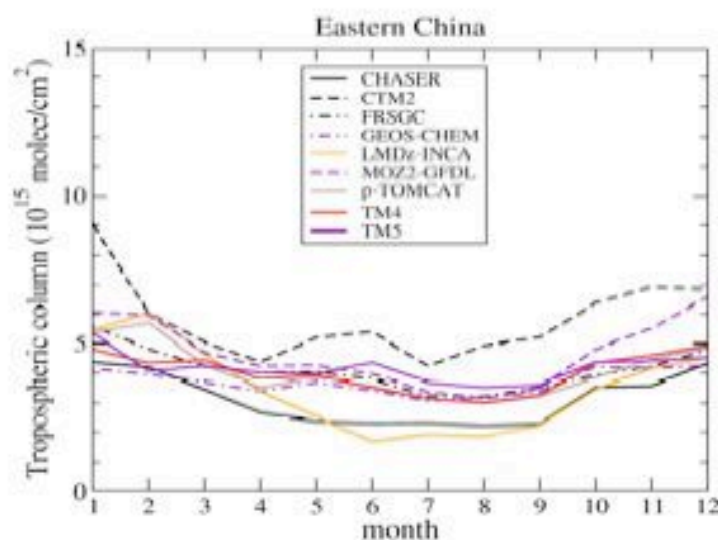


Figure 51 : Cycle saisonniers des colonnes atmosphériques de NO₂ au dessus de la Chine de l'est calculées par des modèles de chimie-transport ou reconstituées par satellites. D'après Van Noije et al, ACPD, soumis.

La démultiplication du nombre d'observations ouvre un grand nombre de champs de recherche pour les années à venir. Tout d'abord, l'espace des observations va voir sa taille augmenter très fortement, comme cela a été le cas pour l'espace des flux quand nous sommes passés des inversions grandes régions aux inversions pixels. Les méthodes inverses de type matricielles utilisées principalement jusqu'à maintenant ne sont pas adaptées pour traiter des problèmes inverses avec les deux espaces (observations et flux) de grande taille. Il faut développer des méthodes de type variationnelles comme le 4D-VAR ou de type séquentielles comme le filtre de Kalman d'ensemble. Ces développements sont en cours au LSCE comme dans d'autres

groupes à travers le monde. Ensuite, l'estimation de corrélations d'erreurs sur le flux mais aussi sur les observations, reste un problème ouvert auquel il va falloir s'atteler. Il faudra aussi mettre en place des méthodes objectives pour régler le poids relatif des différents types d'observation : surface, aéroportées et colonnes. Enfin, la validation des reconstructions satellites par des mesures depuis le sol, comme celles fournies par les spectromètres à transformée de Fourier (FTIR), reste à réaliser.

- Raffiner la modélisation du transport en milieu continental

Un autre axe important de recherche dans les années à venir est l'amélioration de la représentation du transport atmosphérique en milieu continental. L'utilisation de modèles de chimie-transport mondiaux à basse résolution a montré quelques limites pour optimiser les flux régionaux de CO₂ au-dessus des continents. Plusieurs options ont été développées pour lever cette difficulté. L'approche la plus simple consiste à raffiner les grilles des modèles mondiaux, avec parfois l'utilisation d'un zoom sur une ou plusieurs régions d'intérêt. C'est l'option que nous avons privilégiée pour le moment avec LMDZ. Le modèle mondial TM5 utilise des grilles imbriquées (2-way nesting) pour améliorer la résolution sur des zones d'intérêt. Des projets sont prévus pour utiliser la dynamique du modèle du centre européen à 40km dans une version débranchée de ce modèle. Dans le cas de traceurs à longues durées de vie comme le CO₂ ou le CH₄, il y a un intérêt évident à utiliser un modèle mondial. L'inconvénient est que les moyens de calcul et les forçages dynamiques limitent encore les résolutions qu'on peut atteindre. Les modèles utilisés aujourd'hui sont autour de 3°x3° avec des zooms à 1°x1°. Dans les années à venir, des grilles mondiales à 50km seront probablement mises en place. Le raffinement de la résolution verticale est aussi importante. De 20 niveaux verticaux à l'heure actuelle, les modèles mondiaux devraient passer prochainement à 50 niveaux, avec une bonne résolution de la couche limite. Le travail sur les paramétrisations physiques du mélange vertical (convection, turbulence) est aussi un axe important de travail pour les dynamiciens. A ce titre, la nouvelle couche limite de LMDZ devra être validée et probablement généralisée à l'avenir. Une autre approche possible est l'utilisation de modèles mésoéchelle à domaine limité. Ils ont l'avantage de pouvoir utiliser des paramétrisations physiques plus complètes (ex : non hydrostatiques) et d'avoir des résolutions spatiales fines (jusqu'au kilomètre). Les principaux inconvénients sont les temps de calcul et le problème des conditions limites pour les traceurs à longues durées de vie.

Au LSCE, nous explorons ces deux voies de recherche. Nous poursuivons l'utilisation de LMDZ pour les inversions mondiales, notamment avec la thèse et le travail de post-doctorat de Claire Carouge. Dans le même temps, nous mettons en place un système de modélisation inverse méso-échelle sur la région des Landes autour de l'expérience régionale de bouclage du bilan de CO₂ sur cette région, dans le cadre du projet européen CARBOEUROPE. La modélisation méso-échelle directe a déjà été testée au LSCE par le passé (Chevallard et al., 2002). Des tentatives prometteuses d'inversions ont déjà été réalisées en Allemagne, à partir de données aéroportées de la mission COBRA (Gerbig et al., 2003a, 2003b). Le modèle mésoNH de Météo France sera couplé avec un modèle débranché de dispersion lagrangien pour calculer les fonctions d'influence de la région des Landes qui seront utilisées dans un système d'assimilation 4D-VAR (Figure 52). Ce travail fait l'objet de la thèse de Thomas LAUVAUX.

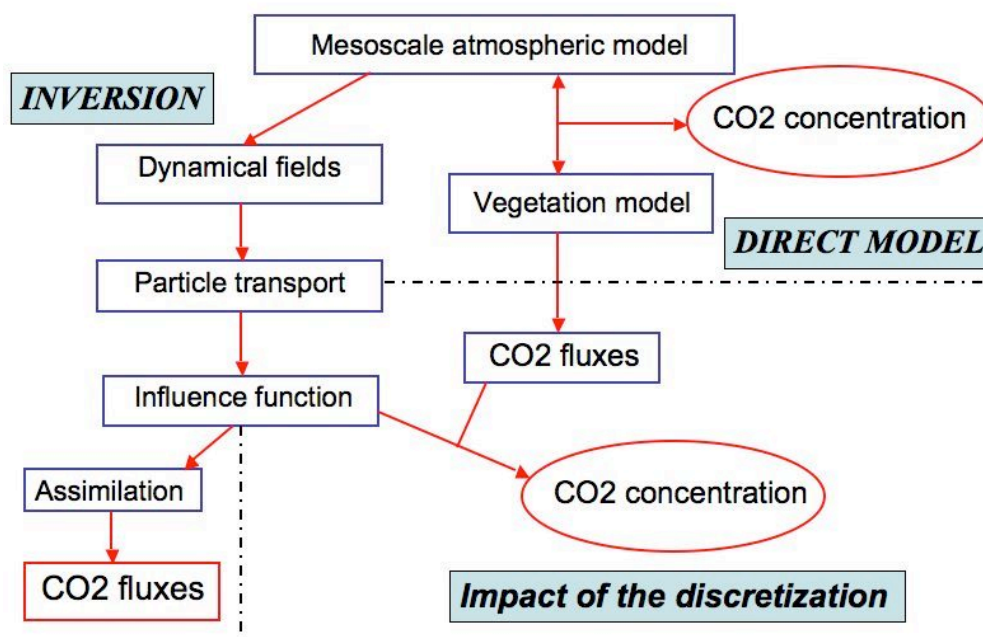


Figure 52 : Schéma conceptuel du système d'assimilation 4D-VAR mésoéchelle. D'après la thèse de T. Lauvaux (en cours, pers. Com.)

Le raffinement de la modélisation du transport des gaz comme le CO_2 , le CH_4 ou le CO passe aussi par la prise en compte de processus qui ont souvent été négligés jusqu'à présent dans les inversions. Il s'agit en particulier des flux latéraux et indirects de traceurs. Ainsi, Les fleuves transfèrent autour de 0.5 GtC sous forme de carbone dissous et particulaire des continents vers les océans à travers une série de filtres naturels (Aumont et al., 2001). Le commerce agricole et forestier engendre des flux latéraux de carbone entre les régions de production et les régions de consommation (Ciais et al., 2006). Ciais et al., (2006) ont montré que ces flux, nuls en moyenne mondiale, pouvaient engendrer des concentrations atmosphériques significatives aux stations de mesures de CO_2 (jusqu'à 0.5 ppm). La combustion de la biomasse génère des COVs, convertis ensuite chimiquement en CO puis CO_2 dans l'atmosphère. Cela donne donc une source additionnelle de CO et de CO_2 (Folberth et al., 2005) qu'on ne représente que rarement dans les inversions (Enting et Mansbridge, 1991 ; Enting et al., 1993). La non prise en compte de ces flux additionnels est un problème surtout quand on compare les résultats inverses avec les estimations bottom-up des modèles océaniques et des modèles de végétation.

- Développer des inversions multi-espèces

L'amélioration de la modélisation des espèces chimiquement actives est un enjeu important des années à venir. Des inversions conjointes CH_4/CO commencent à apparaître avec des méthodes simples (Butler et al., 2005), mais la plupart des inversions ont optimisé les émissions des espèces chimiquement actives indépendamment les unes des autres, alors que ces espèces sont liées par la chimie atmosphérique. Dans un premier temps, nous proposons de mettre en place un système d'assimilation 4D-VAR multi-espèces de la chaîne d'oxydation du méthane

(Figure 53). Les espèces considérées seront CH_4 , CO , le formaldéhyde, l'hydrogène, OH et le méthyl-chloroforme. Des observations de surfaces sont disponibles pour l'ensemble de ces traceurs et des reconstructions satellites sont déjà disponibles pour CO et le formaldéhyde et le seront prochainement pour CH_4 (Frankenberg et al., 2005 ; Turquety et al., 2004). La possibilité d'optimiser aussi les constantes de réaction chimique ou de photolyse, ainsi que d'ajouter d'autres traceurs importants à considérer comme les oxydes d'azote sera étudiée dans un second temps. Ce travail devrait faire l'objet d'une thèse.

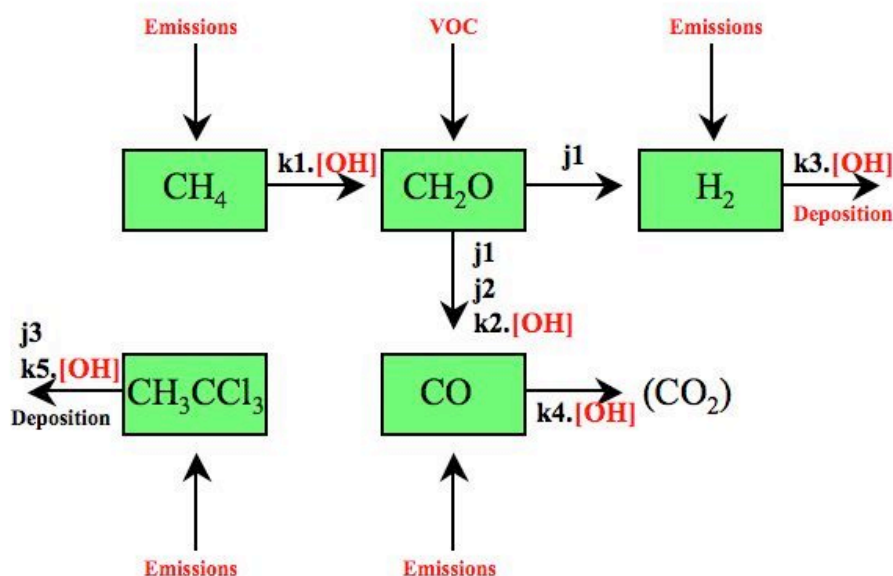


Figure 53 : Schéma conceptuel d'un système d'assimilation multi-espèce de la chaîne d'oxydation du méthane. En rouge, les variables de contrôle du 4D-VAR. D'après Chevallier (projet ANR 2006).

L'amélioration des scénarios de sources et puits *a priori* est un élément important dans le raffinement de la modélisation des cycles biogéochimiques. Du travail reste à faire sur les inventaires d'émissions notamment pour avoir des estimations interannuelles des émissions et de leurs incertitudes. La prise en compte de la variabilité horaire des émissions fossiles de CO_2 est une étape importante dans ce sens. La localisation satellite des feux de biomasse est un élément important pour améliorer la connaissance *a priori* des flux associés. Le développement d'un modèle d'émissions mondial des zones inondées est à ce titre une priorité pour l'estimation des flux de CH_4 . Plusieurs jeunes chercheurs du LSCE travailleront dans ce sens dans les années à venir dans le cadre de thèses ou de postdocs.

- Aller vers un système d'assimilation intégré du cycle du carbone

Les inversions atmosphériques se nourrissent des informations apportées par les modèles de végétation sur la structure spatio-temporelle des flux de CO_2 ou de CH_4 . Jusqu'à présent, les inversions atmosphériques se sont simplement comparées aux flux calculés par ces modèles. Les deux approches n'étaient d'ailleurs pas toujours

indépendantes car une partie de l'information des modèles bottom-up est souvent prescrite comme information a priori de l'inversion. Un des problèmes des inversions atmosphériques est le trop grand nombre d'inconnues (flux) par rapport au nombre de données. Une façon naturelle d'avancer est alors de coupler le modèle de végétation et le modèle de transport atmosphérique pour optimiser directement des paramètres clefs du modèle de végétation qu'on peut généralement restreindre à un plus petit nombre que les flux (Santaren, 2006). Ces paramètres peuvent être contraint : 1/ par des mesures directes de flux d'eau de carbone et d'énergie provenant des réseaux de tours de flux, 2/ par des reconstructions satellites (ex :NDVI), 3/ par des inventaires de biomasse et 4/ par les observation de CO₂ atmosphérique via le modèle de transport (Figure 54). Un premier système a été développé à partir du modèle de végétation BETHY et du modèle de transport TM2 (Rayner et al., 2005). Ce système assimilait le PAR et les mesures atmosphérique seulement. Un système plus complet est en développement au LSCE autour de Peter Rayner avec l'objectif d'assimiler en plus les mesures directes de flux.

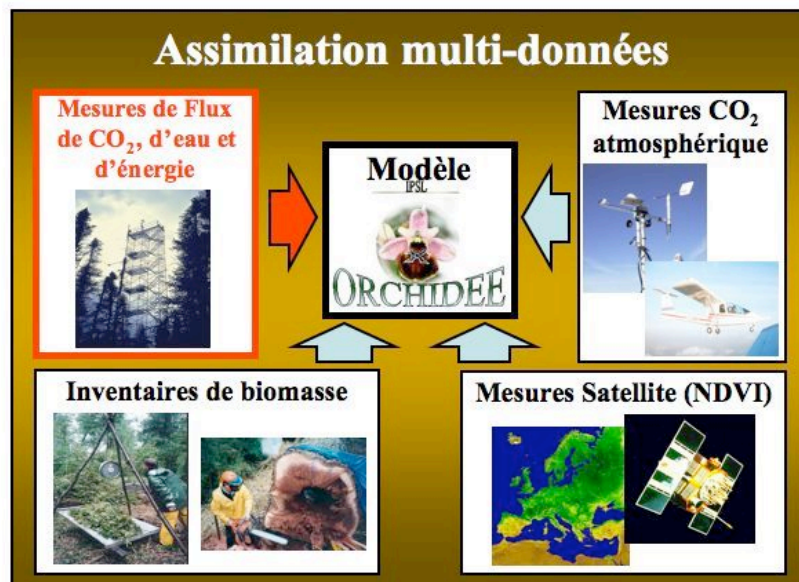


Figure 54 : Schéma générique pour un système d'assimilation du cycle du carbone (CCDAS). D'après Peylin (projet ANR 2006).

Conclusion générale

Ce document résume 12 ans de recherche au sein du Centre de Faibles Radioactivités (CFR), du laboratoire de Modélisation du Climat et de l'Environnement (LMCE), puis du Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE). Il donne aussi quelques pistes pour des travaux de recherche futurs, notamment dans le cadre de thèse ou de périodes post-doctorales. Ces années ont été très riches pour moi aussi bien à titre personnel que sur le plan de mon activité scientifique. J'ai eu la chance de participer, depuis 1994, au développement de systèmes d'inversion du transport et de la chimie atmosphérique, qui constituent aujourd'hui des outils reconnus pour l'étude des cycles biogéochimiques (IPCC, in prep.).

Le domaine scientifique l'assimilation de données atmosphériques pour contraindre les sources et puits de composés atmosphériques est jeune et, actuellement, en pleine ébullition. Les techniques d'inversion foisonnent, la quantité de données atmosphériques disponibles va exploser dans les prochaines années avec, notamment, les reconstructions satellites de la composition de l'atmosphère, et des ordinateurs de plus en plus puissants devraient nous permettre d'assimiler ces données à des résolutions de plus en plus fines.

Cependant, si l'atmosphère peut indéniablement nous apporter des connaissances fondamentales sur les flux d'échange de composés aux échelles mondiales à régionales, son caractère fortement intégrateur limite la résolution spatiale à laquelle les flux de surface peuvent être reconstruits. La perte d'information inhérente à tout milieu diffusif et la densité actuelle du réseau de mesures atmosphériques, rendent très difficile, voire impossible, d'utiliser sérieusement les inversions atmosphériques pour vérifier la mise en place d'accords internationaux de réduction des émissions par pays comme le protocole de Kyoto. Par ailleurs, comme le protocole de Kyoto ne se réfère qu'à une partie des flux d'échange entre la surface et l'atmosphère, la vérification directe du protocole grâce aux inversions atmosphériques serait incohérente.

Pour autant, si nous parvenons à mettre en place des réseaux de mesures plus denses, des modèles avec un transport plus réaliste (notamment dans les basses couches), ainsi que des systèmes intégrés du cycle du carbone (CCDAS), nous devrions être capable, dans les années à venir, d'affiner les scénarios d'émissions des composés atmosphériques à l'échelle régionale, et peut-être, à l'échelle des pays dans des régions où le réseau sera suffisamment dense (e.g. Europe et Amérique du Nord).

L'étude des cycles biogéochimiques comporte des aspects fondamentaux, comme l'amélioration de notre compréhension des échanges de matière entre les différentes composantes du système climatique, mais elle se doit aussi de répondre à la demande sociétale concernant l'étude du Climat de la Terre dans les décennies à venir. C'est cette dualité qui m'a motivé depuis 1994 et qui me pousse à poursuivre mes travaux dans ce domaine de recherche dynamique et passionnant.

Références générales

- Achard, F., H. D. Eva, H. J. Stibig, P. Mayaux, J. Gallego, T. Richards, and J. P. Malingreau (2002), Determination of deforestation rates of the world's humid tropical forests, *Science*, *297*, 999-1002.
- Andres, R. J., et al. (1996), A 1 degrees x1 degrees distribution of carbon dioxide emissions from fossil fuel consumption and cement manufacture, 1950-1990, *Global. Biogeochem. Cycles*, *10*, 419-429.
- Arrhenius, S. (1896), On the influence of carbonic acid in the air upon the the temperature of the ground, *The London, Edimburgh and Dublin Philosophical Magazine and Journal os Science*, *41*, 237-276.
- Aumont, O., et al. (2001), Riverine-driven interhemispheric transport of carbon, *Global. Biogeochem. Cycles*, *15*, 393-405.
- Bacastow, R. B. (1976), Modulation of Atmospheric Carbon-Dioxide by Southern Oscillation, *Nature*, *261*, 116-118.
- Baker, D. F., et al. (2006), TransCom3 inversion intercomparison: Impact of transport model errors on the interannual variability of regional CO₂ fluxes, 1988-2003, *Global Biogeochem. Cycles*, *20*, doi:10.1029/2004GB002439.
- Barnola, J.-M., D. Raynaud, Y. S. Korotkevich, and C. Lorius (1987), Vostok ice core provides 160,000-year record of atmospheric CO₂, *Nature*, *329*, 408-414.
- Bergamaschi, P. (2006), Best estimate emission distributions for CH₄ based on a synthesis inversions using SCIAMACHY and surface observations (EVERGREEN deliverable 37b).
- Bergamaschi, P., et al. (2006a), Satellite cartography of atmospheric methane from SCIAMACHY onboard ENVISAT: (II) Evaluation based on inverse model simulations, *J. Geophys. Res.*, *submitted*.
- Bergamaschi, P., et al. (2005), Inverse modelling of national and European CH₄ emissions using the atmospheric zoom model TM5, *Atmos Chem Phys*, *5*, 2431-2460.
- Bergamaschi, P., et al. (2006b), Model inter-comparison on transport and chemistry (EVERGREEN deliverable 35).
- Biraud, S., et al. (2000), European greenhouse gas emissions estimated from continuous atmospheric measurements and radon 222 at Mace Head, Ireland, *J. Geophys. Res.-atmos.*, *105*, 1351-1366.
- Bolin, B., and C. D. Keeling (1963), Large-Scale Atmospheric Mixing as Deduced from Seasonal and Meridional Variations of Carbon Dioxide, *J. Geophys. Res.*, *68*, 3899-&.

- Bousquet, P. (1998), Optimisation des flux nets de CO₂: assimilation des mesures atmosphériques de CO₂ et de ¹³CO₂ dans un modèle de transport tridimensionnel, 300p. pp, Université Paris VI.
- Bousquet, P., et al. (2006), Contribution of anthropogenic and natural sources methane emissions variability, *Nature*, **443**, 439-443.
- Bousquet, P., et al. (1997a), Inter-annual variability of CO₂ sources and sinks at mid-latitudes of the northern hemisphere, paper presented at Fifth International Carbon Dioxide Conference, Cairns, Australie.
- Bousquet, P., et al. (1996), Influence of two atmospheric transport models on inferring sources and sinks of atmospheric CO₂, *Tellus B*, **48**, 568-582.
- Bousquet, P., et al. (1999a), Inverse modeling of annual atmospheric CO₂ sources and sinks 1. Method and control inversion, *J. Geophys. Res.-atmos.*, **104**, 26161-26178.
- Bousquet, P., et al. (1997), Atmospheric concentration variations recorded at Mace-Head, Ireland, from 1992 to 1994, *Physics and Chemistry of the Earth*, **21**, 477-481.
- Bousquet, P., et al. (2005), Two decades of OH variability as inferred by an inversion of atmospheric transport and chemistry of methyl chloroform, *Atmos Chem Phys*, **5**, 2635-2656.
- Bousquet, P., et al. (2000), Regional changes in carbon dioxide fluxes of land and oceans since 1980, *Science*, **290**, 1342-1346.
- Bousquet, P., et al. (1999b), Inverse modeling of annual atmospheric CO₂ sources and sinks 2. Sensitivity study, *J. Geophys. Res.-atmos.*, **104**, 26179-26193.
- Brasseur, G. P., et al. (1998), MOZART, a global chemical transport model for ozone and related chemical tracers 1. Model description, *J. Geophys. Res.-atmos.*, **103**, 28265-28289.
- Brown, M. (1993), Deduction of Emissions of Source Gases Using an Objective Inversion Algorithm and a Chemical-Transport Model, *J. Geophys. Res.-atmos.*, **98**, 12639-12660.
- Brown, M. (1995), The Singular-Value Decomposition the Deduction of the Emissions and the Isotopic Composition of Atmospheric Methane, *J. Geophys. Res.-atmos.*, **100**, 11425-11446.
- Bruhwiller, L. M. P., et al. (2005), An improved Kalman Smoother for atmospheric inversions, *Atmos Chem Phys*, **5**, 2691-2702.
- Buchwitz, M., et al. (2005a), Atmospheric methane and carbon dioxide from SCIAMACHY satellite data: initial comparison with chemistry and transport

- models, *Atmos Chem Phys*, 5, 941-962.
- Buchwitz, M., et al. (2005b), Carbon monoxide, methane and carbon dioxide columns retrieved from SCIAMACHY by WFM-DOAS: year 2003 initial data set, *Atmos Chem Phys*, 5, 3313-3329.
- Butler, T. M., et al. (2005), Simultaneous mass balance inverse modeling of methane and carbon monoxide, *J. Geophys. Res.-atmos.*, 110, D21310, doi:21310.21029/22005JD006071.
- Carouge, C., et al. (2006), CO₂ daily european observations as a constraint to infer CO₂ land fluxes over Europe, *in prep.*
- Carouge, C. (2006), Vers une estimation des flux de CO₂ journaliers européens à haute résolution par inversion du transport atmosphérique. Thèse de l'université Paris VI, 259pp.
- CDIAC (Carbon Dioxide Information Analysis Center). (2003), Trends online: A compendium of data on global change., edited by. Oak Ridge National Laboratory, <http://cdiac.esd.ornl.gov/trends/trends.htm>.
- Chedin, a., et al. (2005), Impact of tropical biomass burning emissions on the diurnal cycle of upper tropospheric CO₂ retrieved from NOAA 10 satellite observations, *J. Geophys. Res.-atmos.*, 110, -.
- Chen, Y. H., and R. G. Prinn (2005), Atmospheric modeling of high- and low-frequency methane observations: Importance of interannually varying transport, *J. Geophys. Res.-atmos.*, 110, -.
- Chevallier, F., et al. (2006a), The contribution of the orbiting carbon observatory to the estimation of CO₂ sources and sinks: Theoretical study in a variational data assimilation framework, *submitted to JGR*.
- Chevallier, F., N. Viovy, M. Reichstein, and P. Ciais (2006b), On the assignment of Prior errors in Bayesian inversions of CO₂ fluxes, *submitted to GRL*.
- Chevallier, F., et al. (2005), Inferring CO₂ sources and sinks from satellite observations: Method and application to TOVS data, *J. Geophys. Res.*, 110, D24309, doi:24310.21029/22005JD006390.
- Chevillard, A., et al. (2002), Transport of Rn-222 using the regional model REMO: a detailed comparison with measurements over Europe, *Tellus B*, 54, 850-871.
- Ciais, P., et al. (2006), On the Horizontal Displacement of Carbon Associated to Agriculture and How it Impacts Atmospheric CO₂ gradients., *Soumis*.
- Ciais, P., et al. (1999), The regional distribution of the biospheric carbon fluxes as inferred from atmospheric CO₂ measurements and models., *Ecological Applications, Special Issue of the 1st GCTE conference, March 1998*, 10, 1574-

1589.

- Ciais, P., et al. (2005), Europe-wide reduction in primary productivity caused by the heat and drought in 2003, *Nature*, *437*, 529-533.
- Ciais, P., et al. (1995), A large Northern Hemisphere Terrestrial CO₂ sink indicated by the ¹³C/¹²C ratio of atmospheric CO₂, *Science*, *269*, 1098-1102.
- Clerbaux, C., J. Hadji-Lazaro, S. Turquety, G. Megie, and P. F. Coheur (2003), Trace gas measurements from infrared satellite for chemistry and climate applications, *Atmos Chem Phys*, *3*, 1495-1508.
- Conway, T. J., et al. (1994), Evidence for interannual variability of the carbon cycle from the National Oceanic and Atmospheric Administration/Climate Monitoring and Diagnostic Laboratory Global Air Sampling Network, *J. Geophys. Res.*, *99*, 22831-22855.
- Courtier, P., J.-N. Thépaut, and A. Hollingsworth (1994), A strategy for operational implementation of 4D-VAR using an incremental approach, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, *120*, 1367-1387.
- Cox, P. M., R. A. Betts, C. D. Jones, S. A. Spall, and I. J. Totterdell (2000), Acceleration of global warming due to carbon-cycle feedbacks in a coupled climate model, *Nature*, *408*, 184-187.
- Defries, R. S., R. A. Houghton, M. C. Hansen, C. B. Field, D. Skole, and J. Townshend (2002), Carbon emissions from tropical deforestation and regrowth based on satellite observations for the 1980s and 1990s, *P Natl Acad Sci USA*, *99*, 14256-14261.
- Delucia, E. H., J. G. Hamilton, S. L. Naidu, R. B. Thomas, J. A. Andrews, A. Finzi, M. Lavine, R. Matamala, J. E. Mohan, G. R. Hendrey, and W. H. Schlesinger (1999), Net primary production of a forest ecosystem with experimental CO₂ enrichment, *Science*, *284*, 1177-1179.
- Denning, A. S., et al. (1995), Latitudinal gradient of atmospheric CO₂ due to seasonal exchange with land biota, *Nature*, *376*, 240-243.
- Denning, a. S., et al. (1999), Three-dimensional transport and concentration of SF₆ - A model intercomparison study (TransCom 2), *Tellus B*, *51*, 266-297.
- Dentener, F., et al. (2003a), Interannual variability and trend of CH₄ lifetime as a measure for OH changes in the 1979-1993 time period, *J. Geophys. Res.-atmos.*, *108*, 4442, doi:4410.1029/2002JD002916.
- Dentener, F., et al. (2003b), Trends and inter-annual variability of methane emissions derived from 1979-1993 global CTM simulations, *Atmos Chem Phys*, *3*, 73-88.
- Dlugokencky, E. J., et al. (1996), Changes in CH₄ and CO growth rates after the

- eruption of Mt Pinatubo and their link with changes in tropical tropospheric UV flux, *Geophys. Res. Lett.*, **23**, 2761-2764.
- Dlugokencky, E. J., et al. (2003), Atmospheric methane levels off: Temporary pause or a new steady-state? *Geophys. Res. Lett.*, **30**, 1992, doi:10.1029/2003GL018126.
- Dlugokencky, E. J., et al. (1998), Continuing decline in the growth rate of the atmospheric methane burden, *Nature*, **393**, 447-450.
- Dlugokencky, E. J., et al. (1994), A Dramatic Decrease in the Growth-Rate of Atmospheric Methane in the Northern-Hemisphere during 1992, *Geophys. Res. Lett.*, **21**, 507-507.
- Dlugokencky, E. J., et al. (2001), Measurements of an anomalous global methane increase during 1998, *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 499-502.
- Engelen, R. J., et al. (2004), Estimating atmospheric CO₂ from advanced infrared satellite radiances within an operational 4D-Var data assimilation system: Methodology and first results, *J. Geophys. Res.-atmos.*, **109**, -.
- Engelen, R. J., et al. (2002), On error estimation in atmospheric CO₂ inversions, *J. Geophys. Res.-atmos.*, **107**.
- Enting, I. G. (1993), Inverse Problems in Atmospheric Constituent Studies.3. Estimating Errors in Surface Sources, *Inverse Probl*, **9**, 649-665.
- Enting, I. G. (2000), Green's function methods of tracer inversion, in *Inverse methods in global biogeochemical cycles*, edited by P. Kasibhatla, et al., pp. 19-31, American Geophysical Union, Washington, D.C.
- Enting, I. G. (2002), *Inverse problems in atmospheric constituent transport*, xv, 392 p. pp., Cambridge University Press, Cambridge.
- Enting, I. G., et al. (1995), A Synthesis Inversion of the Concentration and Delta-C-13 of Atmospheric Co₂, *Tellus B*, **47**, 35-52.
- Enting, I. G., and J. V. Mansbridge (1989), Seasonal sources and sinks of atmospheric CO₂: Direct inversion of filtered data, *Tellus*, **41B**, 111-126.
- EPA (2005), Methane Emissions by Source, <http://www.epa.gov/methane/sources.html>, edited.
- Evensen, G. (1994), Sequential Data Assimilation with a Nonlinear Quasi-Geostrophic Model Using Monte-Carlo Methods to Forecast Error Statistics, *J Geophys Res-Oceans*, **99**, 10143-10162.
- Fan, S.-M., et al. (1998), Atmospheric and oceanic CO₂ data and models imply a large terrestrial carbon sink in North America, *Science*, **282**, 442-444.

- FAO (FAO, www.fao.org, 2005), edited.
- Farquhar, G. D., and M. L. Roderick (2003), Atmospheric science: Pinatubo, diffuse light, and the carbon cycle, *Science*, *299*, 1997-1998.
- Feely, R. A., et al. (2002), Seasonal and interannual variability of CO₂ in the equatorial Pacific, *Deep-Sea Res Pt II*, *49*, 2443-2469.
- Folberth, G., et al. (2005), On the role of atmospheric chemistry in the global CO₂ budget, *Geophys. Res. Lett.*, *32*, -.
- Francey, R. J., et al. (1995), Changes in oceanic and carbon uptake since 1982, *Nature*, *373*, 326-330.
- Frankenberg, C., et al. (2006), Satellite cartography of atmospheric methane from SCIAMACHY onboard ENVISAT: Analysis of the years 2003 and 2004, *J. Geophys. Res.*, *111*, D07303, doi: 07310.01029/02005JD006235.
- Frankenberg, C., et al. (2005), Assessing methane emissions from global space-borne observations, *Science*, *308*, 1010-1014.
- Friedlingstein, P., L. Bopp, P. Ciais, J. L. Dufresne, L. Fairhead, H. LeTreut, P. Monfray, and J. Orr (2001), Positive feedback between future climate change and the carbon cycle, *Geophys. Res. Lett.*, *28*, 1543-1546.
- Friedlingstein, P., I. Fung, E. Holland, J. John, G. Brasseur, D. Erickson, and D. Schimel (1995), On the Contribution of CO₂ Fertilization to the Missing Biospheric Sink, *Global. Biogeochem. Cycles*, *9*, 541-556.
- Fung, I., et al. (1991), Three-dimensional model synthesis of global methane cycle, *J. Geophys. Res.*, *96*, 13033-13065.
- Fung, I. Y., et al. (1987), Application of advanced very high resolution radiometer vegetation index to study atmosphere-biosphere exchange of CO₂, *J. Geophys. Res.*, *92*, 2999-3013.
- Fung, I., K. Prentice, E. Matthews, J. Lerner, and G. Russel (1983), Three dimensionnal study of atmospheric CO₂: response to seasonal exchange with the terrestrial biosphere, *J. Geophys. Res.*, *88*, 1281-1294.
- Gerbig, C., et al. (2003a), Toward constraining regional-scale fluxes of CO₂ with atmospheric observations over a continent: 1. Observed spatial variability from airborne platforms, *J. Geophys. Res.-atmos.*, *108*, 4756-ACH4755.
- Gerbig, C., et al. (2003b), Toward constraining regional-scale fluxes of CO₂ with atmospheric observations over a continent: 2. Analysis of COBRA data using a receptor-oriented framework, *J. Geophys. Res.-atmos.*, *108*, 4757-ACH4756.
- GLOBALVIEW-CH₄ (2005), Cooperative Atmospheric Data Integration Project - Methane. CD-ROM, NOAA CMDL [Also available on Internet via anonymous FTP to

- ftp.cmdl.noaa.gov, Path: ccg/ch4/GLOBALVIEW].
- GLOBALVIEW-CO2 (2005), Cooperative Atmospheric Data Integration Project – Carbon dioxide. CD-ROM, NOAA CMDL [Also available on Internet via anonymous FTP to ftp.cmdl.noaa.gov, Path: ccg/co2/GLOBALVIEW].
- Gruber, N., et al. (2002), Interannual variability in the North Atlantic Ocean carbon sink, *Science*, *298*, 2374-2378.
- Gu, L. H., D. D. Baldocchi, S. C. Wofsy, J. W. Munger, J. J. Michalsky, S. P. Urbanski, and T. A. Boden (2003), Response of a deciduous forest to the Mount Pinatubo eruption: Enhanced photosynthesis, *Science*, *299*, 2035-2038.
- Gurney, K. R., et al. (2002), Towards robust regional estimates of CO₂ sources and sinks using atmospheric transport models, *Nature*, *415*, 626-630.
- Gurney, K. R., et al. (2003), TransCom 3 CO₂ inversion intercomparison: 1. Annual mean control results and sensitivity to transport and prior flux information, *Tellus B*, *55*, 555-579.
- Gurney, K. R., et al. (2004), Transcom 3 inversion intercomparison: Model mean results for the estimation of seasonal carbon sources and sinks, *Global. Biogeochem. Cycles*, *18*, -.
- Hansen, J., R. Ruedy, M. Sato, and R. Reynolds (1996), Global surface air temperature in 1995: Return to pre-Pinatubo level, *Geophys. Res. Lett.*, *23*, 1665-1668.
- Hao, W. M., and M.-H. Liu (1994), Spatial distribution of tropical biomass burning in 1980 with 5° by 5° resolution, *Global. Biogeochem. Cycles*, *8*, 495-503.
- Hauglustaine, D. A., et al. (1998), MOZART, a global chemical transport model for ozone and related chemical tracers 2. Model results and evaluation, *J. Geophys. Res.-atmos.*, *103*, 28291-28335.
- Hauglustaine, D. A., and D. H. Ehhalt (2002), A three-dimensional model of molecular hydrogen in the troposphere, *J. Geophys. Res.-atmos.*, *107*, -.
- Hauglustaine, D. A., et al. (2004), Interactive chemistry in the Laboratoire de Meteorologie Dynamique general circulation model: Description and background tropospheric chemistry evaluation, *J. Geophys. Res.-atmos.*, *109*, D04314, doi:04310.01029/02003JD003957.
- Heimann, M. (1995), The global Atmospheric tracer model TM2, Max Planck Institut fur Meteorologie, Hamburg.
- Heimann, M. (1997), A review of the contemporary global carbon cycle and as seen a century ago by Arrhenius and Högbom., *Ambio*, *26*, 17-24.
- Heimann, M., and T. Kaminski (1999), Inverse modeling approaches to infer surface trace gas fluxes from observed atmospheric mixing ratios. Approaches to

- scaling of trace gas fluxes in ecosystems, in *Approaches to scaling of trace gas fluxes in ecosystems*, edited by A. F. Bouwman, pp. 275-295, Elsevier, Amsterdam.
- Heimann, M., and C. D. Keeling (1989), A three-dimensional model of atmospheric CO₂ transport based on observed winds: 2. Model description and simulated tracer experiments, in *Aspects of climate variability in the Pacific and the Western Americas, Geophysical monograph 55*, edited by D. H. Peterson, pp. 237-275, American Geophysical Union, Washington (USA).
- Heimann, M., et al. (1989), A three-dimensional model of atmospheric CO₂ transport based on observed winds: 3. Seasonal cycle and synoptic time scale variations, in *Aspects of climate variability in the Pacific and the Western Americas, Geophysical monograph 55*, edited by D. H. Peterson, pp. 277-303, American Geophysical Union, Washington (USA).
- Hein, R., et al. (1997), An inverse modeling approach to investigate the global atmospheric methane cycle, *Global. Biogeochem. Cycles*, 11, 43-76.
- Hoerling, M., and A. Kumar (2003), The perfect ocean for drought, *Science*, 299, 691-694.
- Houghton, R. A. (2003), Why are estimates of the terrestrial carbon balance so different? *Glob Change Biol*, 9, 500-509.
- Hourdin, F., and A. Armengaud (1999), The use of finite-volume methods for atmospheric advection of trace species. Part I: Test of various formulations in a general circulation model, *Monthly Weather Review*, 127, 822-837.
- Hourdin, F., et al. (1999), Reciprocity of atmospheric transport of trace species, *Comptes Rendus De L Academie Des Sciences Serie Ii Fascicule a-Sciences De La Terre Et Des Planetes*, 329, 623-628.
- Hourdin, F. D., et al. (2002), Parameterization of the dry convective boundary layer based on a mass flux representation of thermals, *J Atmos Sci*, 59, 1105-1123.
- Hourdin, F., and O. Talagrand (2006), Eulerian backtracking of atmospheric tracers. I: Adjoint derivation and parametrization of subgrid-scale transport, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 132, 567-583.
- Hourdin, F., O. Talagrand, and A. Idelkadi (2006), Eulerian backtracking of atmospheric tracers. II: Numerical aspects, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 132, 585-603.
- Houweling, S., et al. (2004), Inverse modeling of CO₂ sources and sinks using satellite data: a synthetic inter-comparison of measurement techniques and their performance as a function of space and time, *Atmos Chem Phys*, 4, 523-538.
- Houweling, S., et al. (2000a), Simulation of preindustrial atmospheric methane to

- constrain the global source strength of natural zones inondées, *J. Geophys. Res.-atmos.*, *105*, 17243-17255.
- Houweling, S., et al. (2000b), The modeling of tropospheric methane: How well can point measurements be reproduced by a global model? *J. Geophys. Res.-atmos.*, *105*, 8981-9002.
- Houweling, S., et al. (1999), Inverse modelling of methane sources and sinks using the adjoint of a global transport model, *Journal of Atmospheric Research*, *104*, 26137-26160.
- IPCC (2001), *Climate change 2001: The scientific basis. Contribution of working group I to the third assessment report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, 881pp pp., Cambridge university press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- Jabaud-Jan, A., N. Metzl, C. Brunet, A. Poisson, and B. Schauer (2004), Interannual variability of the carbon dioxide system in the southern Indian Ocean (20 degrees S-60 degrees S): The impact of a warm anomaly in austral summer 1998, *Global. Biogeochem. Cycles*, *18*, -.
- Janssens, I. A., et al. (2003), Europe's terrestrial biosphere absorbs 7 to 12% of European anthropogenic CO₂ emissions, *Science*, *300*, 1538-1542.
- Kalnay, E., M. Kanamitsu, R. Kistler, W. Collins, D. Deaven, L. Gandin, M. Iredell, S. Saha, G. White, J. Woollen, Y. Zhu, M. Chelliah, W. Ebisuzaki, W. Higgins, J. Janowiak, K. C. Mo, C. Ropelewski, J. Wang, A. Leetmaa, R. Reynolds, R. Jenne, and D. Joseph (1996), The NCEP/NCAR 40-year reanalysis project, *Bulletin of the American Meteorological Society*, *77*, 437-471.
- Kaminski, T., et al. (2001), On aggregation errors in atmospheric transport inversions, *J. Geophys. Res.-atmos.*, *106*, 4703-4715.
- Keeling, C. D. (1960), The concentration and isotopique abundances of carbon dioxide in the atmosphere, *Tellus*, *12*, 200-203.
- Keeling, C. D. (1968), Carbon dioxide in surface ocean waters: 4. global distribution, *J. Geophys. Res.*, *73*, 4543-4553.
- Keeling, C. D., et al. (1989a), A Three-dimensional Model of Atmospheric CO₂ Transport Based on Observed Winds: 1. Analysis of Observational Data, in *Aspects of Climate Variability in the Pacific and Western Americas, Geophysical monograph 55*, edited by D. H. Peterson, pp. 165-236, American Geophysical Union, Washington (USA).
- Keeling, C. D., et al. (1989b), A Three-dimensional Model of Atmospheric CO₂ Transport Based on Observed Winds: 4. Mean annual gradients and interannual variations, in *Aspects of Climate Variability in the Pacific and Western Americas, Geophysical monograph 55*, edited by D. H. Peterson, American Geophysical

Union, Washington (USA).

- Keeling, C. D., et al. (1995), Interannual Extremes in the Rate of Rise of Atmospheric Carbon-Dioxide since 1980, *Nature*, *375*, 666-670.
- Keeling, R. F., and T. H. Peng (1995), Transport of Heat, CO₂ and O₂ by the Atlantic Thermohaline Circulation, *Philos T Roy Soc B*, *348*, 133-142.
- Keeling, C. D., et al. (1996), Increased activity of northern vegetation inferred from atmospheric CO₂ measurements, *Nature*, *382*, 146-149.
- Keeling, R. F., et al. (1996), Global and hemispheric CO₂ sinks deduced from changes in atmospheric O₂ concentration, *Nature*, *381*, 218-221.
- Keppler, F., et al. (2006), Methane emissions from terrestrial plants under aerobic conditions, *Nature*, *439*, 187-191.
- Krinner, G., et al. (2005), A dynamic global vegetation model for studies of the coupled atmosphere-biosphere system, *Global. Biogeochem. Cycles*, *19*, GB1015, doi:10.1029/2003GB002199.
- Krol, M., and J. Lelieveld (2003), Can the variability in tropospheric OH be deduced from measurements of 1,1,1-trichloroethane (methyl chloroform)? *J. Geophys. Res.-atmos.*, *108*, 4125, doi:10.1029/2002JD002423.
- Krol, M. C., et al. (2003), Continuing emissions of methyl chloroform from Europe, *Nature*, *421*, 131-135.
- Krol, M., S. Houweling, B. Bregman, M. van den Broek, A. Segers, P. van Velthoven, W. Peters, F. Dentener, and P. Bergamaschi (2005), The two-way nested global chemistry-transport zoom model TM5: algorithm and applications, *Atmos Chem Phys*, *5*, 417-432.
- Langenfelds, R. L., et al. (2002), Interannual growth rate variations of atmospheric CO₂ and its delta C-13, H-2, CH₄, and CO between 1992 and 1999 linked to biomass burning, *Global. Biogeochem. Cycles*, *16*, 1048, doi:10.1029/2001GB001466.
- Lathiere, J., et al. (2005), Past and future changes in biogenic volatile organic compound emissions simulated with a global dynamic vegetation model, *Geophys. Res. Lett.*, *32*,
- Law, R. M., P. J. Rayner, A. S. Denning, D. Erickson, H. M., S. C. Piper, M. Ramonet, S. Taguchi, J. A. Taylor, C. M. Trudinger, and I. G. Watterson (1996), Variations in modelled atmospheric transport of carbon dioxide and the consequences for CO₂ inversions, *Global. Biogeochem. Cycles*, *10*, 783-796.
- Le Quere, C., et al. (2003), Two decades of ocean CO₂ sink and variability, *Tellus B*, *55*, 649-656.

- Le Quéré, C. (1999), Variabilité du carbone océanique de 1979 à 1997: modélisation et évaluation, 208 pp, Thèse de l'université Paris VI, Paris.
- Levin, I., et al. (2003), A novel approach for independent budgeting of fossil fuel CO₂ over Europe by (CO₂)-C-14 observations, *Geophys. Res. Lett.*, *30*,
- Lorenz, E. (1963), Deterministic non periodic flow, *J. Atm. Sci.*, *20*, 130-141.
- Manning, M. R., et al. (2005), Short term variations in the oxidizing power of the atmosphere, *Nature*, *436*, 1001-1004.
- Marland, G., et al. (1997), CO₂ from fossil fuel burning: updates on the magnitude, distribution, and uncertainty of emissions estimates (AB0135 ORAL), paper presented at Fifth International Carbon Dioxide Conference, Cairns, Australia.
- Marland, G., R. M. Rotty, and N. L. Treat (1985), CO₂ from fossil fuel burning: global distribution of emissions, *Tellus*, *37*, 243-258.
- Matthews, E., and I. Fung (1987), Methane emissions from natural wetlands, global distribution, area and environmental characteristics of sources, *Global. Biogeochem. Cycles*, *1*, 61-86.
- Matthews, E., and I. Fung (1991), Methane emissions from rice cultivation: geographic and seasonal distribution of cultivated areas and emissions, *Global. Biogeochem. Cycles*, *5*, 3-24.
- McCulloch, A., and P. M. Midgley (2001), The history of methyl chloroform emissions: 1951-2000, *Atmos. Environ.*, *35*, 5311-5319.
- McKinley, G. A., C. Rödenbeck, M. Gloor, S. Houweling, and M. Heimann (2004), Pacific dominance to global air-sea CO₂ flux variability: A novel atmospheric inversion agrees with ocean models, *Geophys. Res. Lett.*, *31*, -.
- Metzl, N., B. Tilbrook, and A. Poisson (1999), The annual fCO₂ cycle and the air-sea CO₂ flux in the sub-Antarctic Ocean, *Tellus B*, *51*, 849-861.
- Michalak, A. M., L. Bruhwiler, and P. P. Tans (2004), A geostatistical approach to surface flux estimation of atmospheric trace gases, *J. Geophys. Res.-atmos.*, *109*, -.
- Michalak, A. M., et al. (2005), Maximum likelihood estimation of covariance parameters for Bayesian atmospheric trace gas surface flux inversions, *J. Geophys. Res.*, *110*.
- Mikaloff Fletcher, S. E. M., et al. (2004a), CH₄ sources estimated from atmospheric observations of CH₄ and its C-13/C-12 isotopic ratios: 1. Inverse modeling of source processes, *Global. Biogeochem. Cycles*, *18*, GB4004, doi:4010.1029/2004GB002223.
- Mikaloff Fletcher, S. E. M., et al. (2004b), CH₄ sources estimated from atmospheric

- observations of CH₄ and its C-13/C-12 isotopic ratios: 2. Inverse modeling of CH₄ fluxes from geographical regions, *Global. Biogeochem. Cycles*, *18*, GB4005, doi:4010.1029/2004GB002224.
- Miller, J. B., et al. (2002), Development of analytical methods and measurements of C-13/C-12 in atmospheric CH₄ from the NOAA Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory global air sampling network, *J. Geophys. Res.-atmos.*, *107*, 107, doi:10.1029/2001JD000630.
- Monnin, E., A. Indermuhle, A. Dallenbach, J. Fluckiger, B. Stauffer, T. F. Stocker, D. Raynaud, and J. M. Barnola (2001), Atmospheric CO₂ concentrations over the last glacial termination, *Science*, *291*, 112-114.
- Montzka, S. A., et al. (2000), New observational constraints for atmospheric hydroxyl on global and hemispheric scales, *Science*, *288*, 500-503.
- Nemani, R., M. White, P. Thornton, K. Nishida, S. Reddy, J. Jenkins, and S. Running (2002), Recent trends in hydrologic balance have enhanced the terrestrial carbon sink in the United States, *Geophys. Res. Lett.*, *29*, -.
- Oeschger, H., et al. (1975), A box diffusion model to study the carbon dioxide exchange in nature, *Tellus*, *27*, 168-191.
- Olivier, J. G. J., and J. J. M. Berdowski (2001), Global emissions sources and sinks, in *The Climate System*, edited by J. Berdowski, et al., p. p. 33-37.
- Pacala, S. W., et al. (2001), Consistent land- and atmosphere-based US carbon sink estimates, *Science*, *292*, 2316-2320.
- Page, S. E., et al. (2002), The amount of carbon released from peat and forest fires in Indonesia during 1997, *Nature*, *420*, 61-65.
- Peters, W., et al. (2005), An ensemble data assimilation system to estimate CO₂ surface fluxes from atmospheric trace gas observations, *J. Geophys. Res.-atmos.*, *110*, -.
- Petron, G., et al. (2004), Monthly CO surface sources inventory based on the 2000-2001 MOPITT satellite data, *Geophys. Res. Lett.*, *31*, -.
- Peylin, P., et al. (2002), Influence of transport uncertainty on annual mean and seasonal inversions of atmospheric CO₂ data, *J. Geophys. Res.-atmos.*, *107*, -.
- Peylin, P., et al. (2001), Inverse modeling of atmospheric carbon dioxide fluxes - Response (vol 294, pg U1, 2001), *Science*, *294*, 2292-2292.
- Peylin, P., et al. (1999), Time-Dependant vs Time-Independent inversion of the atmospheric CO₂ observations: consequences for the regional fluxes, in *Inverse methods in global biogeochemical cycles*, *Geophysical Monograph 114*, edited by P. Kashibata, et al., American Geophysical Union, Washington, DC.

- Peylin, P., et al. (2005a), Multiple constraints on regional CO₂ flux variations over land and oceans, *Global. Biogeochem. Cycles*, 19, -.
- Peylin, P., et al. (2005b), Daily CO₂ flux estimates over Europe from continuous atmospheric measurements: 1, inverse methodology, *Atmos Chem Phys*, 5, 3173-3186.
- Platt, U., W. Allan, and D. Lowe (2004), Hemispheric average Cl atom concentration from ¹³C/¹²C ratios in atmospheric methane, *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 2393–2399.
- Prigent, C., et al. (2001), Remote sensing of global wetland dynamics with multiple satellite data sets, *Geophys. Res. Lett.*, 28, 4631-4634, doi:4610.1029/2001GL013263.
- Prinn, R. G., et al. (2005), Evidence for variability of atmospheric hydroxyl radicals over the past quarter century, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L07809, doi:07810.01029/02004GL022228.
- Prinn, R. G., et al. (2001), Evidence for substantial variations of atmospheric hydroxyl radicals in the past two decades (vol 292, pg 1882, 2001), *Science*, 293, 1048-1048.
- Quay, P., et al. (1999), The isotopic composition of atmospheric methane, *Global. Biogeochem. Cycles*, 13, 445-461.
- Ramonet, M., et al. (2002), Three years of aircraft-based trace gas measurements over the Fyodorovskoye southern taiga forest, 300 km north-west of Moscow, *Tellus B*, 54, 713-734.
- Ramonet, M. (1994), Modélisation du transport atmosphérique du dioxyde de carbone dans l'hémisphère sud, 300pp, Thesis, University Paris VII, Paris.
- Rayner, P. J., et al. (1999), Reconstructing the recent carbon cycle from atmospheric CO₂, delta C-13 and O-2/N-2 observations, *Tellus B*, 51, 213-232.
- Rayner, P. J., and R. M. Law (1999), The interannual variability of the global carbon cycle, *Tellus B*, 51, 210-212.
- Rayner, P. J., et al. (2005), Two decades of terrestrial carbon fluxes from a carbon cycle data assimilation system (CCDAS), *Global. Biogeochem. Cycles*, 19.
- Revelle, R., and H. E. Suess (1957), Carbon Dioxide Exchange between Atmosphere and Ocean and the Question of an Increase of Atmospheric CO₂ during the Past Decades, *Tellus*, 9, 18-27.
- Rivier, L., et al. (2006), Evaluation of SF₆, C₂Cl₄ and CO to approximate Fossil Fuel CO₂ in the Northern Hemisphere, using a Chemistry Transport Model, *J. Geophys. Res.*, *Accepted*.

- Rödenbeck, C., et al. (2003), CO₂ flux history 1982-2001 inferred from atmospheric data using a global inversion of atmospheric transport, *Atmos Chem Phys*, 3, 1919-1964.
- Rödenbeck, C. (2005), Estimating CO₂ sources and sinks from atmospheric mixing ratio measurements using a global inversion of atmospheric transport. Technical report, Max Planck Institute for Biogeochemistry-6, Jena, ISSN 1615-7400.
- Rodgers, C. D. (2000), *Inverse methods for atmospheric sounding: theory and practise*, 240pp., World Scientific publ., Singapore, London.
- Santaren, J.-D. (2006), Optimisation des paramètres du modèle de biosphère ORCHIDEE à partir de mesures sur site des flux de carbone, d'eau et d'énergie, 187 pp, Université de Versailles Saint-Quentin en Yvelines, Versailles.
- Schimel, D. S., et al. (2001), Recent patterns and mechanisms of carbon exchange by terrestrial ecosystems, *Nature*, 414, 169-172.
- Schmid, H. P. (1994), Source Areas for Scalars and Scalar Fluxes, *Boundary-Layer Meteorology*, 67, 293-318.
- Siegenthaler, U., and H. Oeschger (1978), Predicting future atmospheric carbon dioxide levels, *Science*, 199, 388-395.
- Simmonds, P. G., et al. (2005), A burning question. Can recent growth rate anomalies in the greenhouse gases be attributed to large-scale biomass burning events? *Atmos. Environ.*, 39, 2513-2517.
- Spahni, R., J. Chappellaz, T. F. Stocker, L. Louergue, G. Hausammann, K. Kawamura, J. Fluckiger, J. Schwander, D. Raynaud, V. Masson-Delmotte, and J. Jouzel (2005), Atmospheric methane and nitrous oxide of the late Pleistocene from Antarctic ice cores, *Science*, 310, 1317-1321.
- Spivakovsky, C. M., et al. (2000), Three-dimensional climatological distribution of tropospheric OH: Update and evaluation, *J. Geophys. Res.-atmos.*, 105, 8931-8980.
- Takahashi, T., et al. (2002), Global sea-air CO₂ flux based on climatological surface ocean pCO₂, and seasonal biological and temperature effects, *Deep-Sea Res Pt II*, 49, 1601-1622.
- Tans, P. P., et al. (1989a), Latitudinal distribution of sources and sinks of atmospheric carbon dioxide derived from surface observations and an atmospheric transport model, *J. Geophys. Res.*, 94-D4, 5151-5172.
- Tans, P. P., et al. (1990), Observational Constraints on the Global Atmospheric CO₂ budget, *Science*, 247, 1431-1438.
- Tarantola, A. (1987), *Inverse problem theory*, Amsterdam, The Netherlands.

- Tarantola, A., and B. Vallette (1982), Generalized nonlinear inverse problems solved using the least square criterion, *Reviews of Geophysics and Space Physics*, *20*, 219-232.
- Thoning, K. W., et al. (1989), Atmospheric carbon dioxide at Mauna Loa Observatory. 2. Analysis of the NOAA GMCC data, 1974,1985, *J. Geophys. Res.*, *94*, 8549-8565.
- Tiedtke, M. (1989), A comprehensive flux scheme for cumulus parametrization in large-scale models, *Monthly Weather Review*, *117*, 1779-1800.
- Turquety, S., J. Hadji-Lazaro, C. Clerbaux, D. A. Hauglustaine, S. A. Clough, V. Casse, P. Schlusser, and G. Megie (2004), Operational trace gas retrieval algorithm for the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer, *J. Geophys. Res.-atmos.*, *109*, -.
- Tyler, S. C., H. O. Ajie, M. L. Gupta, R. J. Cicerone, D. R. Blake, and E. J. Dlugokencky (1999), Stable carbon isotopic composition of atmospheric methane: A comparison of surface level and free tropospheric air, *J. Geophys. Res.-atmos.*, *104*, 13895-13910.
- Uppala, S. M., et al. (2005), The ERA-40 Reanalysis, *J. Roy. Met. Soc.*, *131*, 2961-3012.
- Van der Werf, G. R., et al. (2004), Continental-scale partitioning of fire emissions during the 1997 to 2001 El Nino/La Nina period, *Science*, *303*, 73-76.
- Van der Werf, G. R., et al. (2003), Carbon emissions from fires in tropical and subtropical ecosystems, *Glob Change Biol*, *9*, 547-562.
- Van Noije, T. P. C., H. J. Eskes, F. Dentener, D. S. Stevenson, K. Elingsen, and. (2006), Multi-model ensemble simulations of tropospheric NO₂ compared with GOME retrievals for the year 2000, *ACPD*, *6*, 2965-3047.
- Vitousek, P. M., J. D. Aber, R. W. Howarth, G. E. Likens, P. A. Matson, D. W. Schindler, W. H. Schlesinger, and D. G. Tilman (1997), Human alteration of the global nitrogen cycle: Sources and consequences, *Ecol Appl*, *7*, 737-750.
- Walter, B. P., M. Heimann, and E. Matthews (2001), Modeling modern methane emissions from natural wetlands 2. Interannual variations 1982-1993, *J. Geophys. Res.-atmos.*, *106*, 34207-34219.
- Wang, J. S., et al. (2004), A 3-D model analysis of the slowdown and interannual variability in the methane growth rate from 1988 to 1997, *Global. Biogeochem. Cycles*, *18*, 3011, doi:3010.1029/2003GB002180.
- Wanninkhof, R. (1992), Relationship between wind speed and gaz exchange over the ocean, *J. Geophys. Res.*, *97*, 7373-7382.

- Warwick, N. J., et al. (2002), The impact of meteorology on the interannual growth rate of atmospheric methane, *Geophys. Res. Lett.*, 29, 1947, doi:10.1029/2002GLO15282.
- WMO (2003), Global Atmospheric Watch World Data Centre for Greenhouse Gases, 92 pp, Japan Meteorological Agency in co-operation with World Meteorological Organisation.
- Woodwell, G. M., R. H. Whittaker, W. a. Reiners, G. E. Likens, C. C. Delwiche, and D. B. Botkin (1978), Biota and World Carbon Budget, *Science*, 199, 141-146.
- Wuebbles, D. J., and K. Hayhoe (2002), Atmospheric methane and global change, *Earth-Science Reviews*, 57, 177-210.
- Zupanski, M. (2005), Maximum likelihood ensemble filter: Theoretical aspects, *Monthly Weather Review*, 133, 1710-1726.

Publications de rang A en premier auteur ou en co-auteur (+thèse)

1. Baker, D. F., R.M. Law, K.R. Gurney, P. Rayner, P. Peylin, A.S. Denning, P. **Bousquet**, Bruhwiler, Y.-H. Chen, P. Ciais, I.Y. Fung, M. Heimann, J. John, T. Maki, S. Maksyutov, K. Masarie, M. Prather, B. Pak, S. Taguchi, and Z. Zhu (2006), TransCom3 inversion intercomparison: Impact of transport model errors on the interannual variability of regional CO₂ fluxes, 1988–2003, *Global Biogeochem. Cycles*, **20**, doi:10.1029/2004GB002439.
2. **Bousquet**, P. (1998), Optimisation des flux nets de CO₂: assimilation des mesures atmospheriques de CO₂ et de ¹³CO₂ dans un modèle de transport tridimensionnel, 300p. pp, Thèse de l'Université Paris VI.
3. **Bousquet**, P., P. Ciais, J. B. Miller, E. J. Dlugokencky, D. A. Hauglustaine, C. Prigent, G. van der Werf, P. Peylin, E. Brunke, C. Carouge, R. L. Langenfelds, J. Lathiere, P. F., M. Ramonet, M. Schmidt, L. P. Steele, S. C. Tyler, and J. W. C. White (2006), Contribution of anthropogenic and natural sources methane emissions variability, *Nature*, **443**, 439-443.
4. **Bousquet**, P., P. Ciais, P. Monfray, Y. Balkanski, M. Ramonet, and P. Tans (1996), Influence of two atmospheric transport models on inferring sources and sinks of atmospheric CO₂, *Tellus B*, **48**, 568-582.
5. **Bousquet**, P., P. Ciais, P. Peylin, M. Ramonet, and P. Monfray (1999a), Inverse modeling of annual atmospheric CO₂ sources and sinks 1. Method and control inversion, *J. Geophys. Res.-atmos.*, **104**, 26161-26178.
6. **Bousquet**, P., A. Gaudry, P. Ciais, V. Kazan, P. Monfray, P. G. Simmonds, S. G. Jennings, and T. C. O'Connor (1997), Atmospheric concentration variations recorded at Mace-Head, Ireland, from 1992 to 1994, *Physics and Chemistry of the Earth*, **21**, 477-481.
7. **Bousquet**, P., D. A. Hauglustaine, P. Peylin, C. Carouge, and P. Ciais (2005), Two decades of OH variability as inferred by an inversion of atmospheric transport and chemistry of methyl chloroform, *Atmos Chem Phys*, **5**, 2635-2656.
8. **Bousquet**, P., P. Peylin, P. Ciais, C. Le Quere, P. Friedlingstein, and P. P. Tans (2000), Regional changes in carbon dioxide fluxes of land and oceans since 1980, *Science*, **290**, 1342-1346.
9. **Bousquet**, P., P. Peylin, P. Ciais, M. Ramonet, and P. Monfray (1999b), Inverse modeling of annual atmospheric CO₂ sources and sinks 2. Sensitivity study, *J. Geophys. Res.-atmos.*, **104**, 26179-26193.
10. Carouge, C., P. **Bousquet**, J. L. Rayner, P. Peylin, and P. Ciais (2006), CO₂ daily european observations as a constraint to infer CO₂ land fluxes over Europe, *in prep.*

11. Chazette, P., J. Pelon, C. Moulin, F. Dulac, I. Carrasco, W. Guelle, P. **Bousquet**, and P. H. Flamant (2001), Lidar and satellite retrieval of dust aerosols over the Azores during SOFIA/ASTEX, *Atmos. Environ.*, **35**, 4297-4304.
12. Chevallier, F., M. Fisher, P. Peylin, S. Serrar, P. **Bousquet**, F.-M. Bréon, A. Chédin, and P. Ciais (2005), Inferring CO₂ sources and sinks from satellite observations: Method and application to TOVS data, *J. Geophys. Res.*, **110**, D24309, doi:24310.21029/22005JD006390.
13. Chiapello, I., G. Bergametti, B. Chatenet, P. **Bousquet**, F. Dulac, and E. S. Soares (1997), Origins of African dust transported over the northeastern tropical Atlantic, *J. Geophys. Res.-atmos.*, **102**, 13701-13709.
14. Ciais, P., P. **Bousquet**, A. Freibauer, and T. Naegler (2006), On the Horizontal Displacement of Carbon Associated to Agriculture and How it Impacts Atmospheric CO₂ gradients., *en revue à JGR*
15. Ciais, P., P. Peylin, and P. **Bousquet** (1999), The regional distribution of the biospheric carbon fluxes as inferred from atmospheric CO₂ measurements and models., *Ecological Applications, Special Issue of the 1st GCTE conference, March 1998*, **10**, 1574-1589.
16. Gurney, K. R., R. M. Law, A. S. Denning, P. J. Rayner, D. Baker, P. **Bousquet**, L. Bruhwiler, Y. H. Chen, P. Ciais, S. Fan, I. Y. Fung, M. Gloor, M. Heimann, K. Higuchi, J. John, T. Maki, S. Maksyutov, K. Masarie, P. Peylin, M. Prather, B. C. Pak, J. Randerson, J. Sarmiento, S. Taguchi, T. Takahashi, and C. W. Yuen (2002), Towards robust regional estimates of CO₂ sources and sinks using atmospheric transport models, *Nature*, **415**, 626-630.
17. Gurney, K. R., R. M. Law, A. S. Denning, P. J. Rayner, D. Baker, P. **Bousquet**, L. Bruhwiler, Y. H. Chen, P. Ciais, S. M. Fan, I. Y. Fung, M. Gloor, M. Heimann, K. Higuchi, J. John, E. Kowalczyk, T. Maki, S. Maksyutov, P. Peylin, M. Prather, B. C. Pak, J. Sarmiento, S. Taguchi, T. Takahashi, and C. W. Yuen (2003), TransCom 3 CO₂ inversion intercomparison: 1. Annual mean control results and sensitivity to transport and prior flux information, *Tellus B*, **55**, 555-579.
18. Gurney, K. R., R. M. Law, A. S. Denning, P. J. Rayner, B. C. Pak, D. Baker, P. **Bousquet**, L. Bruhwiler, Y. H. Chen, P. Ciais, I. Y. Fung, M. Heimann, J. John, T. Maki, S. Maksyutov, P. Peylin, M. Prather, and S. Taguchi (2004), Transcom 3 inversion intercomparison: Model mean results for the estimation of seasonal carbon sources and sinks, *Global. Biogeochem. Cycles*, **18**, -.
19. Le Quere, C., O. Aumont, L. Bopp, P. **Bousquet**, P. Ciais, R. Francey, M. Heimann, C. D. Keeling, R. F. Keeling, H. Khesghi, P. Peylin, S. C. Piper, I. C. Prentice, and P. J. Rayner (2003), Two decades of ocean CO₂ sink and variability, *Tellus B*, **55**, 649-656.
20. Lucht, W., I. C. Prentice, R. B. Myneni, S. Sitch, P. Friedlingstein, W. Cramer, P. **Bousquet**, W. Buermann, and B. Smith (2002), Climatic control of the high-

- latitude vegetation greening trend and Pinatubo effect, *Science*, **296**, 1687-1689.
21. Mihalopoulos, N., E. Stephanou, M. Kanakidou, S. Pilitsidis, and P. Bousquet (1997), Tropospheric aerosol ionic composition in the Eastern Mediterranean region, *Tellus B*, **49**, 314-326.
 22. Moulin, C., C. E. Lambert, U. Dayan, V. Masson, M. Ramonet, P. **Bousquet**, M. Legrand, Y. J. Balkanski, W. Guelle, B. Marticorena, G. Bergametti, and F. Dulac (1998), Satellite climatology of African dust transport in the Mediterranean atmosphere, *J. Geophys. Res.-atmos.*, **103**, 13137-13144.
 23. Patra, P. K., K. R. Gurney, A. S. Denning, S. Maksyutov, T. Nakazawa, D. Baker, P. **Bousquet**, L. Bruhwiler, Y. H. Chen, P. Ciais, S. M. Fan, I. Fung, M. Gloor, M. Heimann, K. Higuchi, J. John, R. M. Law, T. Maki, B. C. Pak, P. Peylin, M. Prather, P. J. Rayner, J. Sarmiento, S. Taguchi, T. Takahashi, and C. W. Yuen (2006), Sensitivity of inverse estimation of annual mean CO₂ sources and sinks to ocean-only sites versus all-sites observational networks, *Geophys. Res. Lett.*, **33**, -.
 24. Peylin, P., D. Baker, J. Sarmiento, P. Ciais, and P. **Bousquet** (2002), Influence of transport uncertainty on annual mean and seasonal inversions of atmospheric CO₂ data, *J. Geophys. Res.-atmos.*, **107**.
 25. Peylin, P., P. **Bousquet**, and P. Ciais (2001), Inverse modeling of atmospheric carbon dioxide fluxes - Response (vol 294, pg U1, 2001), *Science*, **294**, 2292-2292.
 26. Peylin, P., P. **Bousquet**, P. Ciais, and P. Monfray (1999), Time-Dependant vs Time-Independent inversion of the atmospheric CO₂ observations: consequences for the regional fluxes, in *Inverse methods in global biogeochemical cycles, Geophysical Monograph 114*, edited by P. Kashibata, et al., American Geophysical Union, Washington, DC.
 27. Peylin, P., P. **Bousquet**, C. Le Quere, S. Sitch, P. Friedlingstein, G. McKinley, N. Gruber, P. Rayner, and P. Ciais (2005a), Multiple constraints on regional CO₂ flux variations over land and oceans, *Global. Biogeochem. Cycles*, **19**, -.
 28. Peylin, P., P. J. Rayner, P. **Bousquet**, C. Carouge, F. Hourdin, P. Heinrich, P. Ciais, and A. Contributors (2005b), Daily CO₂ flux estimates over Europe from continuous atmospheric measurements: 1, inverse methodology, *Atmos Chem Phys*, **5**, 3173-3186.
 29. Ramonet, M., J. C. LeRoulley, P. **Bousquet**, and P. Monfray (1996), Radon-222 measurements during the TROPOZ II campaign and comparison with a global atmospheric transport model, *J Atmos Chem*, **23**, 107-136.
 30. Rivier, L., P. Ciais, D. Hauglustaine, P. S. Bakwin, P. **Bousquet**, P. Peylin, and A. Klonecki (2006), Evaluation of SF₆, C₂Cl₄ and CO to approximate Fossil Fuel CO₂ in the Northern Hemisphere, using a Chemistry Transport Model, *J. Geophys.*

Res., 111, D16311, doi:10.1029/2005JD006725.

31. Schimel, D. S., J. I. House, K. A. Hibbard, P. **Bousquet**, P. Ciais, P. Peylin, B. H. Braswell, M. J. Apps, D. Baker, A. Bondeau, J. Canadell, G. Churkina, W. Cramer, A. S. Denning, C. B. Field, P. Friedlingstein, C. Goodale, M. Heimann, R. A. Houghton, J. M. Melillo, B. Moore, D. Murdiyarso, I. Noble, S. W. Pacala, I. C. Prentice, M. R. Raupach, P. J. Rayner, R. J. Scholes, W. L. Steffen, and C. Wirth (2001), Recent patterns and mechanisms of carbon exchange by terrestrial ecosystems, *Nature*, *414*, 169-172.

Activités de recherche : projets nationaux et internationaux

NOM	DATES	NATURE	RÔLE DANS LE PROJET
AEROCARB <i>Bilan Européen de CO₂</i>	2000-2003	UE FP5	COLL
NOCES <i>Flux air-mer de CO₂ dans le Pacifique Nord et l'Atlantique Nord</i>	2002-2005	UE FP5	PI
NITROEUROPE <i>Bilan global du protoxyde d'azote atmosphérique (N₂O)</i>	2006-2010	UE FP6	COLL
CARBOEUROPE-IP <i>Bilan européen du CO₂</i>	2004-2008	UE FP6	COLL
FRAISE-PROOF <i>Flux air-mer en CO₂</i>	1999-2002	INSU	COLL
FLAMENCO2 <i>Flux air-mer en CO₂</i>	2003-2005	INSU-PROOF	CO
CARBOCONTROLE <i>Quantification des flux et stocks de carbone au niveau Européen et national</i>	2002-2004	GICC	PI
ESA study <i>Potentiel des mesures satellites des gaz à effet de serre</i>	2003	ESA-AO-3086	PI
GEOMON <i>Observatoire du système Terre</i>	2007-2011	UE FP6	PI

CO = coordinateur
 PI = participant principal
 COLL = collaborateur

Activités d'enseignement et d'encadrement

Etudiants en maîtrise, DEA, DESS, master, thèse et postdocs :

PRENOM	NOM	TAUX d'ENCADREMENT	PERIODE	STATUT	DEBOUCHES
Anne	CHEVILLARD	50	Mars-Juil 1998	MAITRISE	THESE + IRSN <i>Implémentation du format NETCDF dans le post-traitement du modèle de transport LMDZ</i>
Aurélië	JABAUD	30	Mars-Juil 1998	DEA	<i>Variations spatio-temporelles du CO₂ et du $\delta^{13}C$ dans l'océan austral</i>
Hélène	JAMAIS	20	1998-1999	DEA	Soc. SGS <i>Variabilité du CO₂ atmosphérique dans l'océan indien : Etude des échanges air-mer</i>
Stéphanie	AUDUC	30	1998-1999	DEA	<i>Etude du profil vertical du CO₂ atmosphérique au dessus de la forêt d'Orléans</i>
Catherine	LAVERGNE	80	Mars-Sep 2000	DESS	<i>Optimisation d'un schéma numérique d'inversion de données de CO₂ atmosphérique</i>
Thomas	FORTIN	50	Mars-Sep 2001	MAITRISE	<i>Optimisation des flux de CO₂ par une approche inverse : amélioration du schéma numérique</i>
Pauline	COUSINAT	100	Jan-Mai 2002	Stage ingé.	THESE <i>Etude du cycle du méthane atmosphérique</i>
Léonard	RIVIER	50	2002-2003	POSTDOC	CEA <i>Inversions atmosphériques (projet EU aerocarb)</i>
Claire	CAROUGE	80	Mars-Juil 2002	DEA	THESE <i>Optimisation des flux de CO₂ européens par inversions de données continues</i>
Diégo	SANTAREN	20	Mars-Juil 2002	DEA	ENSEIGNANT <i>Optimisation de paramètres du modèle de végétation ORCHIDEE par inversions de données.</i>
Cyril	MESSAGER	20	Mars-Juil 2003	DEA	THESE <i>Comparaison des mesures aéroportées de CO₂ du réseau RAMCES avec les simulations du modèle LMDZ</i>
Hervé	BRAUD	80	2002-2003	DEA	THESE <i>Etude du rapport CO/CO₂ en région parisienne</i>
Roger	DARGAVILLE	30	2002-2004	POSTDOC	Soc. CLIMPACT <i>Modélisation du CO₂ atmosphérique à l'aide du modèle LMDZ</i>
Irène	XUERE	30	2004-2005	POSTDOC	CNAP <i>Analyse des données aéroportées de CO₂ atmosphérique du réseau RAMCES</i>
Tobias	NAEGLER	20	2005-2006	POSTDOC	en cours <i>Simulation tridimensionnelle des concentrations de ¹⁴CO₂ dans l'atmosphère avec le modèle LMDZ</i>
Claire	CAROUGE	50	Oct 2002-Fev06	THESE	POSTDOC <i>Vers une optimisation des flux de CO₂ européens journaliers par inversions de mesures atmosphériques</i>
Thomas	LAUVAUX	30	2005-2008	THESE	en cours <i>Optimisation des flux de CO₂ à partir de la modélisation méso-échelle du transport atmosphérique</i>
Olivia	LEROY	100	Juin-Sep. 2006	MASTER1	Master2 <i>Optimisation de la représentation des concentrations de CO₂ simulées par LMDZ</i>
Marion	DEVAUX	30	Mai-Sep. 2006	Stage Ingé.	THESE <i>Mise en oeuvre d'un schéma d'assimilation multi espèce pour l'optimisation des émissions de GES.</i>

Encadrement de personnels techniques contractuels

PRENOM	NOM	TAUX d'ENCADREMENT	PERIODE	STATUT	DEBOUCHES
Véronique <i>Support au développement des codes numériques de transport directs et inverses</i>	MONTANDON	30	2001-2003	CDD	Fonction pub. Terr.
Abderhammane <i>Optimisation et gestion du code numérique LMDZ</i>	IDELKADI	70	2002-2004	CDD	POSTDOC
François <i>Post-traitement des simulations de transport atmosphérique LMDZ</i>	DELAGE	30	2005-2008	CDD	en cours

Organisation de la recherche et de l'université

- Membre du Conseil National des Universités (CNU), section 37 (depuis 2003).
- Membre du conseil de l'OSU-IPSL (2002-2006)
- Membre élu suppléant du conseil de laboratoire du LSCE-IPSL (2006-2008)
- Membre du conseil d'administration de l'UVSQ (2001-2004)
- Rapporteur de nombreux articles scientifiques (JGR, Science, ACP, GRL, ...)

Enseignement

- Maître de conférences à l'UVSQ (depuis 1998). 192h d'enseignement par an (minimum).
- Enseignements principaux en physico-chimie de l'atmosphère
- Co-responsable du master professionnel Qualité de l'air et lutte contre le bruit de l'UVSQ)
- Responsable de la licence Physique-Chimie, Environnement (Habilitation 2005)
- Participation aux enseignements de master de l'université Pierre et Marie Curie (Paris6)
- Participation aux enseignements de master de l'université Paris Sud (Paris11)

Articles scientifiques

Trois de mes articles publiés sont donnés dans les pages suivantes afin d'illustrer le propos du manuscrit :

Bousquet, P., P. Ciais, J. B. Miller, E. J. Dlugokencky, D. A. Hauglustaine, C. Prigent, G. van der Werf, P. Peylin, E. Brunke, C. Carouge, R. L. Langenfelds, J. Lathiere, P. F., M. Ramonet, M. Schmidt, L. P. Steele, S. C. Tyler, and J. W. C. White (2006), Contribution of anthropogenic and natural sources methane emissions variability, *Nature*, *443*, 439-443.

Bousquet, P., D. A. Hauglustaine, P. Peylin, C. Carouge, and P. Ciais (2005), Two decades of OH variability as inferred by an inversion of atmospheric transport and chemistry of methyl chloroform, *Atmos Chem Phys*, *5*, 2635-2656.

Bousquet, P., P. Peylin, P. Ciais, C. Le Quere, P. Friedlingstein, and P. P. Tans (2000), Regional changes in carbon dioxide fluxes of land and oceans since 1980, *Science*, *290*, 1342-1346.