

Synergie entre modélisation numérique et observations des gaz traces pour une meilleure compréhension des émissions, du transport et de la chimie de l'ozone et du méthane

**Habilitation à diriger des recherches de
l'université Paris-Saclay**

**présentée et soutenue à Paris-Saclay,
le 27 janvier 2023, par**

Marielle SAUNOIS

Composition du jury :

**Philippe Bousquet
Claire Granier
Vincent-Henri Peuch
Peter Rayner
Gaëlle Dufour
Kathy Law
Dominique Serça**

Président du jury
Rapporteuse
Rapporteur
Rapporteur
Examinatrice
Examinatrice
Examineur



Remerciements

Ces deux pages sont sans doute les pages les plus difficiles à commencer et à écrire. Au delà d'une étape importante dans une carrière, la rédaction de ce manuscrit et sa soutenance me font faire des allers et retours vers des personnes, des sujets et des lieux qui ont jalonné mon parcours de formation et de recherche. Le choix de la composition du jury boucle la boucle, enroule les interactions ténues des problématiques (climat/qualité de l'air) et des échelles, mélange les instituts et laboratoires.

Comme une histoire justifiant mon parcours, mes remerciements académiques (mais les bénéfiques vont bien au delà) seront chronologiques - la simplicité d'un choix complexe.

Mes remerciements doivent donc s'adresser tout d'abord à François Ravetta qui m'a fait découvrir les sciences de l'environnement et du climat il y a presque 20 ans durant un cours d'ouverture en maîtrise.

Je remercie tout particulièrement Claire Granier qui m'a formée lors de mon stage en maîtrise à Hambourg, puis qui m'a accueillie à Boulder. C'est un immense plaisir et honneur de te compter dans mon jury de HDR.

Je remercie évidemment mes encadrantes de thèse (Céline Mari et Valérie Thouret) et les collègues du Laboratoire d'Aérodologie de Toulouse pour leur soutien, leur disponibilité et leur encadrement scientifique pendant trois ans. Les souvenirs des missions en Afrique resteront mémorables ! Merci de m'avoir encouragée à partir 3 mois aux Etats-Unis pendant ma thèse dans l'équipe de D. J. Jacob à Harvard. Le contexte du programme de recherche AMMA, ce séjour de 3 mois à Boston et les nombreuses conférences au cours de ces 3 années m'ont permis de tisser un début de réseau, de mettre des visages sur des noms de papiers et de m'enrichir rapidement de la connaissance scientifique sur la problématique de l'ozone. Pour tout cela, Céline et Valérie, je vous remercie !

Clin d'oeil au passé, je remercie les membres du jury : Kathy Law et Vincent-Henri Peuch que j'ai d'abord connu de nom puis dans des conférences et collaborations ; Dominique Serça, alors que nous ne travaillions pas sur les mêmes sujets au Laboratoire d'Aérodologie, les émissions de méthane par les réservoirs nous relie à présent. Merci beaucoup aussi à Peter Rayner d'avoir accepté d'être rapporteur de mon manuscrit après avoir lu celui de Joël il y a un an à peine. Merci à Gaëlle Dufour d'avoir accepté de compléter le jury en tant qu'examinatrice.

Mes deux ans à Boulder ont élargi encore mon cercle de collaborations (Jean-François Lamarque, Louisa Emmons, Simone Tilmes).

Pour le retour en France, je remercie évidemment Philippe Bousquet ! La liste des points pour lesquels je souhaite te remercier est longue : ton aide précieuse pour les débuts en enseignements, les actions parfois invisibles pour me soulager de certaines tâches les premières années (je m'en suis rendu vraiment

compte après !!), ton soutien et renfort sur les actions de recherche, ta volonté de faire toujours plus et mieux et surtout ta bonne humeur et ta disponibilité. Merci à toi et à Philippe Ciais d'avoir pousser pour que le LSCE coordonne le bilan du méthane pour le Global Carbon Project. Merci à vous deux de m'avoir fait prendre ce tremplin malgré mes réticences. Sans cette étape, je n'aurais certainement pas des résultats aussi riches que ceux présentés dans ce manuscrit.

Merci à l'équipe SATINV et en particulier à Frédéric Chevallier, Antoine Berchet et Isabelle Pison pour leur soutien et leur collaboration sur de nombreux projets (les choses avancent même quand je passe mes semaines à l'université!). Isabelle, merci infiniment pour le partage et le soutien à la fois sur l'enseignement, la recherche, l'encadrement, l'écriture de projet, les déboires administratifs et j'en passe...

Évidemment ces travaux ne sont pas que de mon fait : de nombreux collègues, stagiaires, doctorants et post-doctorants ont contribué à édifier ces travaux. En particulier, merci à Thomas Hocking, Thibaud Thonat et surtout Joël Thanwerdas pour leur travaux sur les isotopes du méthane. Merci infiniment Joël pour ta persévérance, ton dévouement et ta rigueur dans le développement du système d'inversion actuel pour les isotopes. Cela a été un plaisir de t'encadrer et de travailler avec toi. Merci à Yuanhong Zhao pour son travail remarquable sur OH et son implication dans le bilan mondial des sources et puits de méthane 2020.

Merci à Audrey Fortems-Cheiney et Leslie David, co-bureaux au 701, pour la bonne humeur, les debugages en direct et leur amitié.

Merci à Sophie Szopa de m'avoir relancée sur mon manuscrit à chaque fois que je passais devant son bureau !

Merci à Philippe Peylin, Catherine Ottlé, Elodie Salmon, Bertrand Guenet, Catherine Prigent et Carlos Jimenez pour votre aide à la rédaction de mon ANR et votre collaboration sur les projets en cours et à venir. Merci à Didier Hauglustaine pour les échanges et les travaux sur la chimie atmosphérique, et ceux à venir car il reste tant à faire.

Merci Adrien Martinez pour ton aide sur le prochain bilan du méthane et d'avance merci pour tes travaux de thèse à venir !;) Merci à Juliette Bernard pour ce début de thèse qui m'a fait apprendre tant de choses sur les émissions de méthane par les zones inondées.

Peut-être ai-je oublié des personnes mais cela n'est pas intentionnel. Merci à tous ceux avec qui j'ai partagé de près ou de loin, un peu ou beaucoup, je pense à Grégoire Broquet, Elise Potier, Xin Lin, Yi Yin...

Pour finir, merci à toute ma famille qui me soutient au quotidien.



Table des matières

Remerciements	ii
Table des matières	iii
Table des figures	vi
Liste des tableaux	ix
Introduction	1
I Curriculum vitæ	5
1 Eléments de carrière	5
2 Publications et communications	6
2.1 Mes cinq publications marquantes	6
2.2 Liste des publications dans les journaux de rang A	7
2.2.1 Publications soumises	7
2.2.2 Publications acceptées	7
2.3 Chapitres dans des livres ou rapports	14
2.4 Communications orales dans des conférences nationales et internationales	15
2.5 Communications affichées dans des conférences internationales	17
3 Actions de diffusion scientifique	18
4 Activités d'encadrement doctoral	18
4.1 Liste de l'ensemble des encadrements doctoraux et post-doctoraux	19
4.2 Thèses en co-direction	19
5 Participation à des projets et programmes scientifiques	21
5.1 Pilotage de projets et programmes scientifiques	21
5.2 Participation à des projets et programmes scientifiques	22
6 Responsabilités administratives et pédagogiques	22
II Deux alliés pour l'étude de la composition de l'atmosphère : les outils de modélisation et d'observation	23
1 Les principaux gaz en trace étudiés	23
1.1 L'ozone troposphérique	23
1.2 Le méthane	24

2	Observation de la composition chimique de l'atmosphère	25
2.1	Observation de l'ozone	25
2.2	Observation du méthane	26
3	Modélisation de la composition chimique de l'atmosphère	28
3.1	Modélisation directe	28
3.2	Modélisation inverse et théorie bayésienne	28
4	Synergie entre observations et modélisation	30
4.1	Évaluation des modèles directs	31
4.2	Assimilation de données atmosphériques	31
4.3	Évaluation des résultats d'inversion	32
III	Synthèse des travaux de recherches	35
1	Échelle régionale - Rôles des émissions de précurseurs et de la circulation de mousson sur l'ozone en Afrique de l'Ouest (doctorat)	35
1.1	Quels processus contrôlent la distribution méridienne de l'ozone en Afrique de l'Ouest?	36
1.2	Variabilités inter-annuelles et intra-saisonnières de l'ozone et Transport inter-hémisphérique de la pollution par les feux de biomasse	37
2	Échelle continentale - Variabilité spatio-temporelle des concentrations d'ozone : rôle des activités humaines et de la variabilité climatique (post-doctorat)	39
2.1	Effet de la fréquence d'échantillonnage	39
2.2	Relation entre la variabilité de l'ozone et l'Oscillation Nord Atlantique	40
3	Échelle mondiale - Variabilité et tendances des sources et puits de méthane : optimisation par modélisation inverse (poste EC au LSCE)	42
3.1	Quel est l'état de nos connaissances sur le cycle biogéochimique du méthane? Comment cette connaissance évolue-t-elle? Peut-on expliquer les variations du cycle du méthane?	42
3.2	Comment les estimations des approches descendantes se comparent-elles aux inventaires et aux estimations nationales? Sont-elles porteuses d'information pour la vérification des remontées nationales des émissions de gaz à effet de serre?	45
3.3	Quelle est l'influence des erreurs de transport sur les estimations des sources de méthane?	47
3.4	Quel est l'impact de l'incertitude sur OH sur les estimations de méthane?	48
3.5	Les mesures isotopiques apportent-elles suffisamment d'information pour mieux contraindre le bilan de méthane?	51
IV	Projet Scientifique : Synergie entre modèles numériques et observations des gaz traces pour une meilleure compréhension des sources et puits du méthane	57
1	Comment utiliser la co-émission de traceurs pour améliorer la séparation des sources?	60
1.1	Contexte – Séparation des sources dans les inversions et multi-contraintes possibles	60
1.2	Limitations techniques dans le système d'inversion	61
1.3	Actions proposées	61
2	Quel est l'apport des données satellitaires actuelles et comment se préparer aux missions futures?	62
2.1	Contexte – Données satellitaires actuelles et missions futures	62
2.2	Limitations liées à l'assimilation de données satellitaires	63
2.3	Actions proposées	63
3	Comment améliorer la résolution spatiale des estimations <i>a posteriori</i> des sources de méthane par les méthodes inverses?	64
3.1	Résolution spatiale actuelle et limitations à la montée en résolution	64
3.2	Actions proposées	64
4	Comment améliorer les flux <i>a priori</i> et la quantification de leurs incertitudes?	65

4.1	Comment améliorer les flux des émissions anthropiques <i>a priori</i> et développer des méthodes pour mieux quantifier leur incertitudes?	65
4.1.1	Quels flux <i>a priori</i> des émissions anthropiques sont utilisés actuellement?	65
4.1.2	Actions proposées	66
4.2	Comment améliorer les flux des émissions naturelles <i>a priori</i> ?	67
4.2.1	État de l'art sur les émissions naturelles et leur utilisation dans les systèmes inverses	67
4.2.2	Quelles nouvelles données pour déterminer et différencier les surfaces en eaux?	68
4.2.3	Actions proposées	68
5	Comment améliorer la prescription des puits de méthane et en particulier leurs variations spatio-temporelles et développer une méthodologie pour contraindre le puits par OH?	70
5.1	Contexte – Quels champs d'oxydants existent et quels sont leur défauts?	70
5.2	Actions proposées	70
6	Synthèse	71
	Bibliographie	73
	Annexes	79
	A Acronymes et notations courantes	81

Table des figures

Intro.1	Schéma illustrant partiellement la chimie atmosphérique des gaz dans la troposphère et les interactions avec les problématiques de qualité de l'air et de climat. Nous nous restreignons ici aux composés carbonés qui sont les espèces d'intérêt discutées dans ce manuscrit. Les larges flèches bleues représentent les émissions, les flèches fines des transformations chimiques. La largeur des flèches ne représente pas spécifiquement une amplitude d'émissions. Les points noirs représentent le lieu symbolique d'une réaction chimique : les réactifs venant des flèches dirigées vers ce point et les produits figurant au bout des flèches depuis ce point.	2
II.1	Sources de méthane pour les trois type de processus de formation : biogénique, thermogénique et pyrogénique. En rouge les sources d'origine anthropique et en vert celles d'origine naturelles.	24
II.2	Climatologie saisonnière des concentrations d'ozone dans la haute troposphère issue des données MOAZIC/IAGOS recueillies entre 2003 et 2011 et moyennées sur une grille de résolution 5°x 5°. Source : http://www.iagos.fr/cams/reanalysis_climatology_03.php	25
II.3	Gauche : Évolution entre 1980 et 2017 des concentrations de méthane mesurées par les quatre principaux réseaux de mesures (Tiré de [42]); Droite : Localisation des sites de mesures sur le réseau au sol de la NOAA pour exemple.	26
II.4	Nombre d'observations journalières moyennes de données de l'instrument satellite TANSO/GOSAT disponibles sur l'année 2017 moyennées sur une grille de 2° de latitude par 3° de longitude pour les trois reconstitutions de colonnes existantes : University of Leicester proxy retrievals (v7.2), SRON RemoTeC proxy retrievals (v2.3.8), and NIES full physics retrievals (v2.7.2) . Tiré de [55].	27
III.1	Gauche : Carte de l'occupation des sols en Afrique de l'Ouest pour l'année 2000 et zone d'étude AMMA. Droite : Schéma conceptuel représentant un moyenne zonale des éléments clefs de la mousson africaine pendant l'été boréal : circulation méridienne-verticale et vents zonaux dominants.	36
III.2	Gauche : Concentrations d'ozone mesurées à bord du FAAM BAe-146 durant la campagne AMMA ; Droite : profil des tendances de production/destruction d'ozone entre 0 et 700 m par différents processus.	37
III.3	Concentrations d'isoprène, d'oxyde d'azote et d'ozone simulées par le modèle (haut) et mesurées à bord du FAAM BAe-146 durant la campagne AMMA (bas).	37
III.4	Simulation des panaches de CO (a) et d'ozone (b) à 700 hPa par les modèles GEOS-CHEM et MOCAGE en Juillet 2006.	38

III.5	Gauche : carte de la zone étudiée ; Droite : incertitudes à 1-sigma de la tendance linéaire des concentrations d’ozone sur la période 1995-2008 en fonction de la pente de la tendance linéaire pour les quatre saisons et à quatre niveaux de pression différents. Losange noir : base de donnée complète pour Francfort ; losanges rouges : ensemble de sous-échantillons à 12 profils par mois, losanges oranges : ensemble de sous-échantillons à 4 profils par mois. Etoiles bleues : données radio-sondages à six stations en Europe ; + noir : tendances issues de 48 stations européennes au sol	40
III.6	Carte composite de la différence de concentrations d’ozone (en ppbv) entre les périodes de NAO positive et les périodes de NAO négative, simulées par WACCM et mesurées par les avions MOZAIC.	41
III.7	Estimation des incertitudes sur les différentes sources et puits de méthane pour les décennies 1980, 1990 et 2000, pour les approches montantes et descendantes. Tiré de [15].	42
III.8	Bilan des sources et puits de méthane, flux anthropiques en orange et naturels en vert. Estimation moyenne sur la période 2008-2017 à partir des deux approches montantes et descendantes. Tiré de [42].	43
III.9	Évolution des concentrations moyennes atmosphériques de méthane (noir, entre 2005 et 2021) et des concentrations simulées en moyenne suivant les différents scénarios socio-économiques, à gauche : Scénarios de l’AR5 jusque 2030 ; Droite : scénarios de l’AR6 de 2015 jusque 2055.	44
III.10	Changement des sources de méthane entre 2000-2007 et l’année 2017, pour les principales catégories d’émissions pour le monde (encart à droite) et différentes grandes régions (autres encarts) estimées par les approches montantes et descendantes. Tiré de [41].	44
III.11	Émissions anthropiques de méthane déclarées aux Nations Unies (points noirs) et estimées par l’ensemble des inversions atmosphériques assimilant des données de surface (bleu foncé) et des données satellites (bleu clair) soumis au bilan mondial de méthane publié en 2020 ([42]). Tiré de [55].	47
III.12	Gauche : Émissions moyennes de CH ₄ sur la période juillet 2000 – juin 2002 estimées par l’ensemble des inversions contraintes par les champs d’OH du CCMI. Comparaison avec les estimations des années 2000s issues de Kirschke et al., 2013 ; Saunio et al., 2016, 2020. Les boîtes à moustaches indiquent les minima, maxima et valeurs moyennes des estimations. Droite : Émissions optimisées de CH ₄ (Tg CH ₄ yr ⁻¹) en fonction de la moyenne troposphérique globale d’OH, OH _{GM-CH4} (×10 ⁵ molec m ⁻³). Tiré de [40].	50
III.13	Moyennes des émissions de CH ₄ (juillet 2000 – juin 2002) zonales (a, d) et régionales (c, f) estimées par les inversions contraintes avec les champs d’OH du CCMI originaux (a, c) et calibrés pour avoir le même puits global (d,f). A priori en rouge pointillé et a posteriori en rouge continu. Les boîtes à moustaches représentent la différence entre les émissions optimisées et les émissions a priori. USA : America, CAN : Canada, EU : Europe, RUS : Russia, CHN : China, SEAS : Southeast Asia, SAS : South Asia, NSA : northern South America, SSA : southern South America, AF : Africa. (b, e) Rapport entre la plage d’incertitude des émissions estimées par l’ensemble des inversions et la moyenne d’ensemble à chaque point de grille. Tiré de [40].	50
III.14	Distributions des signatures isotopiques des sources de méthane selon les principaux secteurs d’émission. Tiré de <i>Sherwood et al.</i> (2017).	52
III.15	Évolution temporelle des concentrations de CH ₄ et du signal isotopique atmosphérique δ ¹³ CH ₄ entre les années 1980 et 2020.	52

III.16	Signature isotopique du changement des émissions de méthane entre 2002-2006 et 2008-2012 calculé à partir des signatures isotopiques moyennes des sources suggérées par <i>Schaefer et al.</i> (2016) et <i>Schwietzke et al.</i> (2016) en symboles plein et vide, respectivement. Les valeurs pour les inversions individuelles et la moyenne d'ensemble des inversions sont présentées. La zone grisée correspond à la plage de valeur du signal isotopique calculé par <i>Schaefer et al.</i> (2016) à partir d'un modèle à une boîte en supposant OH constant. Tiré de [28].	53
III.17	Anomalie des émissions totales et sectorielles de méthane entre 2002 et 2014 calculée par les inversions assimilant le méthane totale et $\delta^{13}CH_4$. La simulation de référence permet un ajustement substantielle des signatures isotopiques (à gauche) alors que la simulation "LOCKED" fixe les signatures isotopiques à des valeurs prescrites. Les valeurs en couleurs correspondent à la moyenne mondiale des émissions par secteurs sur la période entière. Tiré de la thèse de J. Thanwerdas.	55
IV.1	Analyse de la littérature sur l'explication de l'augmentation des concentrations de méthane dans l'atmosphère depuis 2007. Source : thèse de J. Thanwerdas.	58
IV.2	Visualisation des déroulements des différents projets dont le financement est connu et leur implication dans chacun des axes.	59
IV.3	Gauche : Différence des émissions des secteurs pétrole et gaz dans EDGARv6 entre 2010 et 2011, par boîte de 30°. Droite : Anomalie des émissions dans la région boréale (60° N-90° N) calculée par les inversions pour la prochaine synthèse GMB utilisant EDGARv6 en <i>a priori</i>	66
IV.4	Schéma synthétisant mon projet scientifique en cinq axes de travail autour du CIF-LMDZ, avec les collaborations envisagées. Les thèses en cours ou débutant en 2022 sont intégrés dans le schéma. Ce schéma reprend les éléments des court et moyen termes illustrés sur la Fig. IV.2, correspondant à des éléments de projets en cours ou financés.	72



Liste des tableaux

I.1	Bilan chiffré de la production scientifique sur l'ensemble de la carrière scientifique, depuis 2011 (prise de fonction à l'UVSQ), sur les quatre dernières années pour illustrer un bilan des activités les plus récentes.	6
A.1	Acronymes et abréviations utilisés dans le rapport	81
A.2	Notations scientifiques et mathématiques	83



Introduction

L'atmosphère terrestre est composée de nombreux gaz et particules dont les quantités relatives sont variables dans le temps et dans l'espace. Les constituants gazeux majoritaires sont le diazote, le dioxygène et l'argon, représentant plus de 99% de la masse de l'atmosphère. Pourtant ce sont les dizaines voire centaines de gaz en traces constituant le 1% restant qui sont critiques au regard de la pollution de l'air et du réchauffement climatique. Les principaux gaz contribuant à l'effet de serre additionnel (perturbation de l'effet de serre naturel) sont le dioxyde de carbone (CO_2 , 400 ppm - partie par million), le méthane (CH_4 , 1800 ppb - partie par milliard ou « billion » en anglais), le protoxyde d'azote (N_2O , 325 ppm), l'ozone troposphérique (O_3 , environ 50 ppb) et les composés halogénés (quelques 10-100 ppt - partie par « trillions »). Coté qualité de l'air, les principaux polluants gazeux en cause sont l'ozone troposphérique, le monoxyde de carbone (CO), les oxydes d'azote (NOx) et les composés organiques volatiles (COV). Les concentrations de ces gaz en trace, polluants ou gaz à effet de serre, ont fortement augmenté depuis l'ère pré-industrielle suite aux émissions de ces composés ou de leurs précurseurs dans l'atmosphère par les différentes activités humaines incluant l'extraction, l'exploitation et la combustion des énergies fossiles ; les industries manufacturières ; la production d'électricité ; les activités agricoles d'élevage et de culture incluant l'utilisation d'engrais fertilisant ; la déforestation et la culture sur brûlis.

Les liens entre le climat et la chimie d'atmosphère sont nombreux (Fig. Intro.1).

Ainsi l'ozone troposphérique est non seulement un gaz à effet de serre (GES) mais aussi un fort oxydant, nocif à la biosphère : en trop grandes concentrations, il y dégrade la qualité de l'air et altère le développement des végétaux. L'ozone est la principale source du radical hydroxyle (OH) dont la concentration contrôle la capacité oxydante de l'atmosphère, c'est-à-dire sa capacité à éliminer les composés carbonés (CO, CH_4 , COV) et azotés émis quotidiennement dans l'atmosphère. Ainsi la durée de vie des gaz en trace tels que le CH_4 ou le CO dépend de la concentration de OH, et l'oxydation des composés carbonés tels que le CH_4 , le CO ou les COV produit de l'ozone dans la troposphère. Ces quelques éléments mettent en évidence les liens et les interactions entre la chimie de l'atmosphère, le climat et la qualité de l'air.

Comprendre l'évolution passée de la qualité de l'air ou du climat nécessite l'observation c'est à dire la mesure de la composition de l'atmosphère et de sa variabilité spatio-temporelle, mais aussi sa modélisation. En effet, cette dernière permet d'explorer et de quantifier les processus physico-chimiques responsables des variations spatio-temporelles de la composition chimique de l'atmosphère. Parmi ces processus se trouvent les émissions par différentes sources (naturelles ou anthropiques) des polluants primaires, la production ou la destruction chimique de certains composés dans l'atmosphère, le transport vertical et horizontal des gaz et particules par le mouvement des masses d'air dans l'atmosphère. Les modèles de chimie-transport sont utilisés afin de simuler les concentrations de gaz et de particules dans

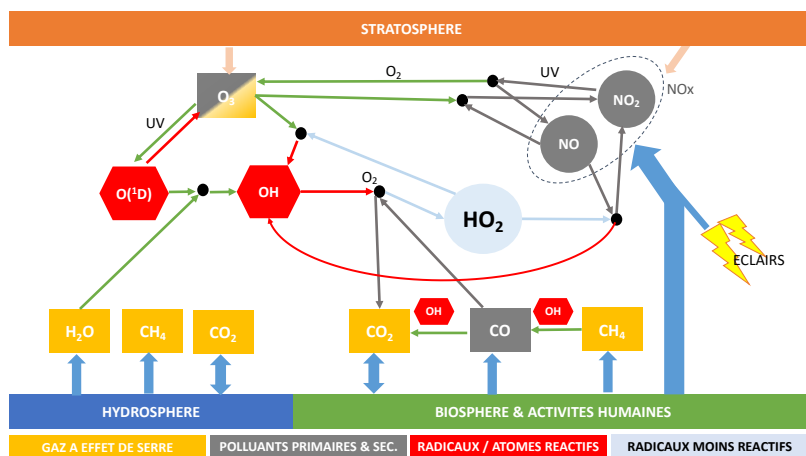


FIGURE Intro.1 – Schéma illustrant partiellement la chimie atmosphérique des gaz dans la troposphère et les interactions avec les problématiques de qualité de l'air et de climat. Nous nous restreignons ici aux composés carbonés qui sont les espèces d'intérêt discutées dans ce manuscrit. Les larges flèches bleues représentent les émissions, les flèches fines des transformations chimiques. La largeur des flèches ne représente pas spécifiquement une amplitude d'émissions. Les points noirs représentent le lieu symbolique d'une réaction chimique : les réactifs venant des flèches dirigées vers ce point et les produits figurant au bout des flèches depuis ce point.

l'atmosphère en partant d'une connaissance de l'état initial de l'atmosphère, des émissions des différents gaz et particules, d'un schéma chimique incluant l'ensemble des réactions chimiques d'intérêt - à un degré de détail plus ou moins fin, et le transport des masses d'air à l'échelle du modèle sur la période considérée. Cette modélisation directe est souvent entachée d'erreurs liées aux incertitudes sur chacun des points précédents. Parmi eux, la quantification des émissions de gaz reste critique et fait l'objet de nombreux travaux de recherche et développement méthodologiques et techniques.

Les émissions de gaz à effet de serre, polluants et leurs précurseurs sont estimées par des approches pouvant être séparées en deux grandes familles : les approches dites « montantes » et les approches dites « descendantes ». Les **approches montantes** sont notamment utilisées pour déclarer les émissions anthropiques annuelles au titre de la Convention Cadre des Nations-Unies sur les Changements Climatiques (CCNUCC) et du Protocole de Kyoto, comme le fait la France. Pour les émissions anthropiques, ces approches montantes fournissent des inventaires statistiques des émissions. Ces inventaires sont établis à partir de données statistiques, socio-économiques, technologiques et de facteurs d'émissions adaptés à chaque secteur. Ces données et facteurs d'émissions ont des incertitudes variables et peuvent omettre des processus ou spécificités technologiques régionales. Même pour un pays comme la France, dont les données socio-économiques semblent plutôt bien connues, les incertitudes sur les émissions de méthane en 2020 s'élèvent à 15-30% pour les secteurs dans l'agriculture et en moyenne 100% pour le secteur des déchets (Bongrand, 2022). Or la quantification et donc la réduction des incertitudes sur les émissions anthropiques deviennent un sujet de plus en plus critique en raison de la mise en place de politiques de réduction des émissions de polluants et de GES, et en particulier, dans le cadre de l'engagement international sur le méthane de la COP 26 (<https://www.globalmethanepledge.org>).

Les **approches descendantes** se sont développées avec pour objectifs de réduire l'incertitude sur les sources et puits de certains gaz en trace (polluants et GES), et par conséquent de pouvoir vérifier, ou du moins évaluer, les émissions déclarées par les approches montantes et l'efficacité de politiques de réduction mises en place. Pour cela, les approches descendantes s'appuient sur d'autres sources d'information indépendante des approches montantes : les mesures de concentrations de gaz dans l'atmosphère. Cette approche atmosphérique consiste à utiliser le signal atmosphérique laissé dans l'air par toute émission

afin de quantifier celle-ci. Le défi scientifique est d'une part de détecter ce signal et ensuite de l'attribuer à des processus d'émissions et des régions sources.

Mes travaux de recherche ont porté jusqu'ici sur **l'utilisation en synergie des mesures atmosphériques des gaz en trace et de leur modélisation numérique pour améliorer notre compréhension des émissions, du transport et de la chimie de l'ozone et du méthane**. J'ai abordé des questions liées à différentes échelles spatiales et des thèmes liés à la chimie et au climat, en particulier :

- compréhension du rôle des émissions de précurseurs de l'ozone troposphérique et de la circulation de mousson sur l'ozone en Afrique de l'Ouest
- estimation du rôle des activités humaines et de la variabilité climatique sur la variabilité spatio-temporelle des concentrations d'ozone dans la troposphère
- estimation de l'amplitude, de la variabilité et des tendances des sources et puits de méthane par inversion atmosphérique (approches descendantes)

Après mon curriculum vitae détaillé (chapitre I), le chapitre II présente les principaux gaz étudiés et les outils d'observation et de modélisation sous le prisme des axes de recherches abordés. Ensuite la synthèse de mes travaux (chapitre III) déroule les diverses questions que j'ai abordées au travers de l'utilisation en synergie des observations et de la modélisation numérique de la composition de l'atmosphère. Le projet scientifique (chapitre IV) détaille les questions que je souhaite aborder à court, moyen et plus long termes, toujours dans le cadre d'une synergie observations/modélisation pour améliorer les estimations des sources et puits du méthane et quantifier l'impact des activités anthropiques sur le climat et le rôle des sources naturelles.

Curriculum vitæ

Dans ce premier chapitre, sont décrits en détail les principaux éléments de carrière et les activités développées dans le cadre de mes différentes missions de recherche, d'encadrement, d'enseignement et de diffusion scientifique.

La liste des publications et communications orales est disponible dans la section 2, suivie des actions de diffusion scientifique et de mon encadrement doctoral. Puis les principaux projets et programmes scientifiques auxquels j'ai participé ou que j'ai dirigés sont décrits. Finalement, mes principales responsabilités administratives et pédagogiques sont présentées.

1 Eléments de carrière

Née le 14 mai 1981, deux enfants.

CARRIÈRE après thèse

- 09/2011– **Maitre de conférence** à l'Université de Versailles Saint Quentin (quotité : 100%).
Recherche au Laboratoire de Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE, Unité Mixte de Recherche CEA-CNRS-UVSQ).
Enseignement au Département de Physique de l'Université de Versailles-Saint-Quentin-en-Yvelines (UVSQ), à l'OVSQ et à l'Université Paris-Saclay.
- 2009/10–2011/08 **Contrat de recherche Post-Doctoral** au National Center for Atmospheric Research à Boulder, Colorado, USA dans l'équipe Atmospheric Chemistry Division. Membre du ASP¹ *postdoctoral fellowship*

¹Advanced Study Program <http://www.asp.ucar.edu/index.php>

FORMATION et DIPLOME

- 2006–2009 Thèse de **Doctorat de troisième cycle** de l'Université de Toulouse sous la direction de Céline Mari et Valérie Thouret.
Effectuée au Laboratoire d'Aérodynamique, Toulouse.
Soutenue le 25 juin 2009 à l'Université de Toulouse III devant le jury :
Frank Roux *Président*
Didier Hauglustaine *Rapporteur*
Robert Vautard *Rapporteur*
Kathy Law *Examinatrice*
Claire Reeves *Examinatrice*
Céline Mari *Directrice de thèse*
Valérie Thouret *Co-directrice de thèse*
intitulée *Bilan de l'ozone troposphérique sur le continent africain : Apport du programme AMMA²-Chimie*
<https://www.theses.fr/142528382>
- Juin 2006 **Master 2 de Recherche** (Océan, Atmosphère, Climat et Télédétection) de Sciences de l'Univers de l'Université Pierre et Marie Curie, Paris 6. *Mention Très Bien.*
- 2005 **Agrégation de Sciences Physiques Opt. Physique.** Rang 35/180.
- 2002–2006 Elève fonctionnaire à l'**Ecole Normale Supérieure de Cachan**

2 Publications et communications

En **rouge**, les premiers auteurs qui sont des doctorants à l'encadrement desquels j'ai participé. En **bleu**, les premiers auteurs qui sont des post-doctorants à l'encadrement desquels j'ai participé. Le Tableau 1 fait une synthèse de ma production scientifique sur différentes périodes. La liste a été établie au 2 décembre 2021, les publications soumises sont aussi listées pour information et référence dans le texte.

Tableau I.1 – Bilan chiffré de la production scientifique sur l'ensemble de la carrière scientifique, depuis 2011 (prise de fonction à l'UVSQ), sur les quatre dernières années pour illustrer un bilan des activités les plus récentes.

	Carrière	Depuis 2011	2019-2022
Nombre de publications de rang A	56	49	27
en 1 ^{er} auteur	7	5	1
en 2 nd auteur	8	8	7
dont 2 nd auteur d'une publication de doctorant	1	1	1
dont 2 nd auteur d'une publication de post-doctorant	5	5	1
en 3 ^{ème} auteur	3	2	1
dont 3 ^{ème} auteur d'une publication de doctorant	1	1	0
Nombre de citation de l'article le plus cité (Article [15] Août 2022)	1768		
H-index (Août 2022)	29		

2.1 Mes cinq publications marquantes

Parmi la liste de mes publications, les cinq publications les plus marquantes sont les suivantes :

- [10] - Cette étude *Impact of sampling frequency in the analysis of tropospheric ozone observations* met en évidence les biais d'interprétation des données issues de base de données à faible fréquence comme les mesures sous ballons de l'ozone troposphérique. Cette question de l'échantillonnage

²African Monsoon Multidisciplinary Analyses

et de la représentativité des variations spatio-temporelles est critique à la fois dans l'analyse des données mais aussi dans le cadre d'assimilation de données dans les inversions atmosphériques.

- [24] - La publication *The global methane budget 2000–2012* est l'aboutissement de plusieurs années de travail et de collaborations. Elle marque le début de la mise en place de bilans réguliers des sources et puits de méthane. Outre son côté « bible » sur le méthane pour l'ensemble de la communauté, elle est pour moi la synthèse de plusieurs dizaines d'études et le fruit de la collaboration internationale de plus de 100 chercheurs.
- [28] - Les résultats de l'article *Variability and quasi-decadal changes in the methane budget over the period 2000–2012* montrent la contribution des émissions anthropiques de méthane dans l'augmentation des concentrations atmosphériques. Nous y réconcilions les visions divergentes sur les causes de l'augmentation du méthane atmosphérique en utilisant la moyenne d'ensemble des inversions. Cette moyenne d'ensemble semble aussi compatible avec le changement de signal isotopique dans l'atmosphère, contrairement à certaines inversions individuelles. Ainsi nous montrons que l'augmentation de méthane est liée principalement à une augmentation des émissions biogéniques (agriculture et déchet, contribution quasi-nulles des zones humides naturelles), une augmentation des émissions fossiles et une diminution des émissions des feux de biomasses (qui équilibre le signal isotopique des émissions fossiles).
- [43] La publication *On the role of trend and variability in the hydroxyl radical (OH) in the global methane budget* correspond à la troisième publication de Y. Zhao qui a travaillé pour son post-doctorat dans le cadre d'un projet financé par la Fondation Moore. Cette étude quantifie en terme d'émissions de méthane l'impact de la tendance et des variations inter-annuelles de OH. Nous montrons en particulier, que l'effet des événements El-Nino peut atteindre une surestimation de près de $10 \text{ Tg CH}_4 \text{ yr}^{-1}$.
- [56] L'article intitulé *Variational inverse modelling within the Community Inversion Framework to assimilate $\delta^{13}\text{C}(\text{CH}_4)$ and CH_4* marque une avancée importante en terme de développement méthodologique de notre système d'inversion. Résultat phare du travail de thèse de Joël Thanwerdas, ce système permet l'assimilation conjointe des mesures de CH_4 et de son signal isotopique dans l'atmosphère $\delta^{13}\text{C}(\text{CH}_4)$. Nous y mettons en évidence la puissance du système (capacité d'optimiser à la fois les flux et les signatures isotopiques des sources) et ses faiblesses (temps de calculs, temps de *spin-up* et *spin-down* longs)

2.2 Liste des publications dans les journaux de rang A

2.2.1 Publications soumises

- a. **Thanwerdas, J., Saunois, M.,** Pison, I., Hauglustaine, D., Berchet, A., Baier, B., Sweeney, C., and Bousquet, P. : How do Cl concentrations matter for simulating CH_4 , $\delta^{13}\text{C}(\text{CH}_4)$ and estimating CH_4 budget through atmospheric inversions?, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* [preprint], <https://doi.org/10.5194/acp-2021-950>, in review, 2021.
- b. Peng, S., Lin, X., Thompson, R.L., Xi, Y., Liu, G., Hauglustaine, D., Lan, X., Poulter, B., Ramonet, M., **Saunois, M.,** Ciais, P., Increase in wetland emissions and decrease in atmospheric sink explain the high growth of atmospheric methane in 2020, Submitted to *Nature*. 2022

2.2.2 Publications acceptées

56. **Thanwerdas, J., Saunois, M.,** Berchet, A., Pison, I., Vaughn, B. H., Michel, S. E., and Bousquet, P. : Variational inverse modelling within the Community Inversion Framework to assimilate $\delta^{13}\text{C}(\text{CH}_4)$ and CH_4 : a case study with model LMDz-SACS, *Geosci. Model Dev.*, 15, 4831–4851, <https://doi.org/10.5194/gmd-15-4831-2022>, 2022.
55. Deng, Z., Ciais, P., Tzompa-Sosa, Z. A., **Saunois, M.,** Qiu, C., Tan, C., Sun, T., Ke, P., Cui, Y., Tanaka, K., Lin, X., Thompson, R. L., Tian, H., Yao, Y., Huang, Y., Lauerwald, R., Jain, A. K., Xu,

- X., Bastos, A., Sitch, S., Palmer, P. I., Lauvaux, T., d'Aspremont, A., Giron, C., Benoit, A., Poulter, B., Chang, J., Petrescu, A. M. R., Davis, S. J., Liu, Z., Grassi, G., Albergel, C., Tubiello, F. N., Perugini, L., Peters, W., and Chevallier, F. : Comparing national greenhouse gas budgets reported in UNFCCC inventories against atmospheric inversions, *Earth Syst. Sci. Data*, 14, 1639–1675, <https://doi.org/10.5194/essd-14-1639-2022>, 2022.
54. Ciais, P., Bastos, A., Chevallier, F., Lauerwald, R., Poulter, B., Canadell, J. G., Hugelius, G., Jackson, R. B., Jain, A., Jones, M., Kondo, M., Lujckx, I. T., Patra, P. K., Peters, W., Pongratz, J., Petrescu, A. M. R., Piao, S., Qiu, C., Von Randow, C., Regnier, P., **Saunois, M.**, Scholes, R., Shvidenko, A., Tian, H., Yang, H., Wang, X., and Zheng, B. : Definitions and methods to estimate regional land carbon fluxes for the second phase of the REgional Carbon Cycle Assessment and Processes Project (RECCAP-2), *Geosci. Model Dev.*, 15, 1289–1316, <https://doi.org/10.5194/gmd-15-1289-2022>, 2022.
53. Zhang, Z., Poulter, B., Knox, S., Stavert, A., McNicol, G., Fluet-Chouinard, E., Feinberg, A., Zhao, Y., Bousquet, P., Canadell, J. G., Ganesan, A., Hugelius, G., Hurtt, G., Jackson, R. B., Patra, P. K., **Saunois, M.**, Höglund-Isaksson, L., Huang, C., Chatterjee, A., Li, X., Anthropogenic emissions are the main contribution to the rise of atmospheric methane (1993-2017), *National Science Review*, <https://doi.org/10.1093/nsr/nwab200>, 2021.
52. Stavert, A. R., **Saunois, M.**, Canadell, J. G., Poulter, B., Jackson, R. B., Regnier, P., Lauerwald, R., Raymond, P. A., Allen, G. H., Patra, P.K., Bergamaschi, P., Bousquet, P., Chandra, N., Ciais, P., Gustafson, A., Ishizawa, M., Ito, A., Kleinen, T., Maksyutov, S., McNorton, J., Melton, J. R., Müller, J., Niwa, Y., Peng, S., Riley, W/ J., Segers, A., Tian, H., Tsuruta, A., Yin, Y., Zhang, Z., Zheng, B., Zhuang, Q., Regional trends and drivers of the global methane budget, *Global Change Biology*, <https://doi.org/10.1111/gcb.15901>, 2021.
51. Martin, M. A., Alcaraz Sendra, O., Bastos, A., Bauer, N., Bertram, C., Blenckner, T., Bowen, K., Brando, P. M., Brodie Rudolph, T., Büchs, M., Bustamante, M., Chen, D., Cleugh, H., Dasgupta, P., Denton, F., Donges, J. F., Donkor, F.K., Duan, H., Duarte, C. M., Ebi, K. L., Edwards, C.M., Engel, A., Fisher, E., Fuss, S., Gaertner, J., Gettelman, A., Girardin, C. A. J., Golledge, N. R., Green, J. F., Grose, M. R., Hashizume, M., Hebden, S., Hepach, H., Hirota, M., Hsu, H. H., Kojima, S., Lele, S., Lorek, S., Lotze, H. K., Matthews, H. D., McCauley, D., Mebratu, D., Mengis, N., Nolan, R. H., Pihl, E., Rahmstorf, S., Redman, A., Reid, C. E., Rockström, J., Rogelj, J., **Saunois, M.**, Sayer, L., Schlosser, P., Sioen, G. B., Spangenberg, J. H., Stammer, D., Sterner, T. N. S., Stevens, N., Thonicke, K., Tian, H., Winkelmann, R., Woodcock, J., Ten new insights in climate science 2021 : a horizon scan. *Global Sustainability*, 4(e25), 1–20. <https://doi.org/10.1017/sus.2021.25>, 2021
50. Minx, J. C., Lamb, W. F., Andrew, R. M., Canadell, J. G., Crippa, M., Döbbeling, N., Forster, P. M., Guizzardi, D., Olivier, J., Peters, G. P., Pongratz, J., Reisinger, A., Rigby, M., **Saunois, M.**, Smith, S. J., Solazzo, E., and Tian, H. : A comprehensive and synthetic dataset for global, regional, and national greenhouse gas emissions by sector 1970–2018 with an extension to 2019, *Earth Syst. Sci. Data*, 13, 5213–5252, <https://doi.org/10.5194/essd-13-5213-2021>, 2021.
49. Berchet, A., Sollum, E., Thompson, R. L., Pison, I., Thanwerdas, J., Broquet, G., Chevallier, F., Aalto, T., Berchet, A., Bergamaschi, P., Brunner, D., Engelen, R., Fortems-Cheiney, A., Gerbig, C., Groot Zwaaftink, C. D., Haussaire, J.-M., Henne, S., Houweling, S., Karstens, U., Kutsch, W. L., Lujckx, I. T., Monteil, G., Palmer, P. I., van Peet, J. C. A., Peters, W., Peylin, P., Potier, E., Rödenbeck, C., **Saunois, M.**, Scholze, M., Tsuruta, A., and Zhao, Y. : The Community Inversion Framework v1.0 : a unified system for atmospheric inversion studies, *Geosci. Model Dev.*, 14, 5331–5354, <https://doi.org/10.5194/gmd-14-5331-2021>, 2021.

48. Yin, Y., Chevallier, F., Ciais, P., Bousquet, P., **Saunois, M.**, Zheng, B., Worden, J., Bloom, A. A., Parker, R., Jacob, D., Dlugokencky, E. J., and Frankenberg, C. : Accelerating methane growth rate from 2010 to 2017 : leading contributions from the tropics and East Asia, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 12631–12647, <https://doi.org/10.5194/acp-21-12631-2021>, 2021
47. **Szenasi, B.**, Berchet, A., Broquet, G., Segers, A., Denier van der Gon, H., Krol, M., Hullegie, J. J.S. , Kiesow, A., Günther, D., Petrescu, A. M. R., **Saunois, M.**, Bousquet P., Pison I., A pragmatic protocol for characterising errors in atmospheric inversions of methane emissions over Europe, *Tellus B : Chemical and Physical Meteorology*, 73 :1, 1-23, DOI : 10.1080/16000889.2021.1914989 A Pragmatic Protocol for Characterising Errors in Atmospheric Inversions of Methane Emissions over Europe, *Tellus B : Chemical & Physical Meteorology*, 2021.
46. Petrescu, A. M. R., Qiu, C., Ciais, P., Thompson, R. L., Peylin, P., McGrath, M. J., Solazzo, E., Janssens-Maenhout, G., Tubiello, F. N., Bergamaschi, P., Brunner, D., Peters, G. P., Höglund-Isaksson, L., Regnier, P., Lauerwald, R., Bastviken, D., Tsuruta, A., Winiwarter, W., Patra, P. K., Kuhnert, M., Oreggioni, G. D., Crippa, M., **Saunois, M.**, Perugini, L., Markkanen, T., Aalto, T., Groot Zwaaftink, C. D., Tian, H., Yao, Y., Wilson, C., Conchedda, G., Günther, D., Leip, A., Smith, P., Haussaire, J.-M., Leppänen, A., Manning, A. J., McNorton, J., Brockmann, P., and Dolman, A. J. : The consolidated European synthesis of CH₄ and N₂O emissions for the European Union and United Kingdom : 1990–2017, *Earth Syst. Sci. Data*, 13, 2307–2362, <https://doi.org/10.5194/essd-13-2307-2021>, 2021.
45. Fortems-Cheiney, A., Broquet G., Pison, I., **Saunois, M.**, Potier, E., Berchet, A., Dufour, G. , Siour, G., Denier van der Gon, H., Dellaert, S. N. C., Boersma, K. F., Analysis of the Anthropogenic and Biogenic NO_x Emissions Over 2008–2017 : Assessment of the Trends in the 30 Most Populated Urban Areas in Europe, *Geophysical Research Letters*, vol 48, 11, e2020GL092206, <https://doi.org/10.1029/2020GL092206>, 2021.
44. Gaubert, B., Emmons, L. K., Raeder, K., Tilmes, S., Miyazaki, K., Arellano Jr., A. F., Elguindi, N., Granier, C., Tang, W., Barré, J., Worden, H. M., Buchholz, R. R., Edwards, D. P., Franke, P., Anderson, J. L., **Saunois, M.**, Schroeder, J., Woo, J.-H., Simpson, I. J., Blake, D. R., Meinardi, S., Wennberg, P. O., Crouse, J., Teng, A., Kim, M., Dickerson, R. R., He, H., Ren, X., Pusede, S. E., and Diskin, G. S. : Correcting model biases of CO in East Asia : impact on oxidant distributions during KORUS-AQ, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 14617–14647, <https://doi.org/10.5194/acp-20-14617-2020>, 2020.
43. **Zhao, Y.**, **Saunois, M.**, Bousquet, P., Lin, X., Berchet, A., Hegglin, M. I., Canadell, J. G., Jackson, R. B., Deushi, M., Jöckel, P., Kinnison, D., Kirner, O., Strode, S., Tilmes, S., Dlugokencky, E. J., and Zheng, B. : On the role of trend and variability in the hydroxyl radical (OH) in the global methane budget, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 13011–13022, <https://doi.org/10.5194/acp-20-13011-2020>, 2020b.
42. **Saunois, M.**, Stavert, A. R., Poulter, B., Bousquet, P., Canadell, J. G., Jackson, R. B., Raymond, P. A., Dlugokencky, E. J., Houweling, S., Patra, P. K., Ciais, P., Arora, V. K., Bastviken, D., Bergamaschi, P., Blake, D. R., Brailsford, G., Bruhwiler, L., Carlson, K. M., Carrol, M., Castaldi, S., Chandra, N., Crevoisier, C., Crill, P. M., Covey, K., Curry, C. L., Etiope, G., Frankenberg, C., Gedney, N., Hegglin, M. I., Höglund-Isaksson, L., Hugelius, G., Ishizawa, M., Ito, A., Janssens-Maenhout, G., Jensen, K. M., Joos, F., Kleinen, T., Krummel, P. B., Langenfelds, R. L., Laruelle, G. G., Liu, L., Machida, T., Maksyutov, S., McDonald, K. C., McNorton, J., Miller, P. A., Melton, J. R., Morino, I., Müller, J., Murguia-Flores, F., Naik, V., Niwa, Y., Noce, S., O'Doherty, S., Parker, R. J., Peng, C., Peng, S., Peters, G. P., Prigent, C., Prinn, R., Ramonet, M., Regnier, P., Riley, W. J., Rosentreter, J. A., Segers, A., Simpson, I. J., Shi, H., Smith, S. J., Steele, L. P., Thornton, B. F., Tian, H., Tohjima, Y., Tubiello, F. N., Tsuruta, A., Viovy, N., Voulgarakis, A., Weber, T. S., van Weele, M., van der Werf, G. R., Weiss, R. F., Worthy, D., Wunch, D., Yin, Y., Yoshida, Y., Zhang, W., Zhang, Z.,

- Zhao, Y., Zheng, B., Zhu, Q., Zhu, Q., and Zhuang, Q. : The Global Methane Budget 2000–2017, *Earth Syst. Sci. Data*, 12, 1561–1623, <https://doi.org/10.5194/essd-12-1561-2020>, 2020.
41. Jackson, R. B., **Saunois, M.**, Bousquet, P., Canadell, J. G., Poulter, B., Stavert, A. R., Poulter, B., Bergamaschi, P., Niwa, Y., Segers, A., Tsuruta, A. : Increasing anthropogenic methane emissions arise equally from agricultural and fossil fuel sources, *Environmental Research Letters*, 15, 7, <https://doi.org/10.1088/1748-9326/ab9ed2>, 2020
40. **Zhao, Y.**, **Saunois, M.**, Bousquet, P., Lin, X., Berchet, A., Hegglin, M. I., Canadell, J. G., Jackson, R. B., Dlugokencky, E. J., Langenfelds, R. L., Ramonet, M., Worthy, D., and Zheng, B. : Influences of hydroxyl radicals (OH) on top-down estimates of the global and regional methane budgets, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 9525–9546, <https://doi.org/10.5194/acp-20-9525-2020>, 2020a
39. Wang, Z., Warneke, T., Dils, B., Notholt, J., and **Saunois, M.** : Diagnosing CH₄ models using the equivalent length in the stratosphere, *Journal Geophysica Research*, <https://doi.org/10.1029/2020JD032524>, 2020
38. Berchet, A., Pison, I., Crill, P. M., Thornton, B., Bousquet, P., Thonat, T., Hocking, T., Thanwerdas, J., Paris, J.-D., and **Saunois, M.** : Using ship-borne observations of methane isotopic ratio in the Arctic Ocean to understand methane sources in the Arctic, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 3987–3998, <https://doi.org/10.5194/acp-20-3987-2020>, 2020
37. **Zhao, Y.**, **Saunois, M.**, Bousquet, P., Lin, X., Berchet, A., Hegglin, M. I., Canadell, J. G., Jackson, R. B., Hauglustaine, D. A., Szopa, S., Stavert, A. R., Abraham, N. L., Archibald, A. T., Bekki, S., Deushi, M., Jöckel, P., Josse, B., Kinnison, D., Kirner, O., Marécal, V., O'Connor, F. M., Plummer, D. A., Revell, L. E., Rozanov, E., Stenke, A., Strode, S., Tilmes, S., Dlugokencky, E. J., and Zheng, B. : Inter-model comparison of global hydroxyl radical (OH) distributions and their impact on atmospheric methane over the 2000–2016 period, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 13701–13723, <https://doi.org/10.5194/acp-19-13701-2019>, 2019.
36. **Thonat, T.**, **Saunois, M.**, Pison, I., Berchet, A., Hocking, T., Thornton, B. F., Crill, P. M., and Bousquet, P. : Assessment of the theoretical limit in instrumental detectability of northern high-latitude methane sources using $\delta^{13}\text{C}CH_4$ atmospheric signals, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 12141–12161, <https://doi.org/10.5194/acp-19-12141-2019>, 2019.
35. Knox, S.H., R.B. Jackson, B. Poulter, G. McNicol, E. Fluet-Chouinard, Z. Zhang, G. Hugelius, P. Bousquet, J.G. Canadell, **M. Saunois**, D. Papale, H. Chu, T.F. Keenan, D. Baldocchi, M.S. Torn, I. Mammarella, C. Trotta, M. Aurela, G. Bohrer, D.I. Campbell, A. Cescatti, S. Chamberlain, J. Chen, W. Chen, S. Dengel, A.R. Desai, E. Euskirchen, T. Friborg, D. Gasbarra, I. Goded, M. Goeckede, M. Heimann, M. Helbig, T. Hirano, D.Y. Hollinger, H. Iwata, M. Kang, J. Klatt, K.W. Krauss, L. Kutzbach, A. Lohila, B. Mitra, T.H. Morin, M.B. Nilsson, S. Niu, A. Noormets, W.C. Oechel, M. Peichl, O. Peltola, M.L. Reba, A.D. Richardson, B.R. Runkle, Y. Ryu, T. Sachs, K.V. Schäfer, H.P. Schmid, N. Shurpali, O. Sonnentag, A.C. Tang, M. Ueyama, R. Vargas, T. Vesala, E.J. Ward, L. Windham-Myers, G. Wohlfahrt, and D. Zona : FLUXNET-CH₄ Synthesis Activity : Objectives, Observations, and Future Directions. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 0, <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-18-0268.1>, 2019
34. Chang J., Peng, S., Ciais, P., **Saunois, M.**, Dangal, S. R. S., Herrero, M., Havlík, P., Tian, H., and Bousquet, P. : Revisiting the $\delta^{13}\text{C}CH_4$ source signature and enteric methane emissions from domestic ruminants from shifts in C3-C4 diet composition, *Nature Communication*, 10, 3420, <https://doi.org/10.1038/s41467-019-11066-3>, 2019
33. Karlson, M., Gålfalk, M., Crill, P., Bousquet, P., **Saunois, M.**, Bastviken, D. : Delineating northern peatlands using Sentinel-1 time series and terrain indices from local and regional digital elevation

- models, *Remote Sensing of Environment*, 231, <https://doi.org/10.1016/j.rse.2019.111252>, 2019.
32. Lin, X., Ciais, P., Bousquet, P., Ramonet, M., Yin, Y., Balkanski, Y., Cozic, A., Delmotte, M., Evangeliou, N., Indira, N. K., Locatelli, R., Peng, S., Piao, S., **Saunois, M.**, Swathi, P. S., Wang, R., Yver-Kwok, C., Tiwari, Y. K., and Zhou, L. : Simulating CH₄ and CO₂ over South and East Asia using the zoomed chemistry transport model LMDz-INCA, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 9475-9497, <https://doi.org/10.5194/acp-18-9475-2018>, 2018.
 31. Pison, I., Berchet, A., **Saunois, M.**, Bousquet, P., Broquet, G., Conil, S., Delmotte, M., Ganesan, A., Laurent, O., Martin, D., O'Doherty, S., Ramonet, M., Spain, T. G., Vermeulen, A., and Yver Kwok, C. : How a European network may help with estimating methane emissions on the French national scale, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 3779-3798, <https://doi.org/10.5194/acp-18-3779-2018>, 2018.
 30. Bergamaschi, P., Karstens, U., Manning, A. J., **Saunois, M.**, Tsuruta, A., Berchet, A., Vermeulen, A. T., Arnold, T., Janssens-Maenhout, G., Hammer, S., Levin, I., Schmidt, M., Ramonet, M., Lopez, M., Lavric, J., Aalto, T., Chen, H., Feist, D. G., Gerbig, C., Haszpra, L., Hermansen, O., Manca, G., Moncrieff, J., Meinhardt, F., Necki, J., Galkowski, M., O'Doherty, S., Paramonova, N., Scheeren, H. A., Steinbacher, M., and Dlugokencky, E. : Inverse modelling of European CH₄ emissions during 2006–2012 using different inverse models and reassessed atmospheric observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 901-920, <https://doi.org/10.5194/acp-18-901-2018>, 2018.
 29. Wang, Z., Warneke, T., Deutscher, N. M., Notholt, J., Karstens, U., **Saunois, M.**, Schneider, M., Sussmann, R., Sembhi, H., Griffith, D. W. T., Pollard, D. F., Kivi, R., Petri, C., Velasco, V. A., Ramonet, M., and Chen, H. : Contributions of the troposphere and stratosphere to CH₄ model biases, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 13283-13295, <https://doi.org/10.5194/acp-17-13283-2017>, 2017.
 28. **Saunois, M.**, Bousquet, P., Poulter, B., Peregón, A., Ciais, P., Canadell, J. G., Dlugokencky, E. J., Etiope, G., Bastviken, D., Houweling, S., Janssens-Maenhout, G., Tubiello, F. N., Castaldi, S., Jackson, R. B., Alexe, M., Arora, V. K., Beerling, D. J., Bergamaschi, P., Blake, D. R., Brailsford, G., Bruhwiler, L., Crevoisier, C., Crill, P., Covey, K., Frankenberg, C., Gedney, N., Höglund-Isaksson, L., Ishizawa, M., Ito, A., Joos, F., Kim, H.-S., Kleinen, T., Krummel, P., Lamarque, J.-F., Langenfelds, R., Locatelli, R., Machida, T., Maksyutov, S., Melton, J. R., Morino, I., Naik, V., O'Doherty, S., Parmentier, F.-J. W., Patra, P. K., Peng, C., Peng, S., Peters, G. P., Pison, I., Prinn, R., Ramonet, M., Riley, W. J., Saito, M., Santini, M., Schroeder, R., Simpson, I. J., Spahni, R., Takizawa, A., Thornton, B. F., Tian, H., Tohjima, Y., Viovy, N., Voulgarakis, A., Weiss, R., Wilton, D. J., Wiltshire, A., Worthy, D., Wunch, D., Xu, X., Yoshida, Y., Zhang, B., Zhang, Z., and Zhu, Q. : Variability and quasi-decadal changes in the methane budget over the period 2000–2012, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 11135-11161, <https://doi.org/10.5194/acp-17-11135-2017>, 2017.
 27. Poulter B., Bousquet P., Canadell J. G., Ciais P., Peregón, A., **Saunois, M.**, Arora V. K., Beerling D.J., Brovkin V., Jones C. D., Joos F., Gedney N., Ito, A., Kleinen T., Koven C. D., McDonald K., Melton, J. R., Peng, C., Peng, S., Prigent, C., Schroeder, R., Riley, W.R., Saito, M., Spahni, R., Tian, H., Taylor, L., Viovy, N., Wilton, D., Wiltshire, A., Xu, X., Zhang, B., Zhang, Z., and Zhu, Q. : Global wetland contribution to 2000–2012 atmospheric methane growth rate dynamics, *Environmental Research Letters*, 12, 094013, <https://doi.org/10.1088/1748-9326/aa8391>, 2017.
 26. **Thonat, T.**, **Saunois, M.**, Bousquet, P., Pison, I., Tan, Z., Zhuang, Q., Crill, P. M., Thornton, B. F., Bastviken, D., Dlugokencky, E. J., Zimov, N., Laurila, T., Hatakka, J., Hermansen, O., and Worthy, D. E. J. : Detectability of Arctic methane sources at six sites performing continuous atmospheric measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 8371-8394, <https://doi.org/10.5194/acp-17-8371-2017>, 2017.

25. Bruhwiler, L. M., Basu, S., Bergamaschi, P., Bousquet, P., Dlugokencky, E., Houweling, S., Ishizawa, M., Kim, H.-S., Locatelli, R., Maksyutov, S., Montzka, S., Pandey, S., Patra, P. K., Petron, G., **Saunois, M.**, Sweeney, C., Schwietzke, S., Tans, P., and Weatherhead, E. C. : US CH₄ Emissions from Oil and Gas Production : Have Recent Large Increases Been Detected?, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 122, 4070–4083, <https://doi.org/10.1002/2016JD026157>, 2017.
24. **Saunois, M.**, Bousquet, P., Poulter, B., Peregón, A., Ciais, P., Canadell, J. G., Dlugokencky, E. J., Etiope, G., Bastviken, D., Houweling, S., Janssens-Maenhout, G., Tubiello, F. N., Castaldi, S., Jackson, R. B., Alexe, M., Arora, V. K., Beerling, D. J., Bergamaschi, P., Blake, D. R., Brailsford, G., Brovkin, V., Bruhwiler, L., Crevoisier, C., Crill, P., Covey, K., Curry, C., Frankenberg, C., Gedney, N., Höglund-Isaksson, L., Ishizawa, M., Ito, A., Joos, F., Kim, H.-S., Kleinen, T., Krummel, P., Lamarque, J.-F., Langenfelds, R., Locatelli, R., Machida, T., Maksyutov, S., McDonald, K. C., Marshall, J., Melton, J. R., Morino, I., Naik, V., O’Doherty, S., Parmentier, F.-J. W., Patra, P. K., Peng, C., Peng, S., Peters, G. P., Pison, I., Prigent, C., Prinn, R., Ramonet, M., Riley, W. J., Saito, M., Santini, M., Schroeder, R., Simpson, I. J., Spahni, R., Steele, P., Takizawa, A., Thornton, B. F., Tian, H., Tohjima, Y., Viovy, N., Voulgarakis, A., van Weele, M., van der Werf, G. R., Weiss, R., Wiedinmyer, C., Wilton, D. J., Wiltshire, A., Worthy, D., Wunch, D., Xu, X., Yoshida, Y., Zhang, B., Zhang, Z., and Zhu, Q. : The global methane budget 2000–2012, *Earth Syst. Sci. Data*, 8, 697–751, doi :10.5194/essd-8-697-2016, 2016.
23. **Saunois M.**, RB Jackson, P Bousquet, B Poulter, JG Canadel, The growing role of methane in anthropogenic climate change, *Environmental Research Letters* 11, 120207, doi : 10.1088/1748-9326/11/12/120207, 2016
22. Ostler A., Sussmann R., Patra P.K., Houweling S., De Bruine M., Stiller G.P., Haenel F.J., Pliening J., Bousquet P., Yin Y., **Saunois M.**, Walker K.A., Deutscher N.M., Griffith D.W.T., Blumenstock T., Hase F., Warneke T., Wang Z., Kivi R., Robinson J. : Evaluation of column-averaged methane in models and TCCON with a focus on the stratosphere, *Atmos. Meas. Tech.* 9, 4843–4859, doi :10.5194/amt-9-4843-2016, 2016
21. Tian, H., C. Lu, P. Ciais, A.M. Michalak, J.G. Canadell, E. Saikawa, D.N. Huntzinger, K. Gurney, S. Sitch, B. Zhang, J. Yang, P. Bousquet, L. Bruhwiler, G. Chen, E. Dlugokencky, P. Friedlingstein, J. Melillo, S. Pan, B. Poulter, R. Prinn, **M. Saunois**, C.R. Schwalm, S.C. Wofsy : The terrestrial biosphere as a net source of greenhouse gases to the atmosphere, *Nature*, 531, 225–228, doi :10.1038/nature16946, 2016
20. Yin, Y., Chevallier, F., Ciais, P., Broquet, G., Fortems-Cheiney, A., Pison, I., and **Saunois, M.** : Decadal trends in global CO emissions as seen by MOPITT, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 13433–13451, doi :10.5194/acp-15-13433-2015, 2015.
19. **Locatelli, R.**, Bousquet, P., **Saunois, M.**, Chevallier, F., and Cressot, C. : Sensitivity of the recent methane budget to LMDz sub-grid-scale physical parameterizations, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 9765–9780, doi :10.5194/acp-15-9765-2015, 2015.
18. Fortems-Cheiney A., **Saunois M.**, Pison I., Chevallier F., Bousquet P., Cressot C., Montzka S., Fraser P., Vollmer M, Simmonds P., Young D., O’Doherty S., Artuso F., Barletta B., Blake D., Li S., Lunder C., Miller B., Park S., Prinn R., Takuya S., Steele L., Yokouchi Y., Increase in HFC-134a emissions in response to the success of the Montreal Protocol, *Journal of Geophysical Research*, 120, 11,728–11,742, doi :10.1002/2015JD023741, 2015
17. **Locatelli R.**, P. Bousquet, F. Hourdin, **M. Saunois**, A. Cozic, F. Couvreux, J.-Y. Grandpeix, M.-P. Lefebvre, C. Rio, P. Bergamaschi, S. D. Chambers, U. Karstens, V. Kazan, S. van der Laan, H. A. J. Meijer, J. Moncrieff, M. Ramonet, H. A. Scheeren, C. Schlosser, M. Schmidt,**, A. Vermeulen, and A. G. Williams, Atmospheric transport and chemistry of trace gases in LMDz5B : evaluation

- and implications for inverse modeling, *Geosci. Model Dev.*, 8, 129-150, 2015, doi :10.5194/gmd-8-129-2015
16. Thompson, R. L., Patra, P. K., Ishijima, K., Saikawa, E., Corazza, M., Karstens, U., Wilson, C., Bergamaschi, P., Dlugokencky, E., Sweeney, C., Prinn, R. G., Weiss, R. F., O'Doherty, S., Fraser, P. J., Steele, L. P., Krummel, P. B., **Saunois, M.**, Chipperfield, M., and Bousquet, P. : TransCom N2O model inter-comparison – Part 1 : Assessing the influence of transport and surface fluxes on tropospheric N2O variability, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 4349-4368, doi :10.5194/acp-14-4349-2014, 2014
 15. Kirschke S., Bousquet P., Ciais P., **Saunois M.**, Canadell J.G., Dlugokencky E.J., Bergamaschi P., Bergmann D., Blake D.R., Bruhwiler L., Cameron-Smith P., Castaldi S., Chevallier F., Feng L., Fraser A., Heimann M., Hodson E.L., Houweling S., Josse B., Fraser P.J., Krummel P.B., Lamarque J.F., Langenfelds R.L., Le Quéré C., Naik V., O'Doherty S., Palmer P.I., Pison I., Plummer D., Poulter B., Prinn R.G., Rigby M., Ringeval B., Santini M., Schmidt M., Shindell D.T., Simpson I.J., Spahni R., Steele L.P., Strode S.A., Sudo K., Szopa S., Van der Werf G.R., Voulgarakis A., Van Weele M., Weiss R.F., Williams J.E., Zeng G.. Three decades of global methane sources and sinks. *Nature Geosci.* 6, 813-823, doi :10.1038/ngeo1955, 2013
 14. **R. Locatelli**, P. Bousquet, F. Chevallier, A. Fortems-Cheney, S. Szopa, **M. Saunois**, A. Agustí-Panareda, D. Bergmann, H. Bian, P. Cameron-Smith, M. P. Chipperfield, E. Gloor, S. Houweling, S. R. Kawa, M. Krol, P. K. Patra, R. G. Prinn, M. Rigby, R. Saito, and C. Wilson Impact of transport model errors on the global and regional methane emissions estimated by inverse modeling, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 9917-9937, doi :10.5194/acp-13-9917-2013, 2013
 13. A. Fortems-Cheiney, F. Chevallier , **M. Saunois** , I. Pison , P. Bousquet , C. Cressot , R. Wang , Y. Yokouchi , F. Artuso, HCFC-22 emissions at global and regional scales between 1995 and 2010 : trends and variability, *Journal of Geophysical Res. Atm.*, 118, 7379–7388, doi :10.1002/jgrd.50544, 2013
 12. S. Tilmes, J.-F. Lamarque, L.K. Emmons, A. Conley, M. G. Schultz, **M. Saunois**, V. Thouret, A.M. Thompson, S. J. Oltmans, B. Johnson, D. Tarasick, Technical Note : Ozonesonde climatology between 1995 and 2009 : Description, Evaluation and Applications, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 7475-7497, doi :10.5194/acp-12-7475-2012, 2012.
 11. A. Fortems-Cheiney, F. Chevallier, I. Pison, P. Bousquet, **M. Saunois**, S. Szopa, C. Cressot, T. P. Kurosu, K. Chance, and A. Fried, The formaldehyde budget as seen by a global-scale multi-constraint and multi-species inversion system, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 6699-6721, doi :10.5194/acp-12-6699-2012, 2012.
 10. **M. Saunois**, L. Emmons, J.-F. Lamarque, S. Tilmes, C. Wespes, V. Thouret, M. Schultz, Impact of sampling frequency in the analysis of tropospheric ozone observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 6757-6773, doi :10.5194/acp-12-6757-2012, 2012.
 9. C. Wespes, L. Emmons, D. P. Edwards, J. Hannigan, D. Hurtmans, **M. Saunois**, P.-F. Coheur, C. Clerbaux, M. T. Coffey, R. Batchelor, R. Lindenmaier, K. Strong, A. J. Weinheimer, J. B. Nowak, T. B. Ryerson, J. D. Crouse, and P. O. Wennberg, Analysis of ozone and nitric acid in spring and summer Arctic pollution using aircraft, ground-based, satellite observations and MOZART-4 model : source attribution and partitioning, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 237-259, doi :10.5194/acp-12-237-2012, 2012.
 8. Mari C. H., C.E. Reeves, K. S. Law, L. Andres-Hernandez, B. Barret, I. Bouarar, F. Cairo, C. Delon, F. Fierli, C. Homan, A. Lewis, J. Murphy, **M. Saunois**, V. Thouret, J. Williams, Atmospheric composition of West Africa : highlights from the AMMA program, *Atmospheric Science Letters*, 12,1, doi : 10.1002/asl.289, 2011

7. Williams J. E., M.P. Scheele, P. F. J. van Velthoven, V. Thouret, **M. Saunois**, J.-P. Cammas, C. E. Reeves, Influence of biomass burning on tropospheric composition over the tropical Atlantic Ocean and Equatorial Africa during the West African Monsoon in 2006, *Atmos. Chem. and Phys.*, 10, 9797-9817, doi :10.5194/acp-10-9797-2010, 2010
6. Minga A., V. Thouret, **M. Saunois**, Delon C., Serça D., Mari C., Sauvage B., Mariscal A., Leriche M. and Cros B., What caused extreme Ozone Concentrations over Cotonou in December 2005 ?, *Atmos. Chem. and Phys.*, 10, 895-907, doi :10.5194/acp-10-895-2010, 2010
5. V. Thouret, **M. Saunois**, A. Minga, A. Mariscal, B. Sauvage, A. Solete, D. Aghangla, Nédélec, P. C. Mari, C. E. Reeves, and H. Schlager, An overview of two years of Ozone radiosoundings over Cotonou in the frame of AMMA, *Atmos. Chem. and Phys.*, 9, 6157-6174, doi :10.5194/acp-9-6157-2009, 2009
4. **M. Saunois**, C. E. Reeves, C. Mari, J.G. Murphy, D.J. Stewart, G. P. Mills, D.E. Oram, and R. M. Purvis Ozone budget in the West African lower troposphere during the African Monsoon Multidisciplinary Analysis (AMMA) campaign, *Atmos. Chem. and Phys.*, 9, 6135-6155, doi :10.5194/acp-9-6135-2009, 2009
3. C. H. Mari, G. Cailley, L. Corre, **M. Saunois**, J.-L. Attié , V. Thouret and A. Stohl, Tracing biomass burning plumes from the Southern Hemisphere during the AMMA 2006 wet season experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 3951-3961, doi :10.5194/acp-8-3951-2008, 2008
2. **M. Saunois**, C. Mari, V. Thouret, J.P. Cammas, P. Peyrillé, J.P. Lafore, B. Sauvage, A. Volz-Thomas, P. Nédélec, J.P. Pinty, An idealized two-dimensional approach to study the impact of the West African monsoon on the meridional gradient of tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, 113, D07306, 10 pages , doi :10.1029/2007JD008707, 2008
1. G.P Brasseur, M. Schultz, C. Granier, **M. Saunois**, T. Diehl, M. Botzet, E. Röckner, Impact of Climate Change on the Future Chemical composition of the Global Troposphere, *Journal of Climate*, Vol. 19, pp 3932-3951, doi : <http://dx.doi.org/10.1175/JCLI3832.1>, 2006

2.3 Chapitres dans des livres ou rapports

1. United Nations Environment Programme (2021). **Emissions Gap Report 2021 : The Heat Is On – A World of Climate Promises Not Yet Delivered**. Chapitre 6 : The role of anthropogenic methane emissions in bridging the emissions gap. Nairobi (Auteur principal du chapitre)
2. Canadell, J.G., P.M.S. Monteiro, M.H. Costa, L. Cotrim da Cunha, P.M. Cox, A.V. Eliseev, S. Henson, M. Ishii, S. Jaccard, C. Koven, A. Lohila, P.K. Patra, S. Piao, J. Rogelj, S. Syampungani, S. Zaehle, and K. Zickfeld, 2021 : Global Carbon and other Biogeochemical Cycles and Feedbacks. In **Climate Change 2021 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change** [Masson-Delmotte, V., P. Zhai, A. Pirani, S.L. Connors, C. Péan, S. Berger, N. Caud, Y. Chen, L. Goldfarb, M.I. Gomis, M. Huang, K. Leitzell, E. Lonnoy, J.B.R. Matthews, T.K. Maycock, T. Waterfield, O. Yelekçi, R. Yu, and B. Zhou (eds.)]. Cambridge University Press. In Press. (Contribution au chapitre)
3. **E-Book Enjeux de la transition écologique, Enseigner la transition écologique aux étudiants de licence à l'université**, Chapitre 7 Le système climatique, Section 7.2 et 7.3, EDP Open, DOI : 10.1051/978-2-7598-2661-2, ISBN (ebook) : 978-2-7598-2662-9, ISBN (e-pub) : 978-2-7598-2716-9, 428 pages, Novembre 2021

2.4 Communications orales dans des conférences nationales et internationales

La liste ci-dessous regroupe les présentations orales que j'ai faites dans des conférences internationales depuis ma prise de fonction au LSCE.

1. M. Saunois et al., Closing the Methane Budget : Insights from the Global Methane Budget, Royal Society Discussion meeting : Rising methane : is warming feeding warming ?, 4-7 octobre 2021.
2. M. Saunois et al., Overviews of the last release the Global Methane Budget 2000-2017 : what have we learnt about the last 10 years of increasing methane? AGU Fall conference, San Francisco, December 2019
3. M. Saunois et al., The Global Methane Budget 2000-2017, WMO IG3IS-TRANSCOM Inverse Modelling Workshop, Octobre 2019
4. M. Saunois, et al., The global methane budget 2000-2017 : what have we learnt about the last 10 years of increasing methane? NCGG 8, Amsterdam, June 2019
5. M. Saunois et al. The global methane budget 2000-2012 : Budget and trends, GEIA Conference 2017, Hamburg, September 2017.
6. M. Saunois et al. Changes in the global methane budget since 2000, 2nd ICOS Science Conference 2016, Helsinki, September 2016.
7. M. Saunois, Bousquet P., Josep G. Canadell, Anna Peregon, Ben Poulter, Edward J. Dlugokencky, Philippe Ciais, Robin Locatelli, and the GCP-Methane group Changes in the global methane budget since 2000, Journées Nationales Méthane 2015, Paris, Mars 2015.
8. M. Saunois, P. Bousquet, I. Pison, R. Locatelli, F. Chevallier, J. White, J.B. Miller, J. France, E. Nisbet, R. Fisher, S. Nichol, G. Brailsford, Ed. Dlugokencky, R. Prinn, S. O'Doherty, M. Ramonet, T. Mashida, Y. Tohjima, P. Krummel, P. Steele, R. Langenfelds, Isotopic constraints on the recent methane budget : an atmospheric view, NCGG7 International conference, November 2014.

Ci-dessous sont listées les présentations orales dans des conférences internationales dont je suis co-auteur depuis ma prise de fonction au LSCE, présentées par des collègues, **doctorants** ou **post-doctorants** que j'ai encadrés.

1. **Tzompa-Sosa, Z.**, Dheng, Z., Ciais, P., **Saunois M.**, et al., Comparison of CH₄ emissions reported in UNFCCC inventories against atmospheric inversions, AGU 2021 Fall meeting, B24B-02, December 14 2021.
2. Deng Z., Ciais, P., **Tzompa-Sosa, Z.**, **Saunois M.**, et al., Comparing National Greenhouse Gas Budgets Reported in UNFCCC Inventories against Atmospheric Inversions, AGU 2021 Fall meeting, B23B-08, December 14 2021.
3. Fortems-Cheiney A., et al., Analysis of the anthropogenic and biogenic NO_x emissions over 2008-2017 : assessment of the trends in the 30 most populated urban areas in Europe, EGU21-4566, EGU 2021.
4. **Thanwerdas J.**, Saunois M., et al., Running a new 3-D variational inversion system to assimilate isotopic observations along with CH₄ observations, EGU21-4077, EGU 2021.
5. Bousquet P., Saunois M., et al. GCP-CH₄ round 3 : protocols and first results of atmospheric inversions, B43D-01, December 2018, AGU 2018.
6. Knox S. et al, FLUXNET methane synthesis activity : Objectives, Observations, and Future Directions, B43D-08, December 2018, AGU 2018.
7. **Zhao, Y.**, Saunois, M, et al. Inter-model comparison of global hydroxyl radical (OH) and their impact on methane simulation, oral presentation at CCMI workshop, Chinese University of Hong Kong (CUHK), Hong Kong, August 7-9, 2019
8. **Zhao, Y.**, Saunois, M, et al., Inter-model comparison of global hydroxyl radical fields and influences on methane simulations, NCGG 8, Amsterdam, June 2019.
9. Saunois M., Bousquet P., et al., The global methane budget 2000-2012. What's next ?, AGU Fall meeting 2016, December 2016.
10. **Zakia Bourakkadi**, Sébastien Payan, Robin Locatelli, Frederic Chevallier, Marielle Saunois et al. :

- Quantifying global and regional methane budget by inverse modelling, The 12th International Workshop on Greenhouse Gas Measurements from Space (IWGGMS-12), Jun 2016, Kyoto, Japan
11. Peter Bergamaschi, Ute Karstens, Ernest Koffi, Marielle Saunois, et al., Inverse modelling of European CH₄ and N₂O emissions 2006-2012 using different inverse models and improved atmospheric observations, EGU 2016. EGU2016-4423.
 12. **Zakia Bourakkadi**, Sébastien Payan, Robin Locatelli, Frederic Chevallier, Marielle Saunois, and Philippe Bousquet, Global and regional methane budget and its inter-annual variability, EGU Vienna 2016. EGU2016-7947.
 13. **Robin Locatelli**, Philippe Bousquet, and Marielle Saunois, Estimation of methane sources and sinks by inverse modelling using GOSAT observations, EGU 2015, Vienna. EGU2015-14106.
 14. Philippe Bousquet, Marielle Saunois, Josep G. Canadell, Anna Peregon, Ben Poulter, Edward J. Dlugokencky, Philippe Ciais, Robin Locatelli, and the GCP-Methane group, Changes in the global methane budget since 2000, AGU fall meeting 2014.
 15. Berchet A., Pison I., Chevallier F., J-D. Paris, J-L bonne, M. Saunois, M. Sasakawa, T. Machida ; J. Lavrit, J. Winderlich, J. Hatakka ; M. Yu Arshinov, R. Spahni, H. Lee, Methane flux quantification in Eurasia by atmospheric inversion, NCGG7 International conference, November 2014.
 16. Bergamaschi, P., U. Karstens, M. Saunois, A.J. Manning, E. Koffi, A. Vermeulen, G. Janssens-Maenhout, S. Hammer, I. Levin, M. Schmidt, M. Ramonet, M. Lopez, J. Lavric, T. Aalto, H. Chen, L. Haszpra, O. Hermansen, G. Manca, J. Moncrieff, F. Meinhardt, J. Necki, M. Galkowski, S. O'Doherty, N. Paramonova, M. Steinbacher, and E. Dlugokencky, Top-down estimates of European CH₄ and N₂O emissions using different inverse models and improved observations, NCGG-7, Nov 2014.
 17. Karstens, U., P. Bergamaschi, I. Levin, A. Manning, M. Saunois, A.T. Vermeulen, E. Koffi, R. Locatelli, M. Schmidt, R. Fisher, J. Hatakka, H.A.J. Meijer, J. Moncrieff, C. Schlosser, and M. Ramonet, Validation of atmospheric transport models through comparisons with 222Radon and boundary layer mixing height observations, NCGG-7, Nov 2014.
 18. **Locatelli R.**, P. Bousquet, F. Hourdin, M. Saunois, A. Cozic, F. Couvreur, J.-Y. Grandpeix, M.-P. Lefebvre, C. Rio, P. Bergamaschi, S.D. Chambers, U. Karstens, V. Kazan, S. van der Laan, H.A.J. Meijer, J. Moncrieff, M. Ramonet, H.A. Scheeren, C. Schlosser, M. Schmidt, A. Vermeulen, and A.G. Williams, Sensitivity of the recent methane budget to transport model errors, NCGG-7, Nov 2014.
 19. Yi Yin, Frederic Chevallier, Audrey Fortems-Cheiney, Isabelle Pison, Marielle Saunois, and Philippe Ciais, Attribution of CO concentration decline in recent decades by atmospheric inversion, EGU, April 2014. EGU2014-16005-2
 20. **Robin Locatelli**, Philippe Bousquet, et al., Impact of transport and modelling errors on the estimation of methane sources and sinks by inverse modeling, EGU meeting, Vienna, 2013, 7-12 April, EGU2013-3323.
 21. Bousquet P., Saunois M., Isabelle Pison, Anna.Peregon, Josep G. Canadell, Philippe Ciais, and Contributors to GCP methane budget, Global Methane Budget : Recents trends and Activities for GCP, Transcom Meeting, Groeningen, June 2014.
 22. **Locatelli R.**, Philippe Bousquet, et al., Transcom Meeting, June 2014
 23. Bousquet P. Philippe Ciais, Kirschke S., Saunois M., Josep G. Canadell, and Contributors to GCP methane budget, Three decades of methane sources and sinks with a focus on the past 15 years, AGU Fall Meeting, December 2013.
 24. A. Fortems-Cheiney, F. Chevallier, I. Pison, P. Bousquet, C. Cressot, M. Saunois, S. Szopa, T. Kurosu, K. Chance, A. Fried, C. Reeves, G. Mills : Analysing recent emissions and production of hydrocarbons using a comprehensive multiconstraint inversion for the methane oxydation chain, 15th Conference of the Global Emissions Initiative (GEIA), 11-13 juin 2012, Toulouse, France.

2.5 Communications affichées dans des conférences internationales

Ci-dessous sont listées les présentations affichées dans des conférences internationales dont je suis co-auteur depuis ma prise de fonction au LSCE, présentées par des collègues, **doctorants** ou **post-doctorants** que j'ai encadrés.

1. Yin Y., Chevallier F., Frankenberg C., Ciais P., Bousquet P., Sauniois M., Zheng B., Worden J., Bloom A., Parker R., Jacob D. J. and Dlugokencky E.J., Recent acceleration of methane growth rate : leading contributions from tropical wetlands and China, B13O-2497, AGU Fall conference, San Francisco, December 2019
2. **Zhao Y.**, Sauniois M., Bousquet P., Hegglin M.I. and Zheng B., Influences of hydroxyl radical on the top-down estimate of the global methane budget, B13O-2512, AGU Fall conference, San Francisco, December 2019
3. **Thanwerdas J.**, M. Sauniois, A. Berchet and P. Bousquet, Global CH₄ sources estimated from atmospheric observations of CH₄ and its $\delta^{13}C$ CH₄ isotopic signal through 3-D variational inverse modelling, TransCom 2019, Paris, Octobre 2019.
4. **Thanwerdas J.**, M. Sauniois, P. Bousquet, A. Berchet, I. Pison, D. Hauglustaine, M. Ramonet, C. Lett, M. Lopez, M. Delmotte, C. Crevoisier, F. Danis, C. Sweeney and B. Baier, Impact of atomic chlorine on the modelling of total methane and $\delta^{13}C$ CH₄ isotopic signal in LMDz, EGU 2019, Vienne, Avril 2019
5. **T. Thonat**, M. Sauniois, P. Bouquet, I. Pison, Z. Tan, Q. Zhuang, P. Crill, B. Thornton, D. Bastviken, E. J. Dlugokencky, N. Zimov, T. Laurila, J. Hatakka, O. Hermansen, D. E. J. Worthy : Assessment of the sources contributing to the observed atmospheric methane over the Arctic region based on the CHIMERE model, AGU 2017, Vienne, Autriche, 23-28 avril 2017.
6. **Y. Yin**, F. Chevallier, P. Ciais, G. Broquet, A. Fortems-Cheiney, I. Pison, M. Sauniois, Decadal Trends in Global CO Emissions as Inferred from Atmospheric Inversion, AGU 2015, 14-18 décembre, San Francisco, États-Unis, 2015
7. **Y. Yin**, F. Chevallier, A. Fortems-Cheiney, I. Pison, M. Sauniois, P. Ciais : Attribution of CO concentration decline in recent decades by atmospheric inversion, European Geosciences Union General Assembly 2014, 27 avril - 2 mai 2014, Vienne, Autriche.

3 Actions de diffusion scientifique

Mes activités actuelles et récurrentes de diffusion scientifique sont listées ci-dessous, suivies des activités ponctuelles passées.

Activités actuelles et récurrentes

- 2022 Co-organisation de la journée nationale sur le méthane (les 21-22 septembre 2022 à Paris)
- Depuis 2021 **Membre du Scientific Advisory Panel** du Climate and Clean Air Coalition du Programme des Nations Unies pour l'Environnement (PNUE, UNEP en anglais)
- Depuis 2016 **Communication avec la presse** (conférence de presse, entretiens pour les journaux, la radio, la télévision) sur la diffusion du bilan du méthane, l'évolution actuelle des concentrations atmosphériques de méthane et l'enjeu du méthane dans le changement climatique.
- Depuis 2013 **Coordination des travaux sur le bilan mondial du méthane dans le cadre du Global Carbon Project (www.globalcarbonproject.org)** (regroupant environ 80 personnes dans le monde) : mise à disposition de la base de données sur le site du CDIAC, de ICOS et de GCP. Point de contact des utilisateurs de la base de données élargie. Aide à la réalisation des infographies du Global Carbon Atlas (www.globalcarbonatlas.org)
- Depuis 2010 **Relectrice dans des journaux de rang A** (ACP, JGR, GBC, Earth's Future, ESSD,...)

Activités ponctuelles, passées

- Mars 2022 Conférence invitée à l'Institut de Physique de Rennes, le 22 mars 2022. Le méthane dans l'atmosphère : surveillance, sources et réduction.
- Déc. 2021 Séminaire invité à l'International Space University - Strasbourg - à distance le 2 décembre 2021. Methane in the atmosphere : monitoring, changes budget and mitigation.
- 2021 **Co-auteur principal du chapitre *Méthane* du rapport sur les écart entre les besoins et les perspectives en matière de réduction des émissions de 2021 (*Emission Gap Report*)** du PNUE. (voir liste chapitre de livre)
- 2020-2021 Participation au **SPOC « Transition écologique »** produit par l'université Paris-Saclay, pour la création de deux séquences (bilan radiatif et effet de serre ; Emissions de gaz à effet de serre par régions et par secteurs) - Contribution au Ebook " Enjeu de la transition énergétique" (voir liste chapitre de livre)
- Janv. 2015 **Journée de formation** au Service technique de l'Aviation civile à Toulouse pour une douzaine de personnes sur la qualité de l'air à visée de vulgarisation vers les entreprises, dispensée par **Formation CNRS Entreprise**. Il s'agit de promouvoir les activités de recherches et d'enseignements et d'informer/former le public/les entreprises sur ces thématiques. L'organisation de cette formation a lieu dans le cadre d'un des axes du Labex-IPSL dans lequel le laboratoire est fortement impliqué.
- 2015 Participation au **MOOC « Causes et enjeux du changement climatique »** produit et coordonné par l'UVED (production de la vidéo sur les gaz à effet de serre halogénés et l'ozone) (1^{ère} session en octobre-décembre 2015 et 2^{nde} session en mai 2017)
- 2012-2017 Participation (organisation et encadrement) à la **journée de l'école d'été Climate-KIC** (Knowledge and Innovation Community) animée par le LSCE (50 étudiants européens de niveau master et plus) - sur le cycle du carbone avec conférence et ateliers

4 Activités d'encadrement doctoral

Entre 2014 et 2022, j'ai (co-)encadré **trois stagiaires de master, trois doctorants et six post-doctorants** sur différents sujets et dans le cadre des différents projets de recherche dans lesquels je me

suis impliquée (voir liste ci-dessous).

J'ai **participé en tant qu'examinatrice au jury de thèse** d'Olivier Membrive (*Caractérisation de la distribution verticale des gaz à effet de serre CO₂ et CH₄ par mesures sous ballons. Application à la validation d'observations satellites*) en décembre 2016 et Anthony Bernus (*Modélisation du bilan d'énergie des lacs dans le modèle de surface continentale ORCHIDEE*) en janvier 2022.

Je participe à la **commission de suivi des doctorants et doctorantes du LSCE** en tant que "marraine" de Robin Plauchu en thèse depuis novembre 2020.

4.1 Liste de l'ensemble des encadrements doctoraux et post-doctoraux

- 2022 - Co-encadrement (80%) de la **thèse** de A. Martinez intitulée *Sources et puits de méthane : quantification de l'apport des espèces co-émises dans l'inversion atmosphérique*
- 2021- Co-encadrement (50%) de la **thèse** de J. Bernard sur *l'estimation des émissions de méthane par les zones humides à l'aide de données satellites*
- 2021- Co-encadrement (25%) de X. Lin, en **post-doc** dans le cadre du projet EMME-Care.
- 2021-2022 Co-encadrement (25%) de Z. Tzompa-Sosa, en **post-doc** dans le cadre du projet financé par l'ESA (ESA-CCI Products to support RECCAP-2 and the Global Stocktake).
- 2021 Co-encadrement (50%) du **stage de M2** d'Adrien Martinez sur *l'Evaluation des données IASI CH₄ et N₂O dans le modèle LMDz.*
- 2018–2021 Co-encadrement (80%) de la **thèse** de J. Thanwerdas sur *l'estimation des émissions et puits de méthane par inversion atmosphérique multi-contraintes du transport et de la chimie atmosphérique à l'aide d'un ensemble d'observations*
- 2018-2020 Co-encadrement (75%) de Y. Zhao en **post-doc** dans le cadre du projet financé par la fondation Gordon and Betty Moore sur l'étude de l'impact de OH sur les estimations des émissions de méthane.
- 2017–2020 Co-encadrement (25%) de la **thèse** de B. Szenazi, *Inversion des émissions de méthane en Europe, apport des données isotopiques.* Projet ITN MEMO2.
- 2017–2018 Co-encadrement (50%) de X. Lin en **post-doc** dans le cadre du projet de la Fondation Gordon-Moore.
- 2017 Co-encadrement (75%) avec T. Thonat du **stage de M1** (2,5 mois) de L. Rouyer, *Analyses de mesures de méthane lors de la campagne YAK de 2012 à l'aide du modèle POLARCHI-MERE.*
- 2016–2017 Co-encadrement (40%) de T. Thonat en **post-doc dans le cadre du projet IZOMET-FS** (2 ans), *Inversion des sources et puits de méthane en Arctique*
- 2016 Encadrement (100%) du **stage de Master** (6 mois) de T. Hocking, étudiant ERASMUS de l'Imperial Collège à l'Université de Paris Sud (projet IZOMET-FS). *Simulations directes des isotopes du méthane à l'échelle planétaire avec le modèle LMDz.*
- 2014-2015 Encadrement (100%) d'I. Mappé-Foggaging en **post-doc dans le cadre du projet InGOS** (1,5 ans). *Estimations des sources et puits de N₂O en Europe et analyse du réseau de surface InGOS*
- 2011-2015 Co-encadrement (25%) de la **thèse** de R. Locatelli avec P. Bousquet. *Estimation des sources et puits de méthane : bilan planétaire et impacts de la modélisation du transport atmosphérique*

4.2 Thèses en co-direction

Adrien Martinez vient de débiter sa thèse dans le cadre du projet ANR AMB-M³. L'objectif de ses travaux est d'évaluer l'apport des espèces co-émises dans l'estimation des émissions de méthane à l'échelle mondiale. Il s'agira de travailler sur la co-émission de l'éthane dans le secteur des énergies fos-

siles et du monoxyde de carbone lors des émissions par les feux de biomasse.

Juliette Bernard a débuté sa thèse en octobre 2021, sous la direction de Catherine Prigent (LERMA) et moi-même à 50%. Ces travaux portent sur l'estimation des émissions de méthane par les zones humides en s'appuyant sur les mesures satellites des zones inondées (produit GIEMS-2 développé par le LERMA). Le lecteur se reportera à la section 4.2 du chapitre IV pour plus de détail. Ces travaux de thèse doivent aboutir à deux produits. Le premier concerne les surfaces de zones inondées. Il s'appuiera sur le produit dynamique GIEMS-2 de surfaces inondées détectées par satellites micro-ondes et sur le produit statique GLWD (Global Lakes and Wetlands data sets) pour fournir un produit dynamique (mensuel sur 1995-2020) discriminant les surfaces de différents types entre : les lacs, les réservoirs, les rivières, et les différents types de marécages (permanent, intermittent, différentes tourbières). Le second produit fournira une estimation dynamique des émissions de méthane par ces zones d'eaux douces en s'appuyant sur le premier produit lié à la surface en eau et, sur un modèle relativement simple d'émissions de méthane. Ce modèle prendra en entrée des données de réanalyses météorologiques et des données satellites afin de caractériser la température du sol, son humidité, le contenu en carbone du sol en lien avec la production primaire.

Entre novembre 2018 et décembre 2021, j'ai co-encadré la thèse de **Joël Thanwerdas** à hauteur de 80%, partagée avec P. Bousquet, directeur de thèse, et Antoine Berchet pour la partie plus technique. **Joël a soutenu sa thèse le 15 décembre 2021** à l'Université de Paris-Saclay. La thèse de J. Thanwerdas a porté sur *l'estimation des émissions et puits de méthane par inversion atmosphérique multi-contraintes du transport et de la chimie atmosphérique à l'aide d'un ensemble d'observations*. Le lecteur se reportera à la section 3.5 du chapitre III pour plus de détail. Les multi-contraintes en question sont en particulier les isotopes de méthane, dont la signature diffère selon les secteurs d'émissions. Introduire une contrainte avec les isotopes dans un système d'inversions des flux de méthane peut permettre de mieux répartir les émissions de méthane par secteur. Dans un premier temps, lors de son stage de Master 2, Joël a implémenté et analysé l'impact du puits de méthane lors de sa destruction par le chlore atomique (sous la direction d'I. Pison, étant moi-même en congé maternité). En effet, ce puits n'existait pas dans le modèle de chimie-transport de l'équipe alors que le signal isotopique du méthane y est fortement sensible. Les études bibliographiques montrent de plus une forte incertitude sur la quantité de chlore atomique dans la troposphère et la stratosphère. L'impact du puits par le chlore a été estimé vis-à-vis du méthane et de son profil vertical mais aussi vis-à-vis des isotopes du méthane (**article soumis à ACP [a]**) - une première version avait été rejetée. Par la suite, Joël a développé un modèle d'inversion multi-contraintes permettant d'utiliser les isotopes du méthane dans des inversions atmosphériques afin de pouvoir optimiser non seulement le total mais aussi différentes catégories de sources de méthane. Le système obtenu permet de plus d'optimiser les signatures isotopiques associées à ces sources [56]. Les développements de Joël ont contribué au développement du modèle d'inversion communautaire CIF (Community Inversion Framework), dont A. Berchet a la responsabilité dans le cadre du projet européen VERIFY (<https://verify.lsce.ipsl.fr>) [49].

Entre novembre 2011 et janvier 2015, j'ai co-encadré la thèse de **Robin Locatelli** à hauteur de 25%, partagée avec P. Bousquet, directeur de thèse. Ces travaux portaient sur *l'Estimation des sources et puits de méthane : bilan planétaire et impacts de la modélisation du transport atmosphérique*. Le lecteur se reportera à la section 3.3 du chapitre III pour plus de détail. Différentes études ont été développées afin d'estimer l'impact des erreurs de transport dans les modèles d'inversions sur les estimations des émissions de méthane [14]. Puis des études plus spécifiques à LMDz ont permis d'estimer l'impact des paramétrisations sous-maille sur les concentrations simulées de traceurs [17] et sur les estimations des émissions de méthane selon les observations assimilées dans le système d'inversion [19].

5 Participation à des projets et programmes scientifiques

5.1 Pilotage de projets et programmes scientifiques

2013–Présent	Co-Coordination du bilan mondial du méthane dans le groupe méthane du Global Carbon Project (GCP, www.globalcarbonproject.org)
2022-2023	PI du projet LEFE EmOSER. Émissions de méthane à l'échelle planétaire : Optimiser le Système d'assimilation de données pour des Estimations Routinières Budget 16k€
2022-2026	PI du projet ANR JCJC AMB-M³ Advanced Methane Budget through Multi-constraints and Multi-data streams Modelling. Budget 322k€
2022-2023	Co-PI du projet européen ESA- RECCAP-2A (RECCAP-2 Attribution : Balancing the global land carbon budget and elucidating its attribution to regional drivers). Budget 850k€ dont LSCE 250k€. + Option "TROPOMI" (150k€ pour le LSCE)
2017–2020	Co-PI du projet international financé par la fondation américaine MOORE (Quantifying Sources and Sinks in the Global Methane Cycle). Budget français de 100k€ par an. Encadrement de Y. Zhao en post-doc. Publications : [37,40,43].
2015–2017	Co-PI du projet franco-suédois Izomet (Distinguishing Arctic CH ₄ Sources to the Atmosphere Using Inverse Analysis of High Frequency CH ₄ , ¹³ CH ₄ and CH ₃ D Measurements : IZOMET-FS). Budget de 400k€. Encadrement de T. Thonat en post-doc. Publications : [26, 36, 33].
2013–2015	Co-PI du projet national ESPiGRAD (Estimation des Sources et Puits de Gaz à effet de serre - CO ₂ , CH ₄ et N ₂ O à l'échelle Régionale par Assimilation de Données atmosphériques in-situ). Programme GMES du Ministère du Développement Durable. Budget de 30k€. Encadrement d'un stage de M1. Publication : [31].
2011–2015	PI LSCE d'un <i>workpackage</i> du projet européen InGOS (Integrated non-CO ₂ Greenhouse gas Observing System) - 7 ^{ème} PCRD. Budget LSCE du WP = 150k€. Livrable rédigé en lien avec les travaux d'I. Mappé, en post-doc sous ma direction pour ce projet. Principaux résultats : comparaison des modèles de chimie transport, comparaison des émissions de méthane en Europe obtenues différents systèmes d'inversions. Publications : [29, 30,39].

Ci-dessous, je détaille un peu plus la coordination du bilan mondial du méthane dans le cadre du Global Carbon Project, qui a constitué le cœur de ma coordination de projets.

Le projet international Global Carbon Project (2013-présent), initialement dédié au CO₂, a ouvert une initiative sur l'étude du méthane en 2013. Les objectifs de ce projet international sont :

- de stimuler la recherche et les projets sur les bilans mondiaux et régionaux du méthane et sur l'évolution de ces bilans depuis la période pré-industrielle
- de produire des mises à jour régulières des bilans de méthane
- de produire des articles de synthèse sur les bilans de méthane

Dans ce projet, nous regroupons les expertises de tous les « corps de métiers » du méthane : observations in-situ et satellite, modélisation inverse, modèles biogéochimiques des émissions des zones inondées, inventaires anthropiques, modèles de chimie-climat. Nous avons publié une *première synthèse* sur le bilan du méthane des trois dernières décennies en 2013 dans Nature Geosciences [15] lançant cette initiative. Ce premier bilan a été repris dans le rapport de l'IPCC AR5. Le *deuxième bilan* a été publié en décembre 2016 [23, 24, 28]. Le bilan est publié dans ESSD (Earth System Science Data) comme une *living-review*, ayant pour vocation d'être mise à jour régulièrement. Le *troisième bilan* a été publié en juillet 2020 [41,42,52]. Les résultats de ces travaux ont été repris pour constituer les éléments scientifiques du rapport de l'IPCC AR6, WG1, publié en août 2021. Ces activités permettent au LSCE de rester au centre de la recherche sur le méthane et de poursuivre son rayonnement international.

5.2 Participation à des projets et programmes scientifiques

- 2021– **Participation au projet Eastern Mediterranean and Middle East – Climate and Atmosphere Research (EMME-CARE) financé par European Union’s research and innovation program (under grant no. 856612) and the Cyprus Government.** Budget 45 M€ (dont 300k€ pour le LSCE)
- 2020–2021 **Participation au projet européen ESA-CCI products to support RECCAP-2 and the Global Stocktake.** Budget 440 k€ (dont 150k€ pour le LSCE)
- 2017–2022 **Participation au projet européen VERIFY, réponse à l’appel à projet européen SC5-04-2017.** Participation au WP4 : CH₄ and N₂O emissions. Budget LSCE 2M€.
- 2017–2020 **Participation au projet européen ITN Marie Curie MEMO2 (MEthane goes MObile - MEasurements and MOdelling).** Budget LSCE pour deux doctorants (480 k€)

6 Responsabilités administratives et pédagogiques

Depuis, 2020, je suis élue au **Conseil d’Administration** de l’UVSQ dans le collège B.

Depuis 2020, je suis **co-responsable du Master 1 STePE de l’Université Paris-Saclay, parcours « Enjeu : Comprendre les changements climatiques : du passé au futur »** qui accueille une quinzaine d’étudiants chaque année. En tant que maître de conférence à l’Université de Versailles Saint Quentin, je suis **responsable pédagogique** de différents modules et référente académique pour un à deux stages de fin d’études et participe aux jurys de stage. Ci-dessous, la liste de mes responsabilités pédagogiques pour l’année universitaire (2021-2022), qui est représentative des 4-5 dernières années et des années à venir :

Niveau Master M2

- **Module Air intérieur et air extérieur du M2 PEPs** (une douzaine d’étudiants avec la participation d’intervenants extérieurs - Airparif et CSTB, depuis 2015)
- **Module Modélisation des climats passés, présents, futurs** du M2 ECLAT depuis 2020. Environ 15 étudiants. 3 intervenants extérieurs (chercheurs).

Niveau Master M1

- **Co-coordination avec Jane Lecomte de l’Espace Pédagogique Commun sur l’Environnement** qui regroupe des modules transverses à différentes Graduate Schools de l’Université Paris Saclay (<https://epce.esse.u-psud.fr>), depuis 2020.
- **Module Analyse de données : programmation - M1 STePE** concerne une vingtaine d’étudiants chaque année depuis 2011 (ancienne maquette : calcul scientifique).
- **Module Physique des fluides - M1 STePE depuis 2020** concerne 10-15 étudiants chaque année
- **Module Grands défis pour l’Environnement : projet multidisciplinaire**, depuis 2015. Module de l’Espace Pédagogique Commun sur l’Environnement transverse à différentes Graduate Schools de l’Université Paris Saclay. Environ 150 étudiants de mentions différentes.
- **Stage de terrain - M1 STePE** pour une quinzaine d’étudiants sur le thème de la physique-chimie de l’atmosphère, en lien avec le climat et la mesure des GES

Niveau Licence

- **Une séance de TD environnement dans le module Méthodologie - L1**, depuis 2014. Concerne 11 groupes de TD, soit environ 300 étudiants, implique 4-5 collègues enseignants selon les années.
- **Module Enjeu Climat : Sciences et Société**, rentrée 2021 pour environ 200 étudiants en L2 Physique, L2 Maths, L2 SVT et Licence Double Diplôme Maths Physique et Application de l’Université Paris Saclay.

Deux alliés pour l'étude de la composition de l'atmosphère : les outils de modélisation et d'observation

Comprendre la composition de l'atmosphère et sa variabilité spatio-temporelle nécessite l'observation c'est-à-dire la mesure de la composition de l'atmosphère et de sa variabilité spatio-temporelle, mais aussi la modélisation. La modélisation de la composition chimique de l'atmosphère peut avoir différents objectifs selon le modèle et les questions scientifiques. Cela peut être de prédire la qualité de l'air par exemple, de prévoir la composition (future) de l'atmosphère, de tester des scénarios d'émissions, de tester l'implémentation de processus physique ou chimique, ou encore de quantifier les contributions des différents processus physico-chimiques en action. Ces deux outils sont donc complémentaires et indissociables dans l'étude de la composition chimique de l'atmosphère et peuvent être combinés par l'assimilation d'observations dans les modèles de chimie-transport.

Mes travaux ont porté essentiellement sur l'ozone troposphérique et le méthane que je présente ci-dessous. Ces deux gaz sont liés dans leur chimie puisque le méthane contribue à la formation de l'ozone. Ils ont donc tous les deux des impacts sur le réchauffement climatique et la pollution atmosphérique et, donc sur la santé humaine et les écosystèmes (voir Fig. [Intro.1](#)).

1 Les principaux gaz en trace étudiés

1.1 L'ozone troposphérique

Comme mentionné dans l'introduction (p. 2), l'ozone est un polluant de la qualité de l'air et un gaz à effet de serre. L'ozone n'est pas émis directement dans l'atmosphère mais résulte de l'interaction de nombreux gaz en trace. Comme illustré sur la figure [Intro.1](#), l'ozone est un produit secondaire dont les concentrations dans la troposphère sont fortement dépendantes des émissions de ses précurseurs (CO, NO_x, CH₄, COV), du transport des masses d'air et du rayonnement. Ces concentrations ont augmenté dans la troposphère suite à l'augmentation des émissions de ses précurseurs par les activités humaines. L'ozone est un indicateur particulièrement intéressant de l'état chimique de l'atmosphère car sa distribution est la résultante de processus à la fois dynamiques et chimiques. Cette double contribution (dynamique et chimique) complique cependant l'interprétation des observations car les processus sont fortement non linéaires. Pour mieux comprendre la variabilité spatio-temporelle ainsi que l'évolution passée et future des concentrations d'ozone, il est nécessaire de suivre une double stratégie :

- régionale pour isoler des processus dynamiques et des régimes chimiques particuliers à la géographie et la saison
- globale pour accéder aux variabilités inter-annuelles et saisonnières en prenant en compte le transport inter-continentale et inter-hémisphérique.

1.2 Le méthane

Le méthane est le second gaz à effet de serre d'origine anthropique ayant contribué à l'effet de serre additionnel. Ses émissions depuis la période pré-industrielle ont contribué à un tiers de l'augmentation de température liée au forçage radiatif des gaz à effet de serre (*Masson-Delmotte et al., 2021*). Les sources de méthane sont variées, aussi bien d'origine naturelle qu'anthropique. Le méthane est produit par trois processus de formation. On parle ainsi de méthane *biogénique*, *thermogénique* et *pyrogénique* (Fig.II.1). Le méthane biogénique résulte de la décomposition de la matière organique dans un environnement dépourvu d'oxygène par des micro-organismes appelés *Archae*, il est émis par des sources naturelles comme les marécages ou des sources anthropiques comme les rizières, lors de la fermentation entérique des ruminants ou la décomposition des déchets dans les décharges. Le méthane thermogénique a été produit sur des millions d'années suite à la dégradation à hautes températures et hautes pressions de la matière organique dans les roches sédimentaires ; il est émis essentiellement lors de l'exploitation des énergies fossiles (pétrole, gaz, charbon) et naturellement dans des failles géologiques. Finalement le méthane pyrogénique résulte de la combustion incomplète de la matière organique lors des feux de forêts ou de savanes, mais aussi lors de la combustion de biofuel (bois, tourbe, ..). Le méthane est détruit dans l'atmosphère par trois radicaux, essentiellement le radical hydroxyle OH (90% de son puits chimique), mais aussi par le radical chlore Cl et oxygène O(¹D) dans la stratosphère. Une partie du méthane est absorbée par les sols dans certaines régions - sols secs, par des micro-organismes méthanotrophes. Ainsi, son temps de vie dans l'atmosphère est de l'ordre de 10 ans, ce qui fait de lui une cible intéressante en termes de limitation du réchauffement climatique à court et moyen termes.

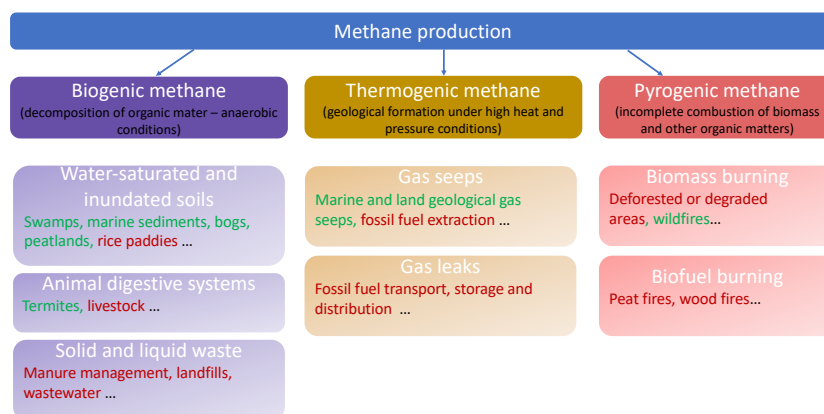


FIGURE II.1 – Sources de méthane pour les trois type de processus de formation : biogénique, thermogénique et pyrogénique. En rouge les sources d'origine anthropique et en vert celles d'origine naturelles.

Comme mentionné dans l'introduction, les estimations des sources et des puits de méthane sont faites à partir de deux types d'approches : les approches montantes et les approches descendantes.

Les approches montantes sont des approches qui partent de la description des processus et de paramétrisations déterminant les émissions de méthane. Dans ce cadre, on retrouve les inventaires d'émissions anthropiques, les modèles de surfaces continentales représentant par exemple les émissions de méthane par les zones humides, les mesures satellitaires de surfaces brûlées associées à des modèles de végétation pour estimer les émissions par les feux de biomasse, les modèles de chimie-climat pour simuler les quantités d'oxydants tels que OH ou O(¹D) ou Cl qui détruisent le méthane dans l'atmosphère ou encore des extrapolations par montée d'échelle de mesures locales à la surface pour estimer les émissions géologiques ou par les lacs et rivières (en attendant des estimations basées sur la modélisation des processus).

Les approches descendantes correspondent à l'estimation des sources et puits par inversion atmosphérique, qui sera décrite dans la section 3.2 de ce chapitre, et dans les travaux de recherche du chapitre III.

2 Observation de la composition chimique de l'atmosphère

La mesure de la composition chimique de l'atmosphère a longtemps été restreinte à des mesures à la surface (ou sur des tours instrumentées), puis elle s'est étendue à des mesures par ballons, aéroportées ou sur bateaux. Enfin la conquête spatiale et son évolution ont permis d'instrumenter des satellites dédiés à l'étude de la composition de l'atmosphère. Ces derniers pallient en partie la faible couverture des réseaux de mesures au sol et facilitent la surveillance de zones difficiles d'accès, au détriment d'une perte en précision dans les mesures satellitaires et d'une information souvent intégrée sur une colonne totale ou partielle de l'atmosphère. La disponibilité des observations en termes de couverture spatiale et de couverture temporelle est critique et souvent une limitation et une source d'incertitude pour de nombreuses questions scientifiques.

Ci-dessous, seuls les moyens d'observation des deux gaz principalement discutés dans ce manuscrit (l'ozone et le méthane) et utilisés dans le cadre des études décrites ci-après sont détaillés.

2.1 Observation de l'ozone

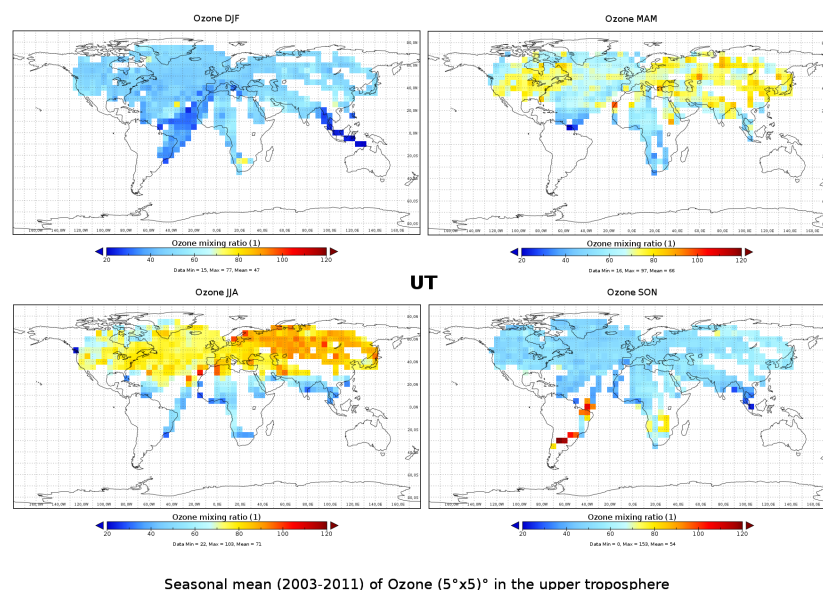


FIGURE II.2 – Climatologie saisonnière des concentrations d'ozone dans la haute troposphère issue des données MOAZIC/IAGOS recueillies entre 2003 et 2011 et moyennées sur une grille de résolution 5° x 5°. Source : http://www.iagos.fr/cams/reanalysis_climatology_03.php

Les études présentées sur l'ozone troposphérique se sont focalisées sur la région de l'Afrique de l'Ouest et de l'Atlantique Nord. Les mesures d'ozone à la surface sont généralement liées à la surveillance de la qualité de l'air et sont plus largement déployées dans les pays développés. Ainsi l'Afrique de l'Ouest restait-t-elle une région très peu documentée au moment de ma thèse malgré sa forte influence sur la chimie de l'ozone. Des campagnes de mesures avaient été dédiées à cette région en déployant des mesures ponctuelles à la surface et aéroportées portant plutôt sur les feux de biomasse (Transport & Atmospheric Chemistry near the Equator-Atlantic, TRACE-A; Southern African Fire/Atmospheric Research Initiative, SAFARI). Le programme international Analyses Multidisciplinaires de la Mousson Africaine (AMMA, *Redelsperger et al. (2006)*) a mis en place des **campagnes de mesures intensives entre 2005 et 2007 pour étudier non seulement la composition de l'atmosphère mais aussi la circulation de la mousson africaine**, l'hydrologie et les liens avec les différents écosystèmes et la santé humaine. Lors de cette campagne, des mesures, au sol, par ballon et aéroportées de multiples espèces dont l'ozone ont été déployées. Celles-ci ont complété les données issues des mesures aéroportées sur avions commerciaux du

programme MOZAIC (Measurements of OZone and water vapor by in-service AIrCraft, *Marenco et al. (1998)*), à présent nommé IAGOS (In-service Aircraft Global Observation system). Ces mesures offrent des profils verticaux des concentrations d'ozone lors des phases de décollage et d'atterrissage et la distribution spatio-temporelle des concentrations dans la zone de la haute troposphère - basse stratosphère lors de la phase de croisière, permettant d'établir des climatologies (*Thouret et al., 1998; Zbinden et al., 2006*), comme illustré sur la Figure II.2. Les mesures MOZAIC/IAGOS offrent aujourd'hui une longue série temporelle renseignant sur les variations inter-annuelles et les tendances de l'ozone. Au moment de mon séjour post-doctoral, l'exploitation de 11 années de mesures MOZAIC (1998-2008) a permis de discuter l'incertitude existant sur les tendances calculées en fonction de l'échantillonnage temporel à disposition, afin de **comprendre pourquoi différentes sources de données (sols, ballons, avions) ne suggéraient pas les même tendances** (e.g., *Logan et al., 1999; Naja et al., 2003; Ordóñez et al., 2005; Oltmans et al., 2006; Zbinden et al., 2006; Parrish et al., 2009*). D'autres mesures de l'ozone existent (satellites) mais elles n'ont pas été exploitées lors des travaux présentés ci-après car il s'agissait essentiellement de travailler sur des mesures in-situ. Cependant pour l'ozone comme pour d'autres espèces, la complémentarité des mesures in-situ et des mesures faites par satellite est importante et de nombreuses études tentent de réconcilier les visions "surface" versus "satellite" qui peuvent diverger du fait de différents échantillonnages spatio-temporels.

2.2 Observation du méthane

Les mesures de méthane ont débuté à des stations de mesure au sol de façon systématique à la fin des années 1970 (*Blake et al., 1982*). Tout d'abord via des échantillonnages hebdomadaires de flacons analysés en laboratoire par chromatographie en phase gazeuse, les mesures de méthane sont devenues continues grâce au développement des technologies optiques et du laser. Différents réseaux de mesure se sont étendus, en particulier le réseau du laboratoire Earth System Research Laboratory from US National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA/ESRL) (*Steele et al., 1987*), du réseau du Advanced Global Atmospheric Gases Experiment (AGAGE) (*Cunnold et al., 2002; Prinn et al., 2000*), du réseau du Commonwealth Scientific and Industrial Research Organisation (CSIRO; *Francey et al. (1999)*), de celui de l'Université d'Irvine en Californie (UCI; *Simpson et al. (2012)*) et des mesures des réseaux régionaux tel que celui d'ICOS (Integrated Carbon Observation System) en Europe ([//www.icos-ri.eu/](http://www.icos-ri.eu/)). Ces mesures couvrent aujourd'hui une grande partie de l'hémisphère nord et de façon plus éparse les tropiques et l'hémisphère sud (Fig. II.3, droite). Ces réseaux montrent tous, de façon cohérente, une augmentation continue des concentrations de méthane dans l'atmosphère, avec une forte accélération au cours des deux dernières décennies (Fig. II.3, gauche).

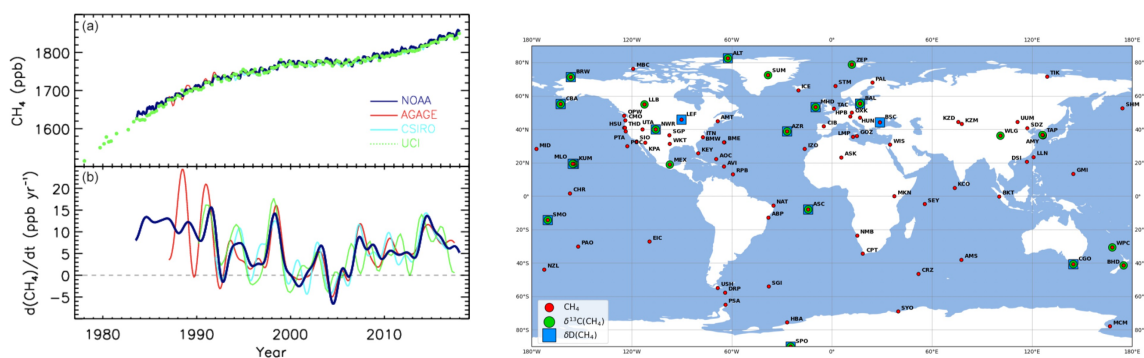


FIGURE II.3 – Gauche : Évolution entre 1980 et 2017 des concentrations de méthane mesurées par les quatre principaux réseaux de mesures (Tiré de [42]); Droite : Localisation des sites de mesures sur le réseau au sol de la NOAA pour exemple.

Des mesures satellitaires permettent aussi de suivre les évolutions de la concentration de méthane

dans l'atmosphère. Deux types de mesures passives sont développées : les mesures dans le proche Infra Rouge (Short Wave Infra Red, SWIR) avec une résolution spatiale précise horizontale de quelques kilomètres, fournit une mesure de la colonne atmosphérique avec une sensibilité allant de la surface à la tropopause (SCIAMACHY (arrêt en 2013), GOSAT-TANSO-FTS depuis 2009, S5P-TROPOMI depuis 2019); les mesures dans l'infra-rouge thermique (TIR) permettent une caractérisation du profil atmosphérique avec typiquement un à trois éléments d'information entre la troposphère libre et la stratosphère (TES, CrIS, IASI). Ces mesures satellitaires permettent un meilleur échantillonnage de la surface par rapport aux réseaux de mesures in-situ, en particulier dans les tropiques ou dans l'hémisphère sud, mais elles restent limitées dans les zones de convection tropicales, et aux hautes latitudes (exemple avec les données GOSAT, Fig. II.4). Des mesures complémentaires comme les avions ou les Aircores (Karion *et al.*, 2010) permettent une mesure in-situ précise du profil vertical de méthane, mais celles-ci restent très locales spatialement et ponctuelles dans le temps. Les réseaux TCCON et NDAC de mesures au sol de la colonne atmosphérique de méthane offrent aussi une observation de l'évolution temporelle de méthane et sont en particulier utilisés pour la validation des mesures satellitaires, mais seulement une douzaine de sites sont disponibles.

Chaque type d'observation a donc ses spécificités en termes de représentativité spatiale et temporelles. Aucun ne cumule la combinaison parfaite de caractéristiques. Les mesures in-situ sont précises mais représentative d'un lieu particulier. C'est pourquoi certaines stations sont choisies loin des sources, pour être représentative du niveau de fond et être le moins possible influencée par des sources locales. Certaines mesures satellitaires permettent de couvrir quasi l'intégralité de la surface terrestre mais sont moins précises et fournissent une vision verticalement intégrée de l'atmosphère. La fréquence d'échantillonnage est une question cruciale lorsqu'on s'intéresse aux variations inter-annuelles ou à long terme. Comment comparer et réconcilier des mesures issues de différentes plateformes (surfaces, avions, aircores, satellites)? Comment combiner ces mesures pour en tirer le plus d'information ?

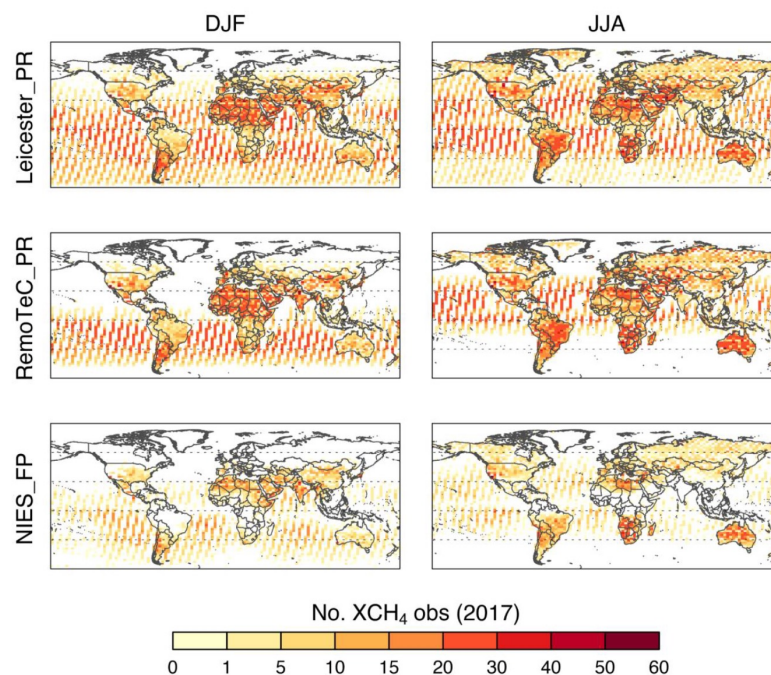


FIGURE II.4 – Nombre d'observations journalières moyennes de données de l'instrument satellite TANSO/GOSAT disponibles sur l'année 2017 moyennées sur une grille de 2° de latitude par 3° de longitude pour les trois reconstitutions de colonnes existantes : University of Leicester proxy retrievals (v7.2), SRON RemoTeC proxy retrievals (v2.3.8), and NIES full physics retrievals (v2.7.2) . Tiré de [55].

3 Modélisation de la composition chimique de l'atmosphère

3.1 Modélisation directe

La modélisation directe de la composition chimique de l'atmosphère consiste à utiliser un modèle de chimie-transport, c'est-à-dire un modèle capable de résoudre discrètement (i.e. sur une grille) les équations de continuité de la physique des fluides, et donc le transport des masses d'air, en prenant en compte les phénomènes d'échelles inférieures à la résolution de la grille tels que la turbulence ou la convection. Ces phénomènes dits sous-mailles sont alors paramétrés.

Il existe deux types de modèles de transports selon la vision de l'écoulement. Les modèles lagrangiens décrivent le trajet de chacune des particules dans l'écoulement à chaque instant suivant une fréquence donnée. Les modèles eulériens décrivent la vitesse du vent, la température et la pression à chaque point de grille du modèle sur un pas de temps donnée

Dans le cadre de la chimie atmosphérique, un schéma chimique est couplé au modèle de transport afin de prendre en compte les réactions de production et de destruction chimiques dans l'atmosphère. Afin de simuler l'évolution de l'état chimique de l'atmosphère, il faut partir d'un état initial connu de l'atmosphère et soumettre en entrées du modèle de chimie-transport l'ensemble des flux entrants (sources d'émission) et sortants (puits tel que le dépôt à la surface ou l'absorption par les sols) de l'atmosphère, ou des paramètres permettant de les calculer comme les vitesses de dépôt. La plupart des sources peuvent être considérées à la surface bien que certaines sont plus justement reproduites en altitude (éclaircs, avions, émissions des feux de biomasse pyroconvectées). Des incertitudes existent en lien avec la modélisation du transport des masses d'air, les paramétrisations des phénomènes sous-mailles, les sources et puits et aussi du niveau de détail du schéma chimique. Pour quantifier ces incertitudes, un ensemble de tests de sensibilité peut être fait en faisant varier par exemple les sources ou en changeant de modèle de transport ou de schéma chimique.

La modélisation directe permet d'évaluer le modèle étudié au regard des observations, d'en délimiter les forces et les faiblesses. A la suite de la modélisation, l'étude de la contribution de différents processus permet de mieux comprendre les facteurs principaux contrôlant la composition chimique de l'atmosphère dans une région ou à une échelle donnée.

3.2 Modélisation inverse et théorie bayésienne

La modélisation inverse dans le cadre étudié ici consiste à remonter la chaîne de causalité du problème direct. Dans les travaux présentés dans le chapitre suivant, il s'agit d'estimer les sources (et puits) d'un gaz connaissant ses concentrations dans l'atmosphère. Plus spécifiquement, l'inversion atmosphérique consiste à combiner de façon statistiquement optimale l'information contenue dans les mesures atmosphériques de concentrations d'espèces chimiques avec un modèle de chimie-transport et la connaissance disponible *a priori* sur les sources et puits afin d'améliorer l'estimation de ceux-ci.

Cette résolution statistique découle de la théorie de Bayes. On cherche la densité de probabilité de l'état du système (ici en termes d'émissions, mais on peut inclure d'autres paramètres tels que les conditions initiales) connaissant un état *a priori* et l'information contenue dans les données d'observations. Il est bien sûr nécessaire de connaître les incertitudes associées à la représentativité du modèle aux observations et celles associées aux flux *a priori*. Dans ce contexte, on suppose que les erreurs associées aux observations ou aux flux *a priori* sont non-biaisées et suivent une distribution gaussienne. Ici les données sont des concentrations atmosphériques (soit ponctuelles à la surface ou sous forme de colonnes atmosphériques intégrées via les mesures satellitaires). Le modèle de chimie transport relie donc les émissions prescrites aux concentrations en prenant en compte le transport et la chimie.

Dans le cas de nos problèmes, on définit les éléments suivants :

- \mathbf{x} le vecteur de contrôle du système est composé des variables à optimiser. Il s'agit généralement

des flux (sources et puits) des espèces considérées mais on inclut aussi les conditions initiales et des conditions aux limites du domaine dans le cas d'une modélisation régionale. Il est aussi possible d'inclure dans le vecteur de contrôle et donc d'optimiser des informations secondaires sur le système, comme par exemple les concentrations de radicaux OH dans le cas des études sur le méthane. Ces variables sont optimisées à une échelle spatio-temporelle propre à chaque simulation. Pour le méthane, avec le modèle planétaire LMDZ, on résout généralement les flux à l'échelle de la grille sur un pas de temps de l'ordre de la semaine. La taille du vecteur donne la dimension du problème, c'est-à-dire le nombre de paramètres à inverser.

- \mathbf{x}^b est la valeur *a priori* de \mathbf{x} , basée sur des connaissances, généralement liées à des estimations issues des approches montantes de type inventaires.
- \mathbf{x}^a est le vecteur de contrôle *a posteriori*
- \mathbf{y}^0 est le vecteur contenant l'ensemble des observations, ici les concentrations atmosphériques, fournissant des contraintes au système
- H est l'opérateur d'observation convertissant les informations entre l'espace de contrôle (les émissions) et l'espace des observations (les concentrations). Cet opérateur intègre le transport, le mélange, éventuellement la chimie atmosphérique ainsi que l'échantillonnage spatio-temporel des mesures. En particulier dans le cas des observations satellites, cela inclut la reconstruction de la colonne équivalente vue par l'instrument satellite, en appliquant les poids de pondération de la sensibilité de l'instrument pour chaque niveau vertical.
- \mathbf{B} la matrice de variance-covariance des erreurs sur l'état *a priori*
- \mathbf{R} la matrice de variance-covariance des erreurs sur les observations, comprenant les erreurs de mesures (instrumentales), ainsi que les erreurs sur H (erreur dans le transport des masses d'air, dans la chimie, mais aussi l'erreur de représentativité, voir Sect. 4.2).

On cherche alors la probabilité $p(\mathbf{x} | \mathbf{y}^0 - H(\mathbf{x}^b), \mathbf{x}^b)$ pour tous les états possibles du système \mathbf{x} . L'inversion bayésienne peut être faite de façon analytique, variationnelle ou grâce à des méthodes d'ensemble, selon le type de problème à inverser.

Si le problème est linéaire c'est à dire que H peut-être considéré comme linéaire et assimilé à son Jacobien \mathbf{H} avec $H(\mathbf{x}^b) = \mathbf{H}\mathbf{x}^b$ et que les statistiques d'erreurs sont gaussienne, on peut obtenir \mathbf{x}^a de deux façons, **analytique** ou **variationnelle**.

Avec les hypothèses de linéarité et de gaussianité, on obtient directement \mathbf{x}^a et sa matrice de covariances des erreurs \mathbf{P}^a :

$$\mathbf{x}^a = \mathbf{x}^b + \mathbf{K}(\mathbf{y}^0 - \mathbf{H}\mathbf{x}^b) \quad (\text{II.1})$$

$$\mathbf{P}^a = \mathbf{B} - \mathbf{K}\mathbf{H}\mathbf{B} \quad (\text{II.2})$$

avec $\mathbf{K} = \mathbf{B}\mathbf{H}^T(\mathbf{R} + \mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T)^{-1}$ la matrice de gain de Kalman.

Un code dit analytique réalise les opérations des équations II.1 et II.2 explicitement à partir des matrices et vecteurs de chaque équation. Par conséquent, il faut en pratique que les matrices soient de taille permettant le calcul explicite des produits et des inverses avec les ressources informatiques disponibles. Avec les moyens de calcul actuel, la taille typique de problème soluble par méthode analytique est de l'ordre de 10000-20000 pour le nombre d'observations et la dimension du vecteur d'état. Par ailleurs, la méthode analytique nécessite le calcul explicite de la matrice \mathbf{H} . Cela est fait par modélisation directe perturbée pour chaque dimension du vecteur d'état, ce qui peut s'avérer extrêmement coûteux. Pour appliquer cette méthode, on définit donc généralement des grandes régions sur lesquelles on optimise les flux, et on peut moyenner les mesures à l'échelle mensuelle, comme dans *Bousquet et al. (2006)*.

Les inversions variationnelles s'affranchissent des limites sur la linéarité et la dimension du problème et peuvent exploiter des millions d'observations pour optimiser des vecteurs d'état de dimensions excédant

le million. Pour cela, les calculs matriciels complexes de l'inversion analytique sont remplacés par la minimisation de la fonction de coût J car le vecteur d'état optimal \mathbf{x}^a correspond théoriquement au minimum de cette fonction de coût définie par :

$$J(\mathbf{x}) = \frac{1}{2}(\mathbf{y}^0 - \mathbf{H}\mathbf{x})^T \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{y}^0 - \mathbf{H}\mathbf{x}) + \frac{1}{2}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b)^T \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b) \quad (\text{II.3})$$

Dans le cas de non-linéarité de \mathbf{H} , la détermination du minimum absolu de J est techniquement plus difficile que dans le cas linéaire car J n'est pas quadratique et admet en général des minimums locaux. Il est possible de ne pas atteindre le minimum absolu de J mais seulement un minimum local.

Parmi les limites rencontrées par les méthodes inverses, les deux principales dans notre contexte sont :

- le fait que les problèmes à résoudre sont sous-contraints, c'est-à-dire que la quantité d'information disponible dans les mesures est bien inférieure à la dimension du problème.
- la définition des matrices de covariances des erreurs, \mathbf{R} et \mathbf{B} . Les variances (et à plus forte raison, les covariances) ne sont quasiment jamais fournies avec les inventaires d'émissions ou les modèles de transport par exemple. La détermination des matrices se fait donc en général à partir d'un jugement expert issu d'études sur le comportement des modèles utilisés, sur le transport atmosphérique, etc. Mais ce jugement expert omet nécessairement une partie des incertitudes et peut mal reproduire celles qui sont effectivement prises en compte. Or, une mauvaise spécification des statistiques d'erreurs peut radicalement changer les résultats de l'inversion.

Les codes numériques permettant de réaliser en pratique les inversions requièrent souvent des développements particuliers au problème traité et restent souvent assez complexes et relativement lourds à mettre en œuvre. Pour aller plus loin, une synthèse des utilisations de l'inversion atmosphérique faites dans le cas du méthane est proposée par [Houweling et al. \(2017\)](#).

La modélisation atmosphérique inverse repose sur le modèle direct et ses capacités à reproduire correctement le transport des masses d'air. Ainsi les résultats obtenus lors de la modélisation directe et inverse doivent être discutés au regard des biais du modèle sur certaines caractéristiques telles que temps d'échange inter hémisphérique, échanges stratosphère-troposphère, circulation de mousson, déplacement de la zone de convergence inter-tropical, représentation de la convection profonde...

4 Synergie entre observations et modélisation

Chaque modèle de chimie-transport, associé à la configuration de chaque simulation a des caractéristiques spécifiques concernant :

- la discrétisation spatiale liée à la résolution du modèle
- la discrétisation temporelle - pas de temps de calcul des différents processus (dynamiques, physiques, chimiques)
- les paramétrisations physiques des processus sous-maille tels que la turbulence ou la convection
- le schéma de réactions chimiques, plus ou moins complexes, incluant un nombre donné d'espèces chimiques (gaz ou particules), ainsi que la manière de les résoudre numériquement

Les choix faits pour définir la configuration du modèle dépendent des besoins liés aux questions scientifiques abordées et des capacités techniques disponibles (ressources de calculs, temps de calculs, outils à disposition). Par conséquent, de la configuration du modèle et de son détail découlent des incertitudes plus ou moins connues liées à la "représentation numérique" du problème. Par exemple, on ne s'attend pas à ce qu'un modèle de résolutions horizontale et verticale grossières puisse représenter des panaches fin de feux de biomasses, ni des intrusions stratosphériques. Ainsi les modèles doivent être en permanence

confrontés aux observations pour évaluer leur performance et donc leur capacité à représenter le "monde vrai".

4.1 Évaluation des modèles directs

L'évaluation des modèles directs discrétisés avec des observations met forcément en jeu la représentativité spatiale (horizontale et verticale) et temporelle des observations utilisées. Par exemple, une station de surface proche des sources sera plus sensible aux variations du transport des masses d'air dans son environnement, à l'amplitude des émissions prescrites, et donc à la capacité du modèle à reproduire correctement le transport de l'espèce émise qu'une station localisée loin des sources où les masses d'air auront eu le temps d'être plus mélangées. De même la corrélation temporelle entre concentrations simulées et observées sera sensible à cet effet. Cette représentativité spatiale peut être améliorée en rapprochant la taille de la maille du modèle de l'empreinte au sol de la mesure : en augmentant la résolution du modèle, en utilisant des observations issues de mesures satellitaires d'empreinte au sol plus vaste.

Quoiqu'il en soit, ces questions doivent être forcément mises en avant lors de l'évaluation des modèles avant de conclure sur leurs capacités. Les capacités des modèles concernent non seulement leur capacité à reproduire le transport des masses d'air mais aussi la cinétique de la chimie dans les panaches de polluants. Pour cela, les modèles de chimie transport sont dépendants des entrées fournies :

- des champs de météorologie
- des paramétrisations physiques
- des conditions initiales des simulations
- des conditions aux limites pour les modèles à aire limitée
- du réalisme des cartes d'émissions utilisées (discrétisation spatiale, amplitude et variations temporelles des émissions..)
- du schéma chimique utilisé.

Pour pallier ces problèmes, il faut faire évoluer les modèles dans la mesure du possible, utiliser les nouvelles observations, faire des études sur des périodes plus ou moins longues selon les questions abordées. L'utilisation de différents traceurs permet aussi de séparer les problèmes selon leur sensibilité à chacun des paramètres cités. Par exemple :

- le radon, un élément radioactif de quelques jours de vie, est utilisé pour discuter le transport dans les basses couches des modèles et leur sensibilité à la paramétrisation physique (thèse de R. Locatelli, [17])
- l'hexafluorure de soufre (SF_6), un traceur inerte, est utilisé pour discuter le transport à grande échelle, comme le temps d'échange interhémisphérique (thèse de R. Locatelli, [17], stage de L3 de L. Lerey en 2022)
- faire varier les paramètres d'entrées permet aussi d'estimer la sensibilité des modèles à ceux-ci et de quantifier les erreurs liées au modèle de transport ou aux inventaires d'émissions (thèse de B. Szenasi, [47])

4.2 Assimilation de données atmosphériques

Le cas de l'assimilation de données atmosphériques pour l'estimation des flux (sources et puits à la surface) est illustré ici pour le méthane, mais les points évoqués dans la suite sont valables pour toutes les espèces, et même toutes les variables entrants dans un problème d'inversion.

L'évaluation du modèle direct a mis en évidence les erreurs existantes lors de la comparaison modèle-mesure et les sources de ces erreurs. Ces erreurs sont donc inévitables. Cependant dans le cas de l'assimilation de données, il est crucial de les spécifier correctement, et de définir correctement l'équivalent du modèle à l'observation. Dans les problèmes inverses, il faut spécifier :

1. **l'équivalent modèle-observation.** Pour cela, il s'agit de déterminer :

- pour les stations au sol : le meilleur niveau du modèle pour reproduire ces mesures, la fréquence ou moyenne la plus adaptée (horaire, journalière, mensuelle) au modèle utilisé et à la question scientifique en jeu
 - pour des mesures de colonnes totales : le calcul de la colonne équivalente à partir des poids de pondération de la sensibilité du produit satellitaire pour chaque niveau vertical (p.ex. sous la forme de fonction de lissage, ou « Averaging Kernels ») et de l'interpolation des couches verticales du modèle sur les couches de la mesure satellite, la définition de "super-observations" lorsque de multiples données satellites correspondent à un pas de temps et un point de grille du modèle, le complément sur la verticale pour des modèles à hauteur limitée.
2. **l'erreur modèle-observation** qui doit inclure :
- l'erreur de l'observation (généralement plus faible que l'erreur de représentativité ci-dessous, sauf pour certains produits satellitaires)
 - l'erreur de représentativité de la mesure. Celle-ci sera d'autant plus grande que le modèle aura des difficultés à représenter la station (proche des sources, localisée sur une côte, en montagne). Dans cette erreur, on prend en compte l'erreur de transport (lié aux choix de paramétrisation physique par exemple) et de la chimie le cas échéant. Pour les mesures satellitaires, la définition de l'erreur peut être plus complexe. Doit-elle inclure l'agrégation de multiples observations en super-observation ? Comment prendre en compte les erreurs faites sur le profil vertical dans le calcul de la colonne totale ou partielle ?
3. **l'erreur sur les flux *a priori***. Les erreurs sur les cartes d'émission sont rarement spécifiées. Elles existent parfois aux échelles nationales et sectorielles, mais sans spatialisation. Des estimations de ces erreurs sont souvent issues de l'expertise passée. Parfois des études spécifiques sont faites à partir de l'utilisation de divers produits d'émissions en entrée (quand il en existe) comme dans l'article de B. Szenasi sur l'Europe [47]. Des approches plus objectives pour déterminer les erreurs ont aussi été développées (Berchet *et al.*, 2013).

4.3 Évaluation des résultats d'inversion

L'évaluation des résultats d'inversion se fait avec des observations indépendantes des observations assimilées. Selon le type de données utilisées dans l'assimilation, il pourra donc s'agir de :

- mesures de concentration à la surface
- mesures de colonnes totales ou partielles issues d'instrument spatial ou au sol (type TCCON)
- mesures du profil vertical par Aircore
- mesures aéroportées fournissant un profil vertical à la montée et à la descente de l'avion et une distribution horizontale lors du vol croisière

Souvent les mesures aéroportées sont faites lors de campagnes ponctuelles ou récurrentes. Évidemment la question de la représentativité spatio-temporelle des mesures aéroportées se pose selon la résolution du modèle. La représentation de fines structures sur le profil vertical est généralement problématique pour les modèles planétaires dont la résolution est relativement grossière par rapport à ces structures. Cependant si suffisamment de données sont disponibles, une évaluation de la représentation moyenne du profil vertical issu de mesures avions peut-être utilisée pour estimer le gradient vertical dans les basses couches de l'atmosphère. Comme pour les observations à la surface, peu de données sont disponibles, en particulier dans les régions tropicales. Depuis quelques années les profils verticaux issus des mesures Aircore offrent de nouvelles opportunités. De plus, le programme de recherche IAGOS (*In-service Aircraft for a Global Observing System*) fournit depuis quelques années des mesures de méthane, ouvrant la possibilité d'évaluer les modèles sur quelques sites tropicaux (en Afrique, en Amérique du Sud et en Asie).

L'utilisation en synergie des modèles et des observations nécessite de bien connaître et délimiter les capacités et les incertitudes liées à ces deux éléments. En effet, les uns et les autres ont des défauts qu'il ne faut ni sous-évaluer ni sur-évaluer afin de tirer un bénéfice optimal de la complémentarité

modèle-observation.

Maintenant que les principaux outils et éléments caractéristiques de ceux-ci ont été présentés, le chapitre suivant décrit une synthèse des travaux de recherche effectués entre 2006 et 2022. Au cours de cette description, nous retrouverons des questions liées à la synergie modèle-observation comme expliquée ici.

Synthèse des travaux de recherches

Mes activités de recherche ont comme objectif commun **la compréhension et la hiérarchisation spatio-temporelle des contributions des processus physico-chimiques (émissions par différentes sources, production et destruction chimiques, transports vertical et horizontal) qui contrôlent les valeurs moyennes ainsi que les variations inter-annuelles ou saisonnières et les tendances (passées, futures) des gaz présents dans l'atmosphère.** Au cours de mes différents travaux de recherche, cet objectif a visé différents gaz, à différents échelles spatio-temporelles mais toujours en s'appuyant sur les observations et la modélisation. Les gaz d'intérêt sont des gaz ayant un impact sur la pollution atmosphérique (ozone et ses précurseurs - CO, NO_x, CH₄) ou sur le réchauffement climatique (ozone, méthane, oxyde nitreux).

Dans un premier temps, mes travaux ont porté sur l'ozone troposphérique. Durant mes travaux de thèse, je me suis intéressée à l'échelle régionale et saisonnière, et à des processus spécifiques à la dynamique et la chimie de l'Afrique de l'Ouest. Puis lors de mon post-doctorat, j'ai étudié l'échelle continentale et inter-continentale pour expliquer les processus intervenant dans les variabilités inter-annuelles et les tendances sur une ou deux décennies des concentrations d'ozone troposphérique.

Suite à mon recrutement au LSCE, j'ai élargi cette problématique au méthane, en liant l'échelle mondiale aux échelles régionales. En effet l'augmentation des concentrations de méthane dans l'atmosphère reflète le déséquilibre entre les émissions de méthane d'une part et ses puits d'autre part. Les émissions de méthane présentent une forte variabilité régionale et sectorielle, qu'il est crucial de déterminer pour comprendre les secteurs et régions sources responsables de l'augmentation des concentrations dans l'atmosphère. Les puits de méthane, essentiellement par destruction photo-chimique dans l'atmosphère via différents oxydants, peuvent aussi varier en fonction des variables météorologiques et des concentrations d'autres gaz tels que l'ozone, le CO et les NO_x (Fig. [Intro.1](#)).

1 Échelle régionale - Rôles des émissions de précurseurs et de la circulation de mousson sur l'ozone en Afrique de l'Ouest (doctorat)

L'Afrique de l'Ouest équatorial, comme beaucoup de régions tropicales, est une région source importante de précurseurs d'ozone *via* divers types d'émissions (feux de biomasse, végétation, éclairs, activités humaines). Cette région combine également un fort rayonnement solaire et un important taux d'humidité. Ces trois facteurs favorisent la formation de l'ozone au-dessus du continent africain. De plus les principaux processus de transport entre les tropiques et les moyennes latitudes, ainsi qu'entre les deux hémisphères résultent d'une part du pompage aux tropiques par la convection profonde et d'autre part de la redistribution horizontale vers les moyennes latitudes par les cellules de Hadley.

Malgré l'importante contribution en termes d'émissions et son rôle dans le transport des masses d'air aux échelles régionale et mondiale, l'Afrique, et plus particulièrement l'Afrique de l'Ouest, était une région peu documentée, en particulier durant la saison humide pour l'étude de l'ozone au moment de mon doctorat. Celui-ci a pris place dans le cadre du programme international Analyses Multidisciplinaires de la Mousson Africaine (AMMA) qui s'est déroulé essentiellement entre 2005 et 2007 pour sa phase de mesures sur le terrain.

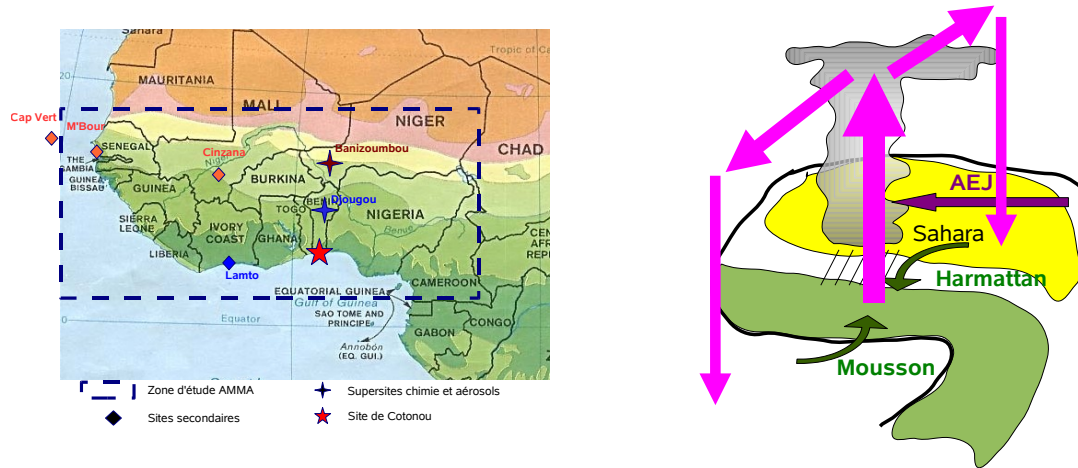


FIGURE III.1 – Gauche : Carte de l'occupation des sols en Afrique de l'Ouest pour l'année 2000 et zone d'étude AMMA. Droite : Schéma conceptuel représentant un moyenne zonale des éléments clés de la mousson africaine pendant l'été boréal : circulation méridienne-verticale et vents zonaux dominants.

L'objectif était de **mieux comprendre la distribution de l'ozone et ses processus de contrôle en Afrique via la modélisation et l'analyse de données**. Différents aspects ont été abordés en s'appuyant sur des mesures aéroportées, in-situ à la surface ou sous-ballon et sur des modèles numériques de chimie-transport (en 2D ou 3D). Lors de la période de mousson, l'Afrique de l'Ouest présente une distribution zonale particulière sur plus de 20 degrés de longitude : sa couverture au sol et donc les émissions de gaz à la surface, son albédo, sa température et la circulation atmosphérique sont homogènes par bande de latitude (Fig. III.1). Pour ces raisons, un modèle méso-échelle 2D (latitude/altitude) a été utilisé pour l'étude de cette région permettant de faire de longues simulations (1 mois) à faible coût numérique tout en incluant un schéma chimique troposphérique et une résolution horizontale de 70 km. Pour ces recherches, un module de chimie troposphérique et une paramétrisation des éclairs ont été intégrés dans la version idéalisée 2D du modèle méso-échelle Méso-NH. Cette version idéalisée avait été développée par *Peyrille et al. (2007)* pour simuler la dynamique des masses d'air africaines durant la période établie de la mousson (juillet). Le modèle reproduisait correctement les principaux éléments de la mousson africaine (voir figure III.1 : flux en surface, Front Inter Tropical, jets d'altitude), malgré des faiblesses (décalage de la ZCIT vers le nord, cellule nord limitée, jets trop au sud et trop forts par rapport aux réanalyses ERA-40).

1.1 Quels processus contrôlent la distribution méridienne de l'ozone en Afrique de l'Ouest ?

Dans la basse troposphère, les mesures aéroportées de l'avion de recherche FAAM (Facility for Airborne Atmospheric Measurements) BAe-146 faites durant la campagne AMMA (été 2006) montraient des concentrations d'ozone minimales au-dessus de la zone guinéo-soudanienne boisée et maximales dans la région sahélienne (Fig. III.2, gauche). Les questions qui se posaient étaient : **Quelles sont les causes de ce gradient méridien d'ozone ? Quels rôles jouent le couvert végétal et le transport des masses d'air ?** J'ai appliqué le modèle 2D à la période de mesure en me basant sur une distribution zonale des émissions associée à la couverture du sol. La comparaison modèle/mesure est très satisfaisante avec des distribu-

tions simulées pour l’ozone et ses précurseurs (NOx , CO, COV) en global accord avec les observations (Fig. III.3). De plus, le gradient d’ozone était correctement reproduit par le modèle. Le modèle a permis ensuite de quantifier les différents termes de production et destruction d’ozone (convection, dépôt sec et production photochimique) (Fig. III.2, droite). Ainsi, j’ai pu mettre en évidence le rôle essentiel du dépôt sec de l’ozone sur la végétation dans la création du minimum d’ozone observé et quantifier les influences des divers précurseurs sur la formation d’ozone en effectuant des tests de sensibilités [4].

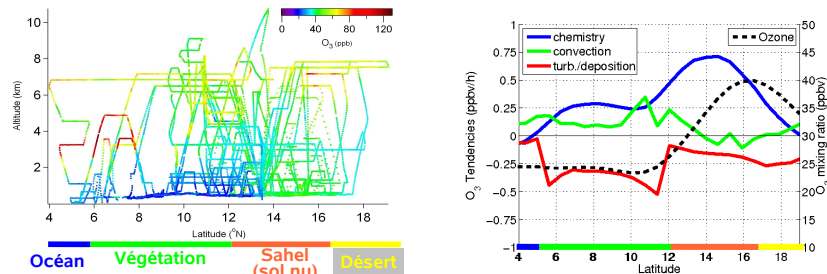


FIGURE III.2 – Gauche : Concentrations d’ozone mesurées à bord du FAAM BAe-146 durant la campagne AMMA ; Droite : profil des tendances de production/destruction d’ozone entre 0 et 700 m par différents processus.

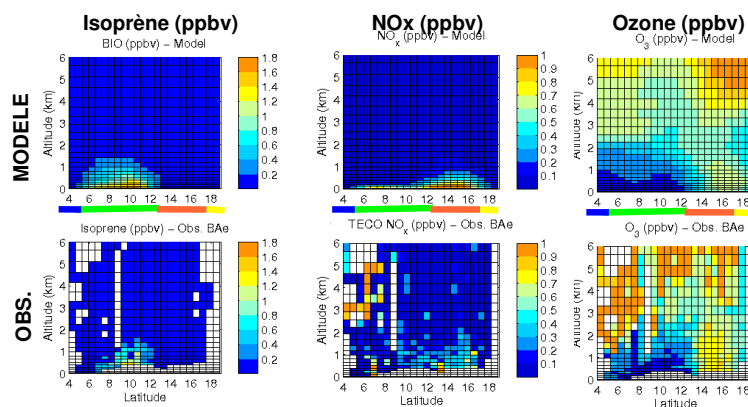


FIGURE III.3 – Concentrations d’isoprène, d’oxyde d’azote et d’ozone simulées par le modèle (haut) et mesurées à bord du FAAM BAe-146 durant la campagne AMMA (bas).

Dans la haute troposphère, les mesures aéroportées du programme MOZAIC montraient un fort gradient méridien d’ozone en haute troposphère (9–12 km), avec un minimum d’ozone au niveau de la zone de convergence inter-tropicale (*Sauvage et al., 2007*). La question qui se posait était : **Quelles sont les causes du minimum et du gradient méridien d’ozone ?** La modélisation 2D m’a permis de montrer que le minimum d’ozone est contrôlé par la convection profonde qui apporte des masses d’air pauvres en ozone depuis la surface, et que le gradient méridien d’ozone résulte de la production photochimique d’ozone dans les branches supérieures de Hadley [2] . De plus, les émissions d’oxydes d’azote par les éclairs permettent de maintenir le gradient dans la branche nord [2] .

1.2 Variabilités inter-annuelles et intra-saisonniers de l’ozone et Transport inter-hémisphérique de la pollution par les feux de biomasse

Les mesures d’ozone présentées sur la Figure III.2 (gauche) montrent de fortes valeurs vers 3-4 km d’altitude et proche de la région côtière. Ces fortes concentrations ont été reliées à la pollution émise par les feux de biomasse au sud de l’équateur, puis transportée dans l’hémisphère nord. Grâce aux 26

mois de données de radiosondages réalisés à Cotonou au Bénin, nous avons pu montrer la forte variabilité intra-saisonnière de ce phénomène [5]. Ces fortes concentrations résultent du transport des panaches des feux de biomasse localisée dans l'hémisphère sud (Guinée équatoriale, Congo) à travers la ligne équatoriale lorsque la zone de convergence inter-tropicale remonte dans l'hémisphère nord. Les questions qui se posaient étaient : **Quelles sont les causes de la variabilité de ces intrusions ? Quel rôle joue la circulation atmosphérique ?**

Un modèle de dispersion lagrangienne, nous a permis de montrer que l'activité plus ou moins intense du jet d'est africain au sud de l'équateur contrôle en partie la variabilité de la pollution observée au dessus du Golfe de Guinée [3]. Afin d'étudier plus en détail cette variabilité, j'ai travaillé avec le modèle de chimie transport GEOS-Chem et rassemblé les mesures satellites d'ozone et de monoxyde de carbone (instruments TES, Tropospheric Emission Spectrometer et AIRS, Atmospheric InfraRed Sounder) et *in-situ* (sondages) disponibles pendant l'été 2006. La confrontation des sorties de différents modèles (dont GEOS-Chem) aux observations a montré que les modèles de chimie-transport reproduisaient très mal le transport inter-hémisphérique des panaches (Fig III.4). En effet, le transport forcé par les analyses ECMWF reste trop zonal pour permettre l'intrusion des panaches des feux dans l'hémisphère nord [7]. Il n'a donc pas été possible d'étudier plus en profondeur la chimie de l'ozone dans ces panaches à l'aide des modèles 3D disponibles lors de mon doctorat. La question du transport des panaches de polluants issu des feux de biomasse est importante aussi dans le cadre de l'estimation des sources et puits de méthane, pour attribuer les émissions aux bonnes régions. Ce transport au niveau de la zone de convergence inter-tropical reste un défi aussi pour LMDZ qui semble aussi ne pas transporter suffisamment au nord les panaches pendant l'été (comparaison à des mesures IASI lors du stage de fin d'étude d'Adrien Martinez). L'utilisation de réanalyses ECMWF intégrant plus de données météorologiques en Afrique et celle de modèles à plus haute résolution pourrait permettre une meilleure représentation du transport inter-hémisphérique de ces panaches. Cet aspect sera revisiter dans le cadre du projet de recherche proposé.

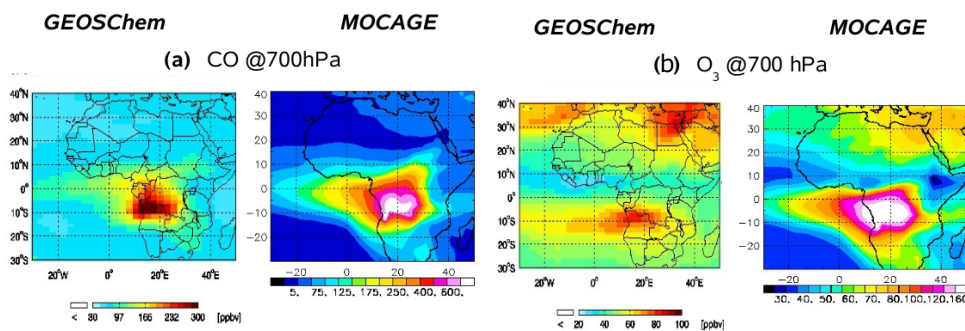


FIGURE III.4 – Simulation des panaches de CO (a) et d'ozone (b) à 700 hPa par les modèles GEOS-CHEM et MOCAGE en Juillet 2006.

L'utilisation des modèles de chimie-transport 2D et 3D pour cette étude régionale m'a permis de déterminer et hiérarchiser les processus contrôlant la distribution spatiale de l'ozone, expliquant les observations faites lors des campagnes de mesures. Les mesures faites sur de longues périodes mettent en évidence la forte variabilité temporelle des concentrations d'ozone impliquant à la fois la variabilité des émissions de précurseurs d'ozone mais aussi la variabilité de la circulation atmosphérique. La confrontation des modèles aux mesures a aussi permis de mettre en évidence les faiblesses des modèles planétaires de chimie transport vis-à-vis du transport inter-hémisphérique et de la position de la zone de convergence inter tropicale, limitant les intrusions des panaches de feux de biomasses entre les hémisphères sud et nord, et par conséquent les niveaux de CO et d'ozone simulés dans les modèles.

2 Échelle continentale - Variabilité spatio-temporelle des concentrations d'ozone : rôle des activités humaines et de la variabilité climatique (post-doctorat)

Pour évaluer l'impact des activités anthropiques sur la composition de l'atmosphère et le changement climatique, il est important de bien comprendre la variabilité inter-annuelle et les tendances de l'ozone et de ses précurseurs. Celles-ci ont été discutées à partir de diverses sources de données, de différentes plateformes d'observations (mesures au sol, sondages, mesures aéroportées). Cependant, les tendances de l'ozone avaient été déterminées dans des études indépendantes (par ex., *Logan et al.*, 1999; *Naja et al.*, 2003; *Ordóñez et al.*, 2005; *Oltmans et al.*, 2006; *Zbinden et al.*, 2006; *Parrish et al.*, 2009), utilisant différentes approches, et sans examen approfondi de la cohérence entre les différentes mesures. La plupart de ces études sont fondées sur des mesures ayant une faible résolution spatio-temporelle et elles ignorent en général la variabilité naturelle du climat lorsqu'elles discutent les tendances de l'ozone. Les tendances dérivées des sondages ou d'autres plateformes telles que les avions ou les sites au sol, n'étaient pas cohérentes entre elles (*Jonson et al.*, 2006; *WMO*, 2006), certaines suggéraient une augmentation des concentrations, d'autres une stagnation. Les questions posées par ces constats étaient : **Quel est l'effet d'une faible fréquence d'échantillonnage sur la variabilité inter-annuelle et les tendances de l'ozone détectées par les différents systèmes de mesures ? Prendre en compte cet effet permet-il de réconcilier les différents jeux de données ?** La variabilité climatique naturelle influence non seulement la chimie de l'atmosphère mais aussi le transport des masses d'air et certaines émissions naturelles, et par conséquent la variabilité inter-annuelle de la composition chimique de l'atmosphère. Le cadre de l'étude étant situé en région nord Atlantique, région dans laquelle beaucoup de données sont disponibles, **comment l'Oscillation Nord Atlantique (NAO) influence-t-elle la variabilité de la distribution de l'ozone dans cette région ? Existe-t-il un effet visible des variations de l'index de la NAO sur les tendances à long terme des concentrations d'ozone dans cette région ?**

2.1 Effet de la fréquence d'échantillonnage

Pour cette étude, j'ai utilisé des mesures de surface (ou proches de la surface) d'ozone en Europe afin de discuter les tendances de l'ozone sur la période 1995-2008 et, en particulier, l'effet de l'échantillonnage lors de l'utilisation de mesures à faible résolution temporelle (telles que les radiosondages d'ozone). Pour évaluer l'effet de l'heure et de la fréquence de la mesure sur la moyenne mensuelle et la tendance en concentration d'ozone, j'ai sous-échantillonné le jeu de profils verticaux au-dessus de Frankfurt fourni par le programme MOZAIC aux deux fréquences usuelles des sondages (4 ou 12 profils par mois) [10]. Nous avons montré que l'heure de la mesure est surtout importante en été, avec une différence de 21 ppb observée entre le matin et l'après-midi proche de la surface. L'exercice d'échantillonnage montre qu'une faible fréquence d'échantillonnage engendre une incertitude sur les moyennes saisonnières de 6 à 34 ppb selon la saison et la fréquence considérées. Cette erreur, largement supérieure à l'incertitude instrumentale, doit être prise en compte lors des exercices de comparaison observation/observation ou modèle/observation avant de conclure sur une quelconque tendance.

Pour un même site, la variabilité inter-annuelle observée est différente d'un échantillon à un autre. Aussi les tendances sur la période 1995-2008 ont-elles des amplitudes et même des signes différents selon l'échantillon (Fig.III.5). Ainsi les incohérences entre des jeux de données de faible résolution temporelle ne sont pas surprenantes. Elles pourraient être dues à la fois aux spécificités des sites et au faible échantillonnage. Depuis d'autres études ont été faites pour revisiter certaines bases de données. Par exemple, *Lin et al.* (2015) concluent que les mesures de profils d'ozone sous ballons en Amérique du Nord ne peuvent pas représenter correctement toute la variabilité inter-annuelle et spatiale de l'ozone. Ces travaux renforcent l'idée de la nécessité de mesures régulières et fréquentes de l'ozone troposphérique afin d'obtenir des observations justes de la variabilité inter-annuelle et des changements décennaux de l'ozone. Une synthèse sur ces questions relative à la variabilité de l'ozone et aux biais d'échantillonnage est proposée par *Tarasick et al.* (2019). Ces auteurs

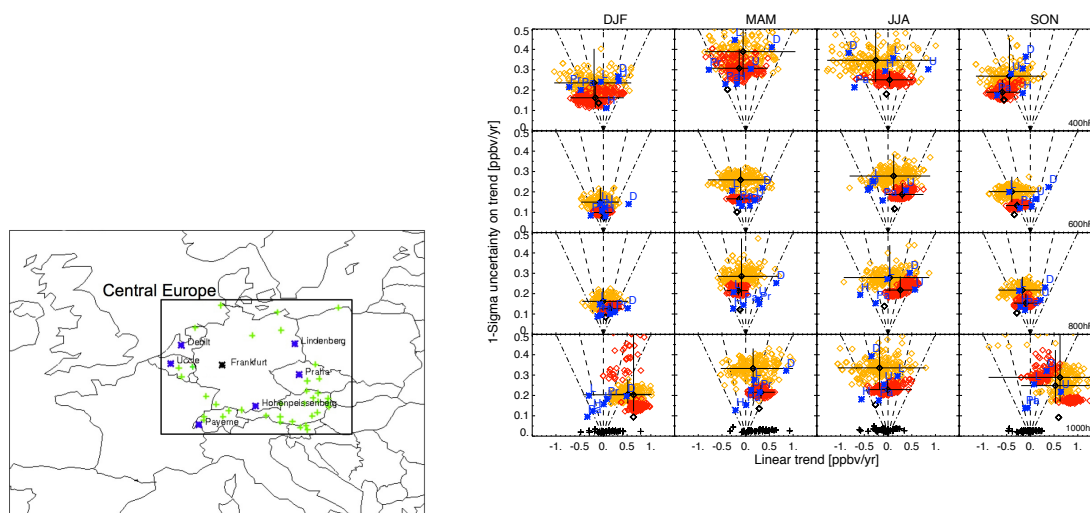


FIGURE III.5 – Gauche : carte de la zone étudiée ; Droite : incertitudes à 1-sigma de la tendance linéaire des concentrations d’ozone sur la période 1995-2008 en fonction de la pente de la tendance linéaire pour les quatre saisons et à quatre niveaux de pression différents. Losange noir : base de donnée complète pour Francfort ; losanges rouges : ensemble de sous-échantillons à 12 profils par mois, losanges oranges : ensemble de sous-échantillons à 4 profils par mois. Etoiles bleues : données radio-sondages à six stations en Europe ; + noir : tendances issues de 48 stations européennes au sol

concluent par des recommandations sur la forme de futur programme d’observation de l’ozone troposphérique.

2.2 Relation entre la variabilité de l’ozone et l’Oscillation Nord Atlantique

Un second volet de mes recherches post-doctorales a porté sur les variations de la distribution d’ozone en lien avec l’Oscillation Nord Atlantique (NAO), au-dessus de la région Atlantique Nord. Les variations des concentrations de polluants en relation avec la NAO peuvent être observées à partir des données satellites (le monoxyde de carbone de MOPITT, les aérosols de TOMS/MODIS - en tant que traceurs anthropiques à vie courte), des mesures in-situ (sondages, mesures MOZAIC) d’un côté et reproduit par des modèles de chimie-climat de l’autre. La base de données MOZAIC m’a permis de dériver une climatologie des concentrations d’ozone dans la région de la haute-troposphère/basse stratosphère par niveaux verticaux de pression afin de valider les modèles de chimie-climat sur la période 1960-2006, WACCM (Whole Atmosphere Community Climate Model) et CAM (Community Atmosphere Model). J’ai ainsi pu définir les régions sous influence de la NAO (Fig. III.6), en accord avec de précédentes études (par exemple, *Hess and Lamarque, 2007*). Les objectifs étaient :

1. déterminer les processus liant la variabilité de la circulation avec celle des concentrations d’ozone et de ses précurseurs (échanges stratosphère/troposphère, position et fréquence des tempêtes, ...)
2. étudier les différences entre modèles (reproduction de la variabilité, effet d’une meilleure représentation de la stratosphère dans WACCM par rapport à CAM)
3. d’étudier les différences entre modèles (reproduction de la variabilité, effet d’une meilleure représentation de la stratosphère dans WACCM par rapport à CAM).

Ces travaux n’ont pas été achevés suite à mon recrutement en France. Cependant cette question reste d’actualité et a été traitée par d’autres groupes avec d’autres modèles (par exemple, *Pausata et al., 2012*).

Ces travaux de thèse et de post-doctorat, dédiés à l’ozone, ont mis en évidence les incertitudes dans :

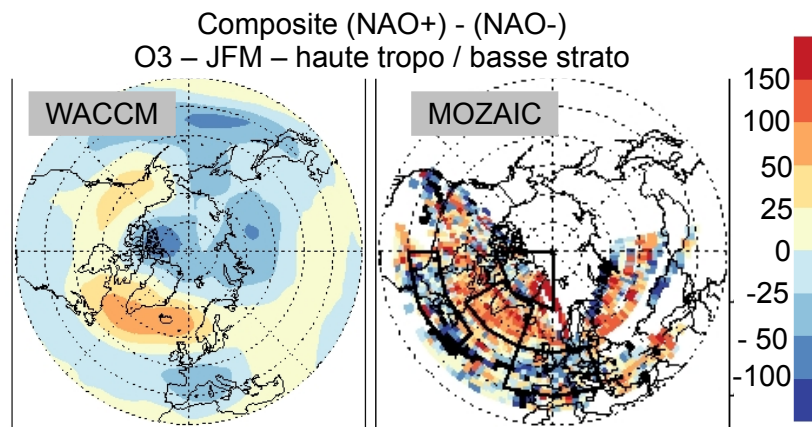


FIGURE III.6 – Carte composite de la différence de concentrations d’ozone (en ppbv) entre les périodes de NAO positive et les périodes de NAO négative, simulées par WACCM et mesurées par les avions MOZAIC.

- la modélisation de la chimie et du transport atmosphériques (amplitude des émissions, variations spatio-temporelles de celles-ci, transport de certaines masses d’air, réactions chimiques...)
- les observations et lors de leur comparaison (entre elles ou à des modèles), en lien avec leur représentativité spatiale, leur fréquence temporelle, et leur disponibilité sur le long terme.

Ces éléments vus dans le cadre de la modélisation directe se retrouvent dans la suite, dans le cadre de la modélisation inverse. Ils seront d’autant plus importants qu’il s’agit non seulement d’évaluer les modèles ou de comprendre certains processus, mais aussi de quantifier les flux de gaz à la surface.

3 Échelle mondiale - Variabilité et tendances des sources et puits de méthane : optimisation par modélisation inverse (poste EC au LSCE)

Lors de mon recrutement au LSCE, je suis passée de l'échelle régionale/continentale à l'échelle mondiale et de la modélisation directe à la modélisation inverse. Au cours de mes travaux précédents les incertitudes et la mauvaise représentation des émissions de précurseurs d'ozone dans les modèles, les faiblesses des modèles de transport en particulier dans les tropiques, les questions de représentativité des mesures via leur fréquence d'échantillonnage ont été mises en évidence. Ces incertitudes contribuent aux différences modèles-mesures qui peuvent être observées lors de l'analyse des données et qui doivent être prises en compte dans la spécification du problème inverse.

Mes travaux au LSCE s'attachent en majorité à améliorer notre connaissances des émissions (sources) de gaz et en particulier de gaz à effet de serre via la modélisation inverse (voir Section 3.2 du chapitre 4.3). Dans la suite je présente exclusivement les travaux relatifs au méthane, même si j'ai contribué à des études portant sur d'autres composés (N_2O , HCHO, HFC, HCFC, CO, NO_2), publiées dans les articles [11], [13], [16], [18], [20] et [45]. Ci-dessous sont présentées les questions auxquelles je me suis attelée et qui m'occupent encore pour certaines.

3.1 Quel est l'état de nos connaissances sur le cycle biogéochimique du méthane ? Comment cette connaissance évolue-t-elle ? Peut-on expliquer les variations du cycle du méthane ?

En initiant un groupe de travail sur le méthane, le Global Carbon Project (www.globalcarbonproject.org) vise à fournir régulièrement (tous les 3 ans pour le moment) un état de nos connaissances sur le cycle biogéochimique du méthane, c'est-à-dire une estimation de l'ensemble de ses sources et puits aux cours des décennies passées et de la dernière année de données disponibles.

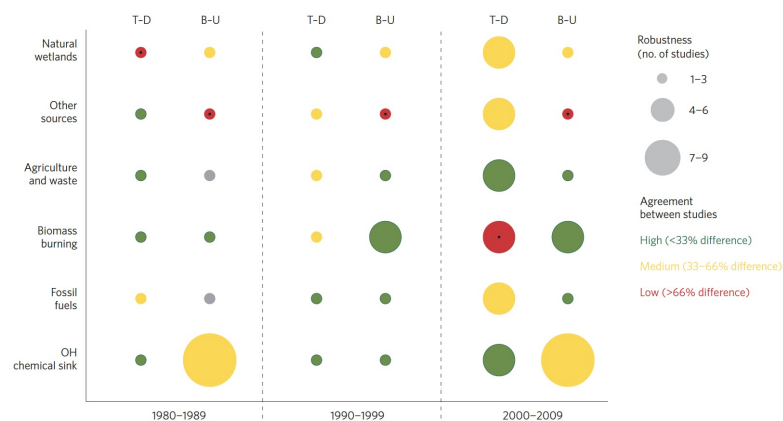


FIGURE III.7 – Estimation des incertitudes sur les différentes sources et puits de méthane pour les décennies 1980, 1990 et 2000, pour les approches montantes et descendantes. Tiré de [15].

Le premier bilan coordonné au LSCE, publié en 2013 [15], a permis d'établir les bilans des sources et puits de méthane au cours des 3 décennies 1980, 1990 et 2000. Les catégories des sources de méthane exploitées dans les deux approches montantes et descendantes sont les suivantes : les zones humides (marécages), les autres sources naturelles, les émissions agricoles et liées aux traitements des déchets et finalement les émissions liés à l'exploitation, au transport et à l'utilisation des énergies fossiles. En plus du bilan quantifié à l'échelle mondiale et régionale des sources et puits de méthane, nous avons étudié le niveau d'incertitudes de nos connaissances (Fig. III.7). Le constat était le suivant : très peu d'études sont disponibles (moins de 4) en particulier pour les années 1980 et 1990, et l'accord entre elles reste faible ou moyen, sauf pour les estimations des émissions liées à la combustion de biomasse pour lesquelles les

produits issus de mesures satellites (à partir du milieu des années 1990) semblent en bon accord. Cela démontrait la marche importante à franchir pour améliorer nos connaissances sur le cycle du méthane.

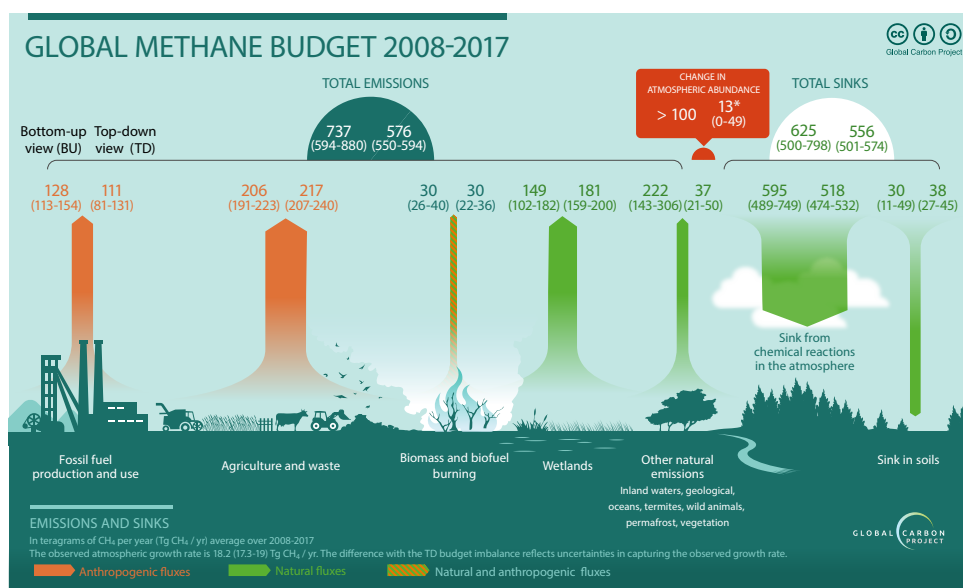


FIGURE III.8 – Bilan des sources et puits de méthane, flux anthropiques en orange et naturels en vert. Estimation moyenne sur la période 2008-2017 à partir des deux approches montantes et descendantes. Tiré de [42].

Pour les bilans suivants, que j’ai co-coordonnés, nous avons pu réunir un plus grand nombre de modèles d’inversion atmosphériques (respectivement 8 et 9 pour le bilan de 2016 ([24]) et celui de 2020 ([42]), le nombre d’inventaires inclus reste généralement identique car recouvrant les principaux inventaires institutionnels existants (EDGAR, GAINS, EPA, CEDS, FAO pour l’agriculture). Nous avons fait le choix de présenter les bilans en termes de moyenne associée à une plage d’incertitude représentée par les valeurs minimum et maximum au sein des études disponibles (Bilan 2008-2017, Fig. III.8) pour les approches montantes et descendantes, car généralement peu de valeurs sont disponibles pour pouvoir dériver un écart-type. Par conséquent, cette plage de valeur ne prend pas en compte les incertitudes de chaque estimation individuelle, et potentiellement sous-évalue l’incertitude existante. Ces bilans montrent que la plus forte incertitude sur les bilans des émissions de méthane réside dans les sources naturelles pour les approches montantes. D’une part, il existe des incertitudes sur les étendues des zones en eau et leur répartition entre zones humides, tourbières, lacs, rivières, réservoirs, étangs... D’autre part, les densités de flux d’émission associées à chacun de ces écosystèmes présentent des variations spatio-temporelles importantes difficiles à mesurer (les mesures sont souvent très locales et ponctuelles dans le temps) et à paramétrer dans des modèles de surfaces continentales. Ces modèles de surfaces continentales calculent uniquement les émissions de méthane produit par les zones humides, parfois les tourbières, mais pas encore les autres écosystèmes en eaux. Pour les autres écosystèmes, des estimations basées sur des montées en échelle à partir de mesures locales ou de marqueurs (tels que la chlorophylle a) aboutissent à des estimations des émissions i) qui paraissent surestimées et ii) avec de larges incertitudes. Ceci explique les valeurs obtenues pour les sources naturelles autres que les zones humides de la Figure III.8 : moyenne 222 Tg/an, min 143 Tg/an max 306 Tg/an. Les incertitudes sur les secteurs anthropiques sont plus faibles, en particulier pour les approches montantes. Cependant, les incertitudes présentées ne prennent pas en compte les incertitudes de chaque inventaire sur chacun des secteur qui peuvent être plus élevées (de l’ordre de plusieurs dizaines de % - jusque $\pm 60\%$ dans le secteur de l’agriculture voire $\pm 90\%$ dans le traitement des déchets, *Janssens-Maenhout et al. (2019)*; *Solazzo et al. (2021)*; [50]). Les approches descendantes semblent mieux contraindre les émissions totales de méthane à l’échelle mondiale (de l’ordre de $\pm 5\%$), mais les chiffres présentés ici ne prennent pas totalement en compte l’incertitude sur le puits

de méthane. Les champs de OH dans les inversions sont généralement prescrits et sont issus de sorties de modèles de chimie-transport ou chimie-climat. La plupart des systèmes d'inversion utilisent le champs dit de "TRANSCOM", issu d'un exercice d'inter-comparaison dans les années 2000, omettant ainsi les incertitudes sur la quantité de OH dans l'atmosphère et ses variations inter-annuelles.

De plus, l'évolution du cycle biogéochimique du méthane, et plus précisément de ses émissions, est une thématique très importante au vu de l'augmentation constante des concentrations de méthane dans l'atmosphère (Fig. II.3), se plaçant pour le moment loin des scénarios à 1.5°-2° de réchauffement à l'horizon de 2100 ([42], Fig III.9).

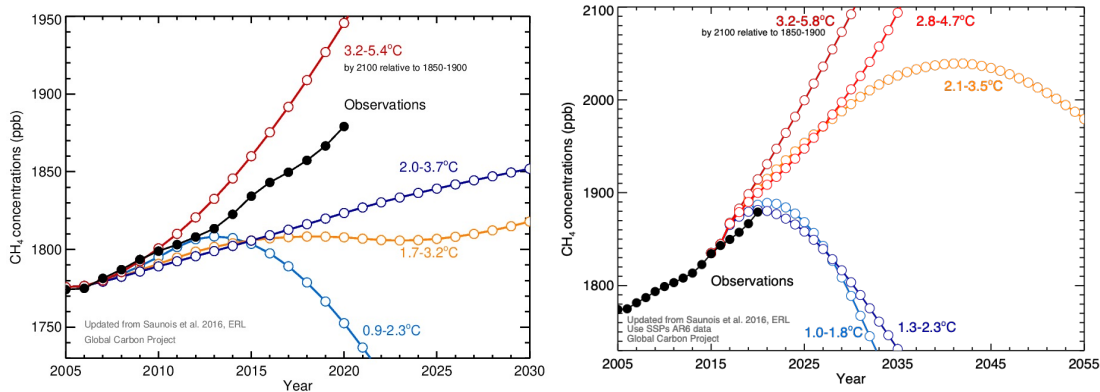


FIGURE III.9 – Évolution des concentrations moyennes atmosphériques de méthane (noir, entre 2005 et 2021) et des concentrations simulées en moyenne suivant les différents scénarios socio-économiques, à gauche : Scénarios de l'AR5 jusque 2030 ; Droite : scénarios de l'AR6 de 2015 jusque 2055.

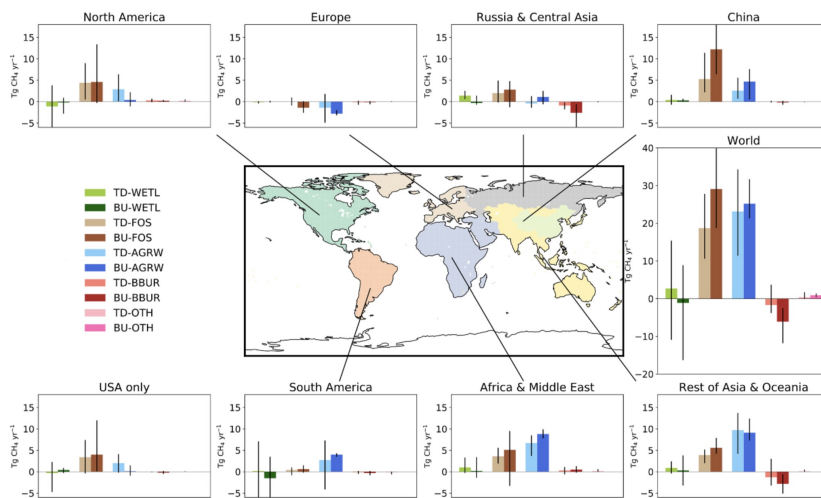


FIGURE III.10 – Changement des sources de méthane entre 2000-2007 et l'année 2017, pour les principales catégories d'émissions pour le monde (encart à droite) et différentes grandes régions (autres encarts) estimées par les approches montantes et descendantes. Tiré de [41].

Pour expliquer les variations récentes du méthane, j'ai analysé l'ensemble des estimations des émissions obtenues par les deux approches. Ainsi, j'ai pu montrer dans les articles [28] et en particulier [41], que ce sont essentiellement les sources anthropiques qui augmentent avec des contributions équivalentes du secteur des énergies fossiles et du secteur agricole et des déchets à l'échelle planétaire mais avec des répartitions différenciées selon les régions du monde (Fig. III.10). Cette étude montre une certaine cohérence entre les approches montantes et descendantes mais soulève la forte incertitude sur certaines

catégories d'émissions ou régions. Par exemple, les incertitudes sur une contribution non nulle des zones humides restent grandes alors que des analyses de données suggèrent une contribution importante des émissions biogéniques tropicales (Nisbet *et al.*, 2019b). De plus, les inversions prises en compte dans cette étude étaient basées sur des mesures de surface (avec une couverture faible dans les tropiques) et un champs de OH constant dans le temps pour la plupart des inversions. Par conséquent les effets liés aux variations de OH ne sont pas pris en compte et des régions fortement émettrices comme les tropiques sont peu contraintes par les observations.

Nous concluons les bilans publiés par le Global Carbon Project en proposant des recommandations pour améliorer ce bilan et dressent des axes de recherches. Notre dernier bilan [42] pointe les axes suivants :

Du côté des approches descendantes :

Axe TD-1 : intégrer les incertitudes liées aux variations temporelles de OH

Axe TD-2 : mieux analyser les résultats des inversions et en particulier les évaluer avec des observations indépendantes, afin de comprendre les différences régionales entre les systèmes et potentiellement de réduire la dispersion en éliminant certains résultats moins fiables

Axe TD-3 : intégrer tous les flux et leurs incertitudes *a priori*, en particulier les flux liés aux émissions naturelles qui n'étaient pas jusqu'à présent cartographiées (émissions lacs, réservoirs, rivières...)

Axe TD-4 : développer des approches intégrant d'autres contraintes atmosphériques (isotopes, espèces co-émises tels que l'éthane ou le CO) pour espérer mieux séparer les sources

Du côté des approches montantes :

Axe BU-1 : mieux évaluer les modèles de surfaces continentales et les ajuster indépendamment des approches descendantes

Axe BU-2 : tester différents produits pour les étendues de zones humides en entrée des modèles de surfaces continentales

Axe BU-3 : développer des cartes de couverture des eaux continentales dynamiques prenant en compte la diversité des zones naturelles recouvertes en eau et différenciant zones humides, lacs, rivières, étangs, tourbières, réservoirs.

L'axe TD-1 nécessite de bien comprendre et aussi de pouvoir estimer les variations de OH ainsi que ses impacts sur les bilans de méthane dérivés des inversions. Pour répondre à cette question, j'ai proposé un axe de travail sur OH dans le cadre d'une collaboration internationale d'un groupe du GCP financé par la fondation Gordon and Betty Moore. les résultats sont décrits dans la section 3.4. L'axe TD-4 a été développé dans le cadre de la thèse de Joël Thanwerdas et les premiers résultats sont décrits dans la section 3.5. Mon projet de recherche poursuit les travaux sur ces deux axes et intégrera des travaux sur les axes TD-2 et TD-3, ainsi que BU-2 et BU-3.

3.2 Comment les estimations des approches descendantes se comparent-elles aux inventaires et aux estimations nationales ? Sont-elles porteuses d'information pour la vérification des remontées nationales des émissions de gaz à effet de serre ?

Les approches descendantes contraintes par des mesures atmosphériques sont vues comme des méthodes complémentaires aux inventaires d'émissions. Les inventaires basés sur des statistiques d'activités et des facteurs d'émission peuvent être empreints d'erreurs issues de ces deux éléments. Une comparaison des deux approches permet de mettre en évidence des sur-estimations (exemple des émissions de méthane en Chine, Peng *et al.* (2016)) ou des sous-estimations (exemple des émissions de méthane liées à l'exploitation du gaz de schistes aux USA, Rutherford *et al.* (2021)). De plus, les méthodes descendantes sont envisagées comme un outil de vérification des déclarations nationales des émissions aux instances européennes et internationales (à la Convention-cadre des Nations Unis pour le Changement Climatique

– CCNUCC, UNFCCC en anglais – pour les gaz à effet de serre). C’est pourquoi de nombreux projets ont pour objectif de comparer les émissions optimisées par les approches descendantes avec les inventaires institutionnels ou les déclarations nationales à l’UNFCCC.

L’une des difficultés de cette comparaison, au-delà des incertitudes des résultats des inversions eux-mêmes, concerne la méthodologie de séparation entre 1) les émissions naturelles des émissions anthropiques (les seules à être déclarées) et 2) la séparation par sous-secteur dans les inversions. En effet, la plupart des systèmes d’inversion atmosphérique optimisent le flux net total de méthane à la surface (somme des sources à laquelle on soustrait le puits par les sols) ou parfois, quelques catégories d’émissions. Pour comparer les flux optimisés aux inventaires d’émissions anthropiques, il faut donc :

1. séparer la partie naturelle des émissions pour obtenir les émissions anthropiques totales
2. séparer les émissions anthropiques en au moins deux ou trois secteurs d’intérêts politique et économique différents : le secteur des énergies fossiles, le secteur agricole et le secteur du traitement des déchets.

La méthodologie par défaut que j’utilise pour le GMB est d’appliquer les contributions des flux a priori à l’échelle du pixel pour déterminer les contributions de chaque catégories après optimisation. Cette méthodologie est fortement dépendantes des flux *a priori* utilisés et de leurs contributions respectives initialement. Une autre méthodologie consiste à soustraire des estimations des émissions naturelles issues des approches montantes au total du flux optimisé. Nous avons comparé ces méthodes dans [55] sur les estimations des émissions anthropiques totales à l’échelle nationale. Nous montrons que les différences dues à la méthodologie restent inférieures à la plage des estimations dérivées par les différentes inversions.

Émissions européennes Dans le cadre du projet européen INGOS (2011-2015) [30], un ensemble de simulations issues de différents modèles d’inversion (dont les inversions que j’ai faites avec le système du LSCE) a montré que les émissions européennes totales dérivées par les inversions étaient plus fortes (26.8 (20.2–29.7) Tg CH₄ yr⁻¹) que les émissions anthropiques déclarées aux Nations Unies (21.3 Tg CH₄ yr⁻¹ (2006) to 18.8 Tg CH₄ yr⁻¹ (2012)); cette différence s’expliquant par les sources naturelles des zones humides (4.3 (2.3–8.2) Tg CH₄ yr⁻¹ (EU-28) estimé par l’ensemble de modèle WETCHIMP (Melton *et al.*, 2013a; Wania *et al.*, 2013). Cette première étude mettait en évidence le besoin crucial de 1) l’estimation des sources naturelles pour la comparaison des estimations inverses aux déclarations nationales ; 2) celui d’un réseau de mesure plus dense en particulier dans le sud de l’Europe ; 3) l’amélioration de la résolution et du transport dans les modèles (en particulier le mélange vertical) et 4) la réduction des incertitudes sur les estimations des approches montantes et descendantes pour faciliter les comparaisons. Récemment, dans le cadre du projet européen VERIFY, les estimations des inversions mondiales soumises à GCP [42] et d’inversions atmosphériques régionales ont été comparées aux déclarations aux Nations Unies [46]. Les inversions régionales ont des plages de valeurs plus restreintes par rapport aux inversions mondiales car elles utilisent des modèles de transport aux paramétrisations plus récentes et surtout des résolutions plus fines. Cependant il reste primordial de pouvoir estimer indépendamment les émissions naturelles avec des incertitudes relativement faibles afin de mieux contraindre la part des émissions anthropiques et leur variation.

Émissions nationales Dans le cadre des Accords de Paris et du Bilan Mondial (en anglais « Global StockTake »), la demande est forte sur l’échelle nationale. Dans le projet Espigrad, nous avons mis en place avec I. Pison un système analytique d’inversion avec le modèle régional CHIMERE (à aire limitée) pour la France [31], démontrant la capacité d’un tel système à estimer les émissions totales à l’échelle des régions françaises ou par secteur à l’échelle de la France. En particulier, une sous-estimation des émissions issues de l’agriculture avait été mise en évidence. Depuis 2012, le réseau de mesures en France et en Europe s’est étoffé, permettant de mieux contraindre les émissions nationales française. Les suites de cette étude sont en cours et visent à fournir régulièrement (tous les ans) des estimations des émissions françaises et de les comparer aux déclarations nationales du CITEPA. Obtenir des estimations nationales pour tous les pays requière l’utilisation d’un modèle planétaire comme LMDZ. Cependant la résolution actuelle relativement

grossière de LMDZ par rapport à la taille des pays ne permet pas d'estimer les émissions pour les petits pays, le plus petit pays étudié dans [55], étant le Vénézuéla avec ses 916 400 km² (pour comparaison la France a une superficie de 543 940 km²). Malgré les incertitudes des inversions, les comparaisons à l'échelle nationale pour une douzaine de pays ont montré que les émissions anthropiques estimées par les inversions sont généralement supérieures à celles déclarées aux Nations Unies. En particulier, les pays extracteurs de pétrole et de gaz dans le centre de l'Asie et le Golfe persique déclarent des émissions systématiquement plus basses que celles issues des inversions (Fig. III.11).

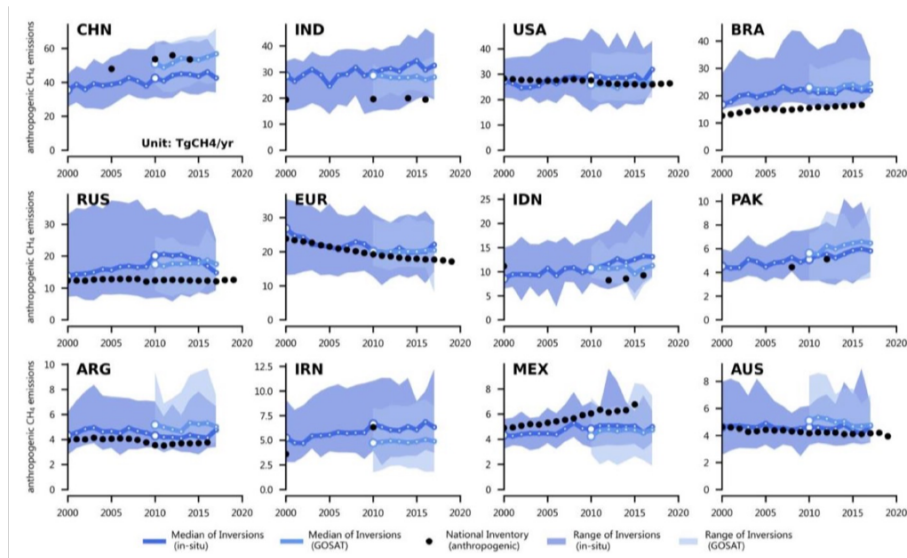


FIGURE III.11 – Émissions anthropiques de méthane déclarées aux Nations Unies (points noirs) et estimées par l'ensemble des inversions atmosphériques assimilant des données de surface (bleu foncé) et des données satellites (bleu clair) soumis au bilan mondial de méthane publié en 2020 ([42]). Tiré de [55].

Ces différentes études mettent en évidence les limites actuelles de cet exercice de comparaison et d'estimation des émissions nationales à partir des inversions. Les points d'amélioration à envisager sont les suivants :

- la résolution spatiale des modèles planétaires nécessite d'être affinée pour mieux résoudre les échelles nationales
- une estimation dynamique et cohérente de l'ensemble des sources naturelles estimées par les approches montantes pour nourrir les flux *a priori* des systèmes d'inversions
- l'intégration des tendances des puits de méthane (OH en particulier) dans les systèmes d'inversion
- l'évaluation de l'apport des isotopes et des espèces co-émises dans les bilans sectoriels
- l'utilisation de l'évaluation des résultats des inversions afin de réduire la plage de valeurs estimées par les approches descendantes
- l'utilisation d'un *a priori* le plus juste possible en termes de résolution spatiale car les incertitudes des flux sont proportionnelles au maximum de flux de chaque pixel et ses huit voisins [FC : trop spécifique]
- de nouvelles (?) informations nécessaires à la formulation des erreurs dans la matrice de variance-covariance des flux à optimiser (B)

3.3 Quelle est l'influence des erreurs de transport sur les estimations des sources de méthane ?

Les plages de valeurs (min-max dans les Fig. III.11 et III.10 par exemple) illustrent les difficultés des modèles de chimie-transport à attribuer des émissions à une région plutôt qu'à une autre. Cette difficulté

est liée principalement à :

1. la quantité d'observations, donc d'information apportée au système pour contraindre les émissions de cette région
2. les erreurs de transport dans les modèles
3. les flux *a priori* utilisés

Les erreurs de transport dans les modèles ont été évaluées par R. Locatelli lors de sa thèse dans [14] à environ 5% ($27 \text{ Tg CH}_4 \text{ yr}^{-1}$) du total des émissions à l'échelle mondiale mais peuvent atteindre 23% en Europe voire 48% en Amérique du Sud. Les erreurs à l'échelle de la grille du modèle atteignent 150% à certains points de grille, montrant ainsi que les inversions ne sont même pas en cohérence sur le signe de l'incrément à appliquer à l'émission *a priori*.

Parmi les caractéristiques des modèles influençant ces capacités, on peut citer :

- le temps d'échange inter-hémisphérique, critique pour la répartition nord/sud des émissions
- la résolution verticale, affectant les échanges stratosphère-troposphère
- les paramétrisations physiques des phénomènes sous-maille, affectant la représentation des variations synoptiques des concentrations de méthane

Le passage de 19 à 39 niveaux dans LMDz a permis d'améliorer significativement les échanges stratosphère-troposphère [17]. R. Locatelli a montré que le passage de la paramétrisation physique de la convection de Tiedke à celle de Kerry Emanuel et celui de la diffusion de Louis à Yamada et l'ajout du modèle des thermiques améliorent un peu le temps d'échange inter-hémisphérique mais augmente la sensibilité au forçage et en particulier à la température. Cette sensibilité renforce les phénomènes de turbulence et de convection à certains endroits pouvant engendrer de fortes erreurs de représentativité à certaines stations [17].

L'incertitude sur les émissions de méthane à l'échelle mondiale liée aux paramétrisations sous-maille dans LMDZ est de l'ordre de $4 \text{ Tg CH}_4 \text{ yr}^{-1}$ lors de l'assimilation de mesures de surface et $\pm 1 \text{ Tg CH}_4 \text{ yr}^{-1}$ dans le cas de l'assimilation de colonnes atmosphériques (GOSAT), bien plus faible que l'erreur de transport estimée avec un ensemble de modèles [19]. De même, les incertitudes liées à la paramétrisation physique engendrent des incertitudes de 2% à 18% à l'échelle régionale.

Au delà de l'impact sur les résultats, le temps de calcul pour un mois de simulation directe avait été doublé lors de la thèse de R. Locatelli. À cause de cette augmentation importante du temps de calcul (d'autant plus important que le nombre d'espèces à transporter est grand), les inversions de CH_4 avec LMDz ont jusqu'ici toujours été faites avec l'ancienne physique (Tiedke), mettant de côté les améliorations obtenues avec la nouvelle physique. Des modifications techniques sur la lecture des fichiers de flux de masse ont permis récemment de diviser quasiment par deux le temps de calcul, nous permettant de retrouver une performance équivalente.

Pour profiter pleinement des améliorations, en minimisant au mieux le temps de calcul, des développements techniques dans le système d'inversion planétaire du LSCE (aujourd'hui, CIF-LMDz) ont aussi été faits pour permettre la parallélisation physique sur des périodes de temps courtes d'une longue simulation inverse. Ces différents développements permettront de reprendre les différentes études "long terme" en utilisant les nouvelles paramétrisations physique après un travail de vérification de la qualité des comparaisons aux observations et de la quantification des erreurs modèle-observations associées à cette configuration du modèle pour le méthane. Ils permettront aussi d'augmenter la résolution horizontale du modèle LMDZ et faire des simulations inverses en un temps raisonnable.

3.4 Quel est l'impact de l'incertitude sur OH sur les estimations de méthane ?

Comme mentionné précédemment, la plupart des systèmes d'inversion utilisent le champ dit de "TRANS-COM" issu d'un exercice d'inter-comparaison (Patra *et al.*, 2011). Il a la particularité d'avoir un ratio N/S

de concentrations de OH égal à 1, en accord avec les estimations basées sur des inversions utilisant des modèles en boîtes et assimilant les concentrations de méthylchloroforme (MCF). En effet le MCF a la particularité de n'avoir qu'un puits : sa destruction par OH. En supposant ces émissions connues et en utilisant les variations de ces concentrations atmosphériques, l'assimilation de données de MCF (généralement dans un modèle à 1-5 boîtes) permet de déterminer la quantité moyenne de OH dans l'atmosphère et ses variations. Les émissions de MCF étant interdites depuis le protocole de Montréal et ses amendements, les concentrations de MCF diminuent fortement et nous arrivons aujourd'hui en limite de détectabilité, questionnant les résultats pour les années récentes. Cependant, il semblerait cette méthode soit toujours efficace pour obtenir de l'information sur les variations de OH (*Patra et al., 2021b*).

Le champ de OH TRANSCOM fournit un cycle saisonnier mais est statique dans le temps. Or, nous savons que les concentrations de OH sont sensibles aux paramètres météorologiques et à l'ozone et ses précurseurs. Cependant les variations inter-annuelles et les tendances issues des estimations basées sur le MCF et celles issues des modèles de chimie-climat sont en désaccord.

Afin d'améliorer les champs de OH utilisé dans les inversions, j'ai proposé de travailler sur ce thème dans un projet international financé par la fondation Moore. Les travaux de Yuanhong Zhao lors de ses trois ans en post-doctorat avec nous sont résumés ci-dessous.

Moyenne atmosphérique de la quantité de OH Avant d'estimer l'impact d'OH sur les émissions dérivées par inversion atmosphérique, nous avons étudié 10 champs de OH simulés par les modèles de chimie-climat ayant participé au projet d'inter-comparaison CCMI (Chemistry Climate Model Intercomparison). À la fois la quantité moyenne atmosphérique de OH, mais aussi sa distribution spatiale sur l'horizontale et la verticale varient d'un modèle à l'autre. Les différences entre les modèles sur la quantité d'OH dans la troposphère et sa distribution verticale sont essentiellement liées aux différences dans les distributions d'oxydes d'azotes alors que les différences de distribution horizontale sont liées aux émissions naturelles et à la chimie des composés organiques volatils [37]. Ces 10 champs d'OH présentent une moyenne planétaire troposphérique variant de 10.3 [FC : séparateur decimal dans tout le texte ?] à 16.3×10^5 molec cm⁻³. L'utilisation de ces 10 champs de OH dans le système d'inversion du LSCE fournit des émissions globales de CH₄ variant de 518 à 757 Tg CH₄ yr⁻¹. Si on retire les 2 modèles extrêmes hauts de cette distribution, on réduit la plage à 10.3 à 12.6×10^5 molec cm⁻³ pour les OH correspondant à 518-611 Tg CH₄ yr⁻¹ (Fig. III.12, [40]), soit une incertitude de 17%. Cette plage de valeur des émissions mondiales de méthane est largement supérieure à celle estimée par l'ensemble des systèmes d'inversion dans le bilan mondial du Méthane publié en 2020 [42] (incertitude de 6%). De plus, les estimations faites à partir de champs OH TRANSCOM se situent dans la fourchette basse des estimations. Par conséquent, l'incertitude sur le total des émissions estimé par les méthodes descendantes dans le GMB est probablement sous-estimé.

Distribution spatiale de OH En plus de l'impact de la moyenne atmosphérique de la quantité d'OH troposphérique, sa répartition spatiale (verticale et horizontale) a aussi un impact non négligeable sur la répartition régionale des émissions dérivées des inversions (Fig. III.13). Ainsi en appliquant la répartition spatiale des différents champs d'OH des modèles de chimie-climat du CCMI, tout en imposant le même puits par OH à l'échelle mondiale, il résulte des différences d'attribution des émissions régionales de CH₄, en particulier dans les tropiques, pouvant aller jusqu'à 20% en Chine et en Amérique du Sud. Ces différences d'attribution se répercutent sur les secteurs, en particulier des zones humides et de l'agriculture et des déchets, secteurs d'émissions prépondérants dans les tropiques.

Variations inter-annuelles et tendances de OH La plupart des modèles de chimie-climat simulent une augmentation d'OH au cours des années 2000 [37], en désaccord avec les estimations basées sur le MCF. La tendance positive de OH entre 1980 et 2010 dans les modèles est associée à une augmentation de la production d'OH et à une diminution du puits d'OH dues à une diminution du CO après 2000. Les inversions intégrant une augmentation des concentrations d'OH tendent à restituer des émissions mondiales plus fortes qu'avec un champ constant dans le temps, dont 25% est lié à l'augmentation de

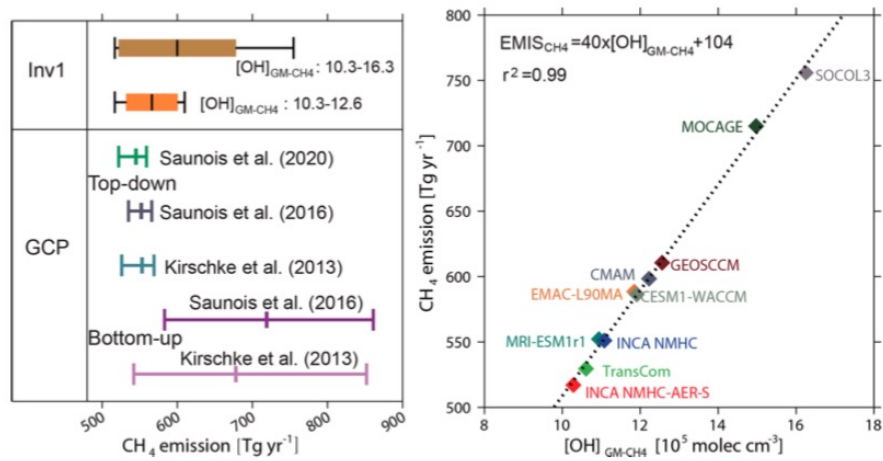


FIGURE III.12 – Gauche : Émissions moyennes de CH₄ sur la période juillet 2000 – juin 2002 estimées par l’ensemble des inversions contraintes par les champs d’OH du CCMI. Comparaison avec les estimations des années 2000s issues de Kirschke et al., 2013; Saunois et al., 2016, 2020. Les boîtes à moustaches indiquent les minima, maxima et valeurs moyennes des estimations. Droite : Émissions optimisées de CH₄ (Tg CH₄ yr⁻¹) en fonction de la moyenne troposphérique globale d’OH, OH_{GM-CH₄} (× 10⁵ molec m⁻³). Tiré de [40].

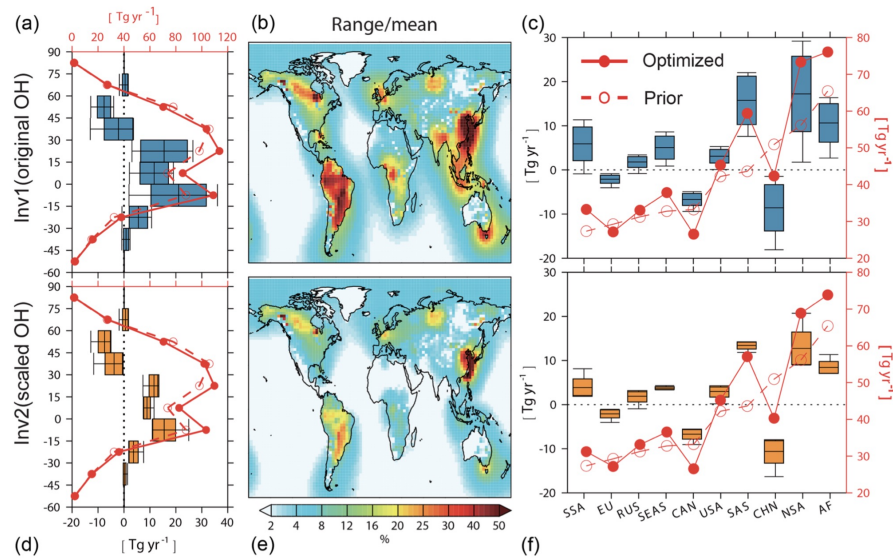


FIGURE III.13 – Moyennes des émissions de CH₄ (juillet 2000 – juin 2002) zonales (a, d) et régionales (c, f) estimées par les inversions contraintes avec les champs d’OH du CCMI originaux (a, c) et calibrés pour avoir le même puits global (d, f). A priori en rouge pointillé et a posteriori en rouge continu. Les boîtes à moustaches représentent la différence entre les émissions optimisées et les émissions a priori. USA : America, CAN : Canada, EU : Europe, RUS : Russia, CHN : China, SEAS : Southeast Asia, SAS : South Asia, NSA : northern South America, SSA : southern South America, AF : Africa. (b, e) Rapport entre la plage d’incertitude des émissions estimées par l’ensemble des inversions et la moyenne d’ensemble à chaque point de grille. Tiré de [40].

OH.

Au delà de leur tendance à "long" terme, les concentrations de OH varient d'une année sur l'autre du fait des variations inter-annuelles de ces précurseurs et de variables météorologiques. Diverses études ont évalué l'influence et les contributions de ces paramètres de contrôle. En particulier, OH est sensible aux événements El-Niño entraînant une augmentation du CO dans l'atmosphère suite aux feux de biomasse intenses.

À la fois les variations inter-annuelles et la tendance à long terme d'OH influencent notablement les estimations des émissions mondiales de méthane (jusqu'à 10 Tg CH₄ yr⁻¹ pour un événement El-Niño et 23±9 Tg CH₄ yr⁻¹ sur l'augmentation des émissions entre 1986 et 2010). Les régions tropicales sont les régions les plus impactées par ces variations climatiques et ces rétroactions de la chimie atmosphérique complexe [40].

Ces études pointent donc l'importance de pouvoir prendre en compte les incertitudes sur OH (quantité globale, répartition spatiale et variations temporelles) pour déterminer le bilan des émissions mondiales de méthane, et surtout régionales et sectorielles, et encore plus les changements dans ces émissions. Les estimations des concentrations de OH basées sur MCF ne conduisent qu'à des estimations à l'échelle mondiale des concentrations moyennes d'OH et de ses variations, sans information spatiale. Il apparaît donc primordial de pouvoir fournir des champs 4D d'OH, dont les répartitions spatiales et temporelles s'accordent avec celles de ses principales variables de contrôle, aussi bien météorologiques que chimiques. L'utilisation des sorties de modèles de chimie atmosphériques semble une solution, mais les différents modèles ont des visions divergentes sur les caractéristiques de OH [37]. Il apparaît donc évident que les modèles de chimie atmosphérique sont biaisés dans leur estimation. Ces biais sont dus à une mauvaise représentation des concentrations des précurseurs de OH et de variables météorologique ou à la simplification du schéma chimique utilisé.

La prochaine étape de ce travail consiste donc à corriger les sorties de modèles [FC : comment ?] afin de s'assurer de l'accord des estimations des précurseurs de OH avec les observations avant d'utiliser leur champs 4D dans les inversions atmosphériques (voir chapitre IV). Il s'agit de la suite de la collaboration avec Y. Zhao qui travaille maintenant en tant que professeur assistant à l'Ocean Université of China à Qingdao.

3.5 Les mesures isotopiques apportent-elles suffisamment d'information pour mieux contraindre le bilan de méthane ?

Les isotopologues stables du méthane les plus importants dans l'atmosphère sont ¹²CH₄ (98,8%), le ¹³CH₄ (1,11%) et le CH₃D (0,06%). Les autres isotopologues, combinant les isotopes du carbone et de l'hydrogène, sont présents en bien moindre quantité dans l'atmosphère. Les isotopologues du CH₄ peuvent permettre de discriminer les sources entre elles car selon les origines de la formation du méthane, les émissions sont enrichies ou appauvries en ¹³CH₄ (1,11%) ou CH₃D. Dans la suite nous allons essentiellement parler du ¹³CH₄. Pour analyser le contenu en isotopologue, on définit le rapport isotopique R par :

$$R = \frac{[^{13}CH_4]}{[^{12}CH_4]}$$

et le signal isotopique δ par :

$$\delta^{13}CH_4 = \frac{R}{R_{standard}} - 1$$

Le signal isotopique est exprimé en ‰. De nombreuses campagnes de mesures et études visent à déterminer le signal isotopique des sources de méthane, appelé *signature isotopique*. Au premier ordre, on peut distinguer les sources d'origines biogéniques plus légères en ¹³CH₄ (-61.7 ± 6.2‰), suivies des sources thermogéniques (-44.8 ± 10.7‰) puis des sources pyrogéniques (-26.2 ± 4.8‰), les plus élevées. Cependant les variations spatio-temporelles de ces signatures ainsi que leurs incertitudes sont relativement importantes et induisent un recouvrement des distributions de ces signaux (Fig. III.14).

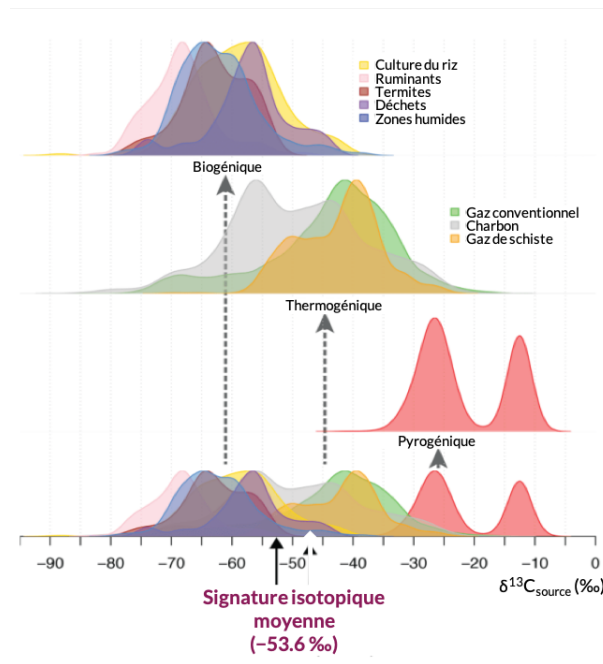


FIGURE III.14 – Distributions des signatures isotopiques des sources de méthane selon les principaux secteurs d’émission. Tiré de *Sherwood et al. (2017)*.

Jusqu’au début des années 2000, à la fois les concentrations de méthane et le signal isotopique en $^{13}\text{CH}_4$ ont augmenté, illustrant l’augmentation du méthane d’origine fossile. Le début des années 2000 est caractérisé par un plateau visible sur les deux signaux atmosphérique. De façon surprenante, à partir de 2007, l’augmentation des concentrations de méthane dans l’atmosphère est associée à une diminution du signal isotopique en $^{13}\text{CH}_4$ (Fig.III.15). **Quel changement dans le mélange des sources permet d’expliquer ces signaux ? Une augmentation des émissions biogéniques (zones humides, agriculture, déchets), une diminution des émissions d’origine fossile, une diminution des émissions des feux de biomasse pourraient chacun expliquer la décroissance en $^{13}\text{CH}_4$. Mais quelle est la combinaison la plus probable, en accord avec à la fois l’augmentation des concentrations de méthane et la diminution en $^{13}\text{CH}_4$?**

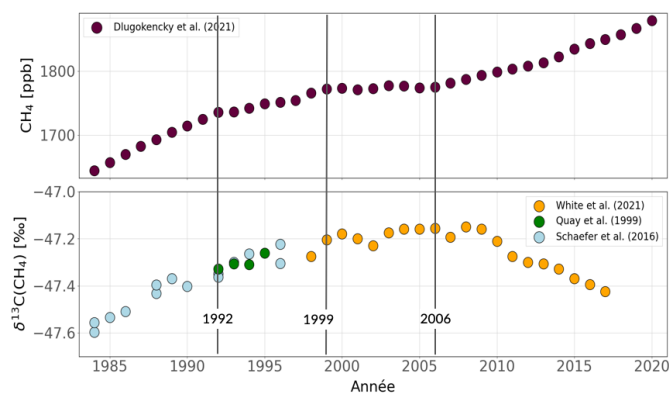


FIGURE III.15 – Évolution temporelle des concentrations de CH_4 et du signal isotopique atmosphérique $\delta^{13}\text{CH}_4$ entre les années 1980 et 2020.

J’ai montré dans l’étude [28] que les changements des émissions de méthane entre le plateau des années 2000 et le début des années 2010 estimés par les systèmes d’inversion atmosphérique assimilant

le méthane total uniquement sont généralement en désaccord avec la signature isotopique du changement des sources calculé par *Schaefer et al. (2016)* (Fig. III.16). Ces résultats suggèrent donc que la répartition sectorielle du changement d'émissions calculé diffère d'un modèle à un autre et ne correspond pas au changement de contribution des sources expliquant la diminution du signal isotopique dans l'atmosphère.

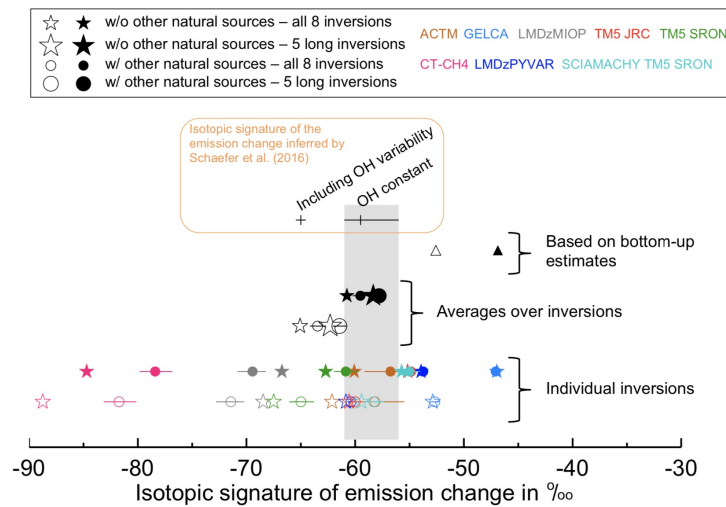


FIGURE III.16 – Signature isotopique du changement des émissions de méthane entre 2002-2006 et 2008-2012 calculé à partir des signatures isotopiques moyennes des sources suggérées par *Schaefer et al. (2016)* et *Schwietzke et al. (2016)* en symboles plein et vide, respectivement. Les valeurs pour les inversions individuelles et la moyenne d'ensemble des inversions sont présentées. La zone grisée correspond à la plage de valeur du signal isotopique calculé par *Schaefer et al. (2016)* à partir d'un modèle à une boîte en supposant OH constant. Tiré de [28].

Le méthane émis dans l'atmosphère se mélange rapidement et les mesures de méthane total seul ne peuvent distinguer les origines du méthane mesuré, après mélange dans l'atmosphère. Les distributions spatiales varient d'un secteur d'émission à un autre, leurs variations saisonnières aussi pour certains. Cependant, souvent, différentes sources co-existent dans une même grille du modèle (de l'ordre de 2° de résolution dans le cas du modèle global LMDz). Il est donc difficile d'attribuer à une source spécifique un changement d'émission en utilisant uniquement les données de méthane total. Par conséquent, il apparaît judicieux de pouvoir assimiler les mesures isotopiques atmosphériques afin de mieux contraindre la répartition sectorielle dans les systèmes d'inversions.

Modélisation directe et sensibilité du signal isotopique en Arctique Avant de s'engager dans l'assimilation des données isotopiques, une étude de modélisation directe a été conduite dans le cadre du projet Izomet que j'ai co-dirigé. Ce projet était focalisé sur la zone de l'Arctique. T. Thonat en post-doc 2 ans sur ce projet a développé une étude théorique à l'échelle régionale. Il a montré que même si le réseau actuel de sites de mesures était équipé avec des instruments offrant des mesures continues isotopiques, alors seulement certains sites recevant suffisamment de signal des sources locales pourraient permettre de différencier les sources de cette région avec un degré de confiance suffisant.

Les sources des zones humides requièrent une sensibilité journalière de mesure moindre (0.2‰) que les autres sources pour la plupart des sites. Les émissions du plateau continental Arctique à l'Est de la Sibérie nécessitent une précision inférieure à 0.05‰ sur les sites russes [36]. Des mesures en bateau dans les eaux de l'Arctique ont permis de discuter les signatures des sources de cette région (en particulier le caractère thermogénique des sources du plateau continental Arctique) mais pas de contraindre les sources par secteurs. En effet dans cette région, les études de modélisation ont montré que le transport synoptique des masses d'air et les intrusions stratosphériques avaient une grande importance sur la variabilité du signal isotopique mesuré. Aller plus loin dans l'utilisation des mesures isotopiques dans cette région

requière une amélioration de la représentation du transport synoptique, de la chimie et de l'impact des émissions hors région ([38]).

Assimilation conjointe de CH_4 et $\delta^{13}\text{CH}_4$ Pour aller plus loin, j'ai proposé une thèse (financement CEA) visant à développer un système d'assimilation multi-contraintes pour le méthane pour assimiler conjointement le signal atmosphérique en méthane et en isotopes stables. La mise en place de ce système d'inversion multi-contrainte a été faite lors de la thèse de J. Thanwerdas. Elle s'est faite en parallèle du développement du CIF (Community Inversion Framework, <http://community-inversion.eu>, [36]). Le CIF vise à intégrer différents modèles de transport (actuellement LMDz, CHIMERE, Flexpart, TM5, ICON-ART, WRF-Chem), différentes méthodes d'inversions (variationnelle, analytique, méthode d'ensemble de Kalman) et à être le plus générique et flexible possible pour l'utilisateur. Dans ce contexte, la gestion du schéma chimique dans LMDz a été externalisée au code de transport en s'inspirant de l'approche choisie dans CHIMERE afin de pouvoir définir les espèces et les réactions chimiques propres à chaque utilisateur. Ces développements ont permis 1) d'intégrer le transport simultané des isotopologues du méthane et leurs réactions chimiques, 2) d'assimiler simultanément le CH_4 et le $\delta^{13}\text{CH}_4$ et 3) de modifier le vecteur d'état (jusqu'ici contenant seulement le flux net par pixel des émissions et les conditions initiales) afin de pouvoir optimiser non seulement les émissions par secteurs (nombre défini par l'utilisateur) mais aussi les signatures isotopiques. Chacun de ces éléments pouvant être optimisé à une résolution temporelle et spatiale donnée (et adaptée par l'utilisateur).

Impact du chlore dans le fractionnement isotopique et le signal atmosphérique Parmi les éléments fractionnant isotopiquement à définir, il y a l'effet de fractionnement isotopique lors des réactions chimiques. Ce fractionnement existe pour la réaction avec OH et Cl en particulier. La réaction avec Cl, même si elle a un moindre effet dans le bilan de méthane, est fortement fractionnante comparée à celle avec OH. Ainsi cette réaction a été intégrée dans le module de chimie du méthane [a] et des tests ont été effectués à partir des différentes estimations de Cl existantes dans la littérature, lors de simulations directes et inverses. Le chlore est responsable de 0.3% à 1.8% du puits de méthane dans la troposphère et de 1.0 à 1.2% du puits dans la stratosphère. Selon la quantité de Cl choisie dans l'inversion, les émissions de méthane sont modifiées d'au plus 12 Tg $\text{CH}_4 \text{ yr}^{-1}$ globalement, ce qui est largement inférieur aux erreurs de transport (évalué à 27 Tg $\text{CH}_4 \text{ yr}^{-1}$ dans [14]). Le choix et donc la quantité moyenne mondiale et la distribution spatiale du champ de Cl affectent peu les résultats des inversions sur les émissions de méthane. Par contre, le profil vertical de $\delta^{13}\text{CH}_4$ est fortement amélioré quand on prend en compte le Cl.

Apport de l'assimilation conjointe CH_4 et $\delta^{13}\text{CH}_4$ Les développements techniques et premiers tests ont été décrits dans l'article [56]. L'assimilation des mesures du signal $\delta^{13}\text{CH}_4$ permet à la fois d'ajuster les signatures isotopiques mais aussi de changer notablement la répartition sectorielle des émissions par rapport à une inversion assimilant uniquement le CH_4 . Dans les premiers tests effectués, l'assimilation de données de $\delta^{13}\text{CH}_4$ modifie la répartition sectorielle des émissions à l'échelle mondiale par rapport à une inversion utilisant uniquement le méthane, comme suit : 5 Tg $\text{CH}_4 \text{ yr}^{-1}$ pour les zones humides, 6 Tg $\text{CH}_4 \text{ yr}^{-1}$ pour les sources biogéniques anthropiques, 8 Tg $\text{CH}_4 \text{ yr}^{-1}$ pour les énergies fossiles et 4 Tg $\text{CH}_4 \text{ yr}^{-1}$ pour la combustion de biomasse et de biofuel. Si les signatures isotopiques des sources sont fixées dans le système, alors cette différence de répartition sectorielle des émissions entre une inversion assimilant le CH_4 seul et une autre assimilant $\text{CH}_4 + \delta^{13}\text{CH}_4$ est multipliée par un facteur 3-4 par rapport au cas précédent.

Ces premiers résultats montrent que l'assimilation des données de $\delta^{13}\text{CH}_4$ apporte de l'information au système, suffisamment pour modifier la répartition sectorielle et régionale des émissions, malgré la faible quantité de données disponibles (Fig. II.3). Cependant, il est crucial dans un tel système de bien définir les valeurs et les incertitudes des signatures isotopiques des sources. La question reste ouverte car il est difficile d'estimer le degré de confiance sur les signatures isotopiques mesurées. Les conditions initiales, l'incertitude sur les observations de $\delta^{13}\text{CH}_4$ et le nombre de catégories à optimiser ont une importance moindre dans la sensibilité du système.

Suite à ces travaux de développements, une étude plus approfondie pour analyser les changements des émissions de méthane sur les deux dernières décennies et expliquer les signaux atmosphériques observés est en cours. Différentes inversions ont été lancées sur la période 1998-2018 afin de tester la sensibilité du système à différents paramètres tels que l'apport de l'assimilation de $\delta^{13}CH_4$, l'hypothèse de signatures isotopiques parfaitement connues et les variations inter-annuelles de OH.

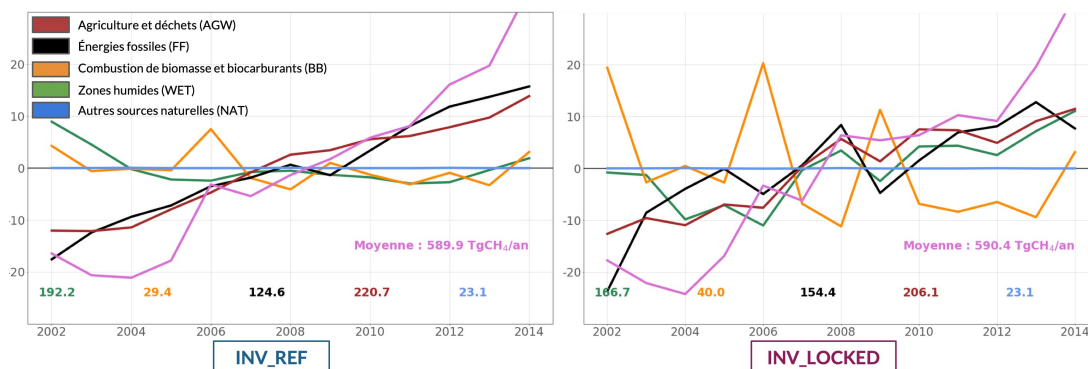


FIGURE III.17 – Anomalie des émissions totales et sectorielles de méthane entre 2002 et 2014 calculée par les inversions assimilant le méthane totale et $\delta^{13}CH_4$. La simulation de référence permet un ajustement substantielle des signatures isotopiques (à gauche) alors que la simulation "LOCKED" fixe les signatures isotopiques à des valeurs prescrites. Les valeurs en couleurs correspondent à la moyenne mondiale des émissions par secteurs sur la période entière. Tiré de la thèse de J. Thanwerdas.

Les premiers résultats sur la période 2002-2014 montrent que :

- dans l'inversion de référence (le système optimise à la fois les émissions et les signatures des sources) assimilant le méthane et $\delta^{13}CH_4$:
 - l'augmentation des émissions totales est due à une augmentation équivalente des sources d'origine fossile et des émissions des secteurs de l'agriculture et des déchets (Fig. III.17) en accord avec les résultats des inversions publiés dans [41]
 - l'augmentation est localisée essentiellement en Asie et en Afrique
 - les signatures isotopiques sont modifiées pour être en cohérence avec le signal atmosphérique : modification à la baisse dans tous les secteurs
 - le changement de la signature isotopique du mélange de sources entre 2002-2007 et 2007-2014 est dû à l'augmentation des émissions de l'agriculture et des déchets, une diminution de la signature isotopique de ce secteur et une diminution des émissions dues à la combustion de la biomasse. Ces effets sont compensés en partie par une augmentation des émissions du secteur des énergies fossiles
- dans l'inversion qui fixe les signatures des sources "LOCKED" :
 - le mélange des sources est fortement impacté : plus de sources pyrogéniques et thermogéniques et moins de sources biogéniques (Fig. III.17)
 - il apparaît une contribution positive des émissions des zones humides au plus de l'augmentation des émissions anthropiques sur la période 2002-2014 (Fig. III.17)
 - en contrepartie, les émissions issues de la combustion de la biomasse montrent des variations inter-annuelles très grandes
- les résultats sont aussi sensibles au champs de OH utilisé et en particulier à ses variations inter-annuelles

Suite à ces développements et ces premiers résultats, différents axes d'amélioration et d'études sont envisageables :

1. utiliser les dernières études afin de :
 - mieux caractériser les signatures isotopiques (variabilités spatiale, sectorielle et tempo-

relle) pour chacun des secteurs d'émissions

- mieux quantifier les incertitudes sur les signatures isotopiques pour définir plus justement la matrice B
2. tester et évaluer l'utilisation d'autres traceurs comme contraintes dans le système comme l'éthane (C₂H₆), le radiométhane (¹⁴C) ou le monoxyde de carbone (CO)
 3. (ré)évaluer la complémentarité des mesures de surface et satellites et tester la combinaison surface-satellite en intégrant l'assimilation de données isotopiques
 4. travailler à la réduction des temps de *spin-up* et *spin-down* actuellement de 2-3 ans avec les isotopes
 5. refaire des inversions depuis les années 80-90 et rediscuter de la cause du plateau du début des années 2000

Pour poursuivre sur l'évaluation de nos capacités à utiliser la co-émission pour mieux séparer les sources de méthane, j'ai proposé de travailler sur les points 2 et 3 dans mon projet ANR JCJC AMB-M³. Les autres points seront abordés parallèlement, je proposerai des stages de master pour y travailler.

Projet Scientifique : Synergie entre modèles numériques et observations des gaz traces pour une meilleure compréhension des sources et puits du méthane

Contexte et objectifs du projet

Les accords de Paris sur le climat prévoient comme objectif de limiter le réchauffement climatique à une augmentation de température par rapport à l'ère pré-industrielle bien en-dessous de 2°C, et d'atteindre un équilibre entre les sources d'émissions anthropiques et les destructions par les puits des gaz à effet de serre d'ici la seconde moitié de ce siècle. Pour réussir à atteindre des niveaux d'émissions de gaz à effet de serre cohérentes avec les Accords de Paris, des réductions importantes des émissions de méthane sont nécessaires (*Nisbet et al., 2019a*). Dans cet objectif, lors de la COP26 en novembre 2022, plus de 100 pays se sont engagés collectivement ("Methane Pledge") dans l'objectif d'une réduction de 30% des émissions mondiales de méthane en 2030 par rapport au niveau de 2020. Ces réductions et leur efficacité doivent être évaluées par l'estimation des variations des différents sources d'émissions anthropiques de méthane à l'échelle nationale puis mondiale.

Dans cet objectif, il est urgent d'améliorer nos capacités à déterminer les variations des émissions anthropiques pour chaque secteur d'émissions (et aussi des émissions naturelles) du méthane, ainsi que celle de ses puits, de l'échelle mondiale à l'échelle nationale.

Les causes des variations récentes des concentrations de méthane (depuis 30 ans), sont toujours fortement débattues dans la communauté. Par exemple, les contributions majoritaires à l'augmentation des concentrations de méthane dans l'atmosphère depuis 2007 ne font pas consensus dans la communauté (Fig. IV.1). Cela tient essentiellement à la grande variété de sources de méthane, mais aussi aux fortes incertitudes associées aux bilans mondial et régionaux des sources et puits de méthane, comme montré dans le Global Methane Budget [42] (voir Sect. 3.1).

L'augmentation constante des concentrations de méthane dans l'atmosphère depuis 2007 (plus de 100 ppb en 15 ans) et les taux d'augmentation record de ces dernières années (+15 ppb en 2020, +17 ppb en 2021, https://gml.noaa.gov/ccgg/trends_ch4/) renforcent le besoin urgent de pouvoir répondre aux questions suivantes :

1. Quelles sont les causes de cette augmentation ?
2. Quelles sources, régions sont en cause ?
3. Quel est le rôle de la chimie atmosphérique dans les variations des concentrations de méthane atmosphérique ?
4. Le réchauffement climatique renforce-t-il les émissions naturelles de méthane ?

	Schwietzke et al. (2016)	Schaefer et al. (2016)	Nisbet et al. (2016)	Patra et al. (2016)	Bader et al. (2017)	Turner et al. (2017)	Rigby et al. (2017)	Saunio et al. (2017)	Worden et al. (2017)	McNorton et al. (2018)	Thompson et al. (2018)	Fujita et al. (2020)	Jackson et al. (2020)	Chandra et al. (2021)
Augmentation biogénique ...	x	x	x	x	x			x	x	x	x	x	x	x
... localisée dans les tropiques		x	x	x				x				x	x	x
Augmentation thermogénique				x	x			x	x	x	x		x	x
Stabilisation / décroissance thermogénique	x	x										x		
Déclin pyrogénique								x	x	x	x		x	
Déclin puits OH						x	x			x				

FIGURE IV.1 – Analyse de la littérature sur l’explication de l’augmentation des concentrations de méthane dans l’atmosphère depuis 2007. Source : thèse de J. Thanwerdas.

5. Cela remet-il en cause les objectifs de réduction des émissions anthropiques ?

6. Les objectifs de réduction des émissions de méthane par les pays signataires des accords de Paris et du "Methane Pledge" sont-ils atteints et suffisants ?

Les approches descendantes d’assimilation d’observations atmosphériques dans les modèles de chimie-transport peuvent permettre de déterminer les sources de méthane indépendamment des inventaires déclarés par les pays. De plus, jusqu’à aujourd’hui, seuls les 43 pays de l’Annexe 1 de la Convention-cadre des Nations Unis pour le Changement Climatique (CCNUCC, UNFCCC en anglais), c’est à dire les pays de l’OCDE et les pays en transition économique, ont l’obligation de déclarer annuellement leurs émissions anthropiques de gaz à effet de serre à la CCNUCC. Les autres pays déclarent irrégulièrement leurs émissions et sans obligation sur le cadre méthodologique pour calculer les émissions. Dans ce contexte, les approches descendantes sont appelées à devenir des outils pour évaluer les effets des politiques de réduction, tout en apportant des estimations des émissions à l’échelle sectorielle, régionale voire nationale.

Cependant ces méthodes descendantes souffrent de différentes limitations :

- une connaissance toujours incomplète et incertaine des flux *a priori* (incertitudes sur la distribution spatio-temporelle des émissions anthropiques et naturelles, voir Sect 3.1)
- une grande difficulté à séparer les sources de différents secteurs se recouvrant spatialement et temporellement sur une grille de modèle (voir Sect. 3.5).
- une dépendance à la tendance des puits de méthane et en particulier aux variations spatio-temporelles d’OH (voir Sect. 3.4)
- une résolution relativement grossière des modèles de transport planétaire pour faire des estimations à l’échelle nationale (voir Sect. 3.2).

L’objectif de mon projet de recherche dans les années à venir vise à répondre aux six questions posées précédemment. Pour répondre à ces questions scientifiques, différents axes de travail seront développés afin d’améliorer techniquement nos outils, réduire leurs limitations et réduire les incertitudes sur le cycle biogéochimique du méthane et ses variations temporelles.

Les différents questionnements sont les suivants, chacun correspondant à une section de ce chapitre :

- Axe 1 - Comment utiliser la co-émission de traceurs pour améliorer la séparation des sources ?
- Axe 2 - Quel est l'apport des données satellitaires actuelles et comment se préparer aux missions futures ?
- Axe 3 - Comment améliorer la résolution spatiale des estimations *a posteriori* des sources de méthane par les méthodes inverses ?
- Axe 4 - Comment améliorer les flux *a priori* et la quantification de leurs incertitudes ?
- Axe 5 - Comment améliorer la prescription des puits de méthane et en particulier leurs variations spatio-temporelles et développer une méthodologie pour contraindre le puits par OH ?

Pour cela, j'ai soumis différents projets qui viennent de commencer et financeront les prochaines années (Fig. IV.2). Les travaux pour chacun des axes et projets seront détaillés dans la suite du chapitre.

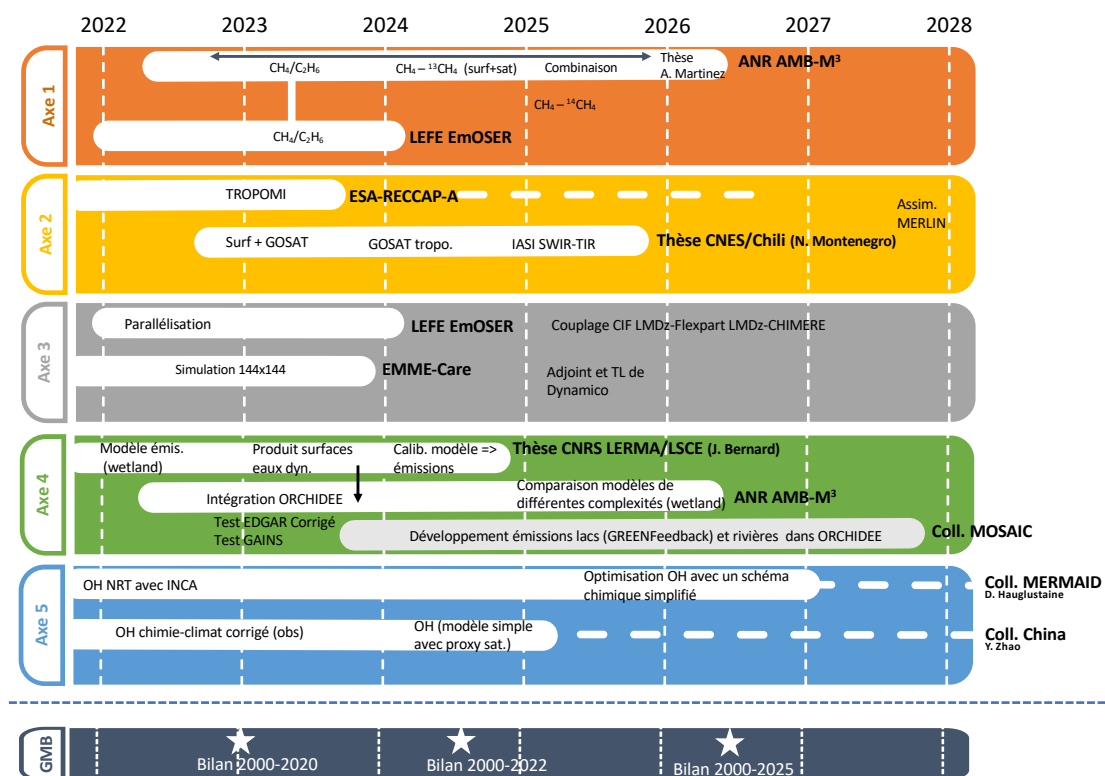


FIGURE IV.2 – Visualisation des déroulements des différents projets dont le financement est connu et leur implication dans chacun des axes.

- Mon projet **ANR JCJC AMB-M³** (Advanced Methane Budget through Multi-constraints and Multi-data streams Modelling) contribuera aux Axes 1 et 4 en finançant une thèse sur la co-émission et un an de post-doc sur le développement d'ORCHIDEE. Ce projet permettra de plus de renforcer la collaboration entre le LSCE et le LERMA, ainsi qu'en interne entre l'équipe MOSAIC et SATINV.
- Mon projet **LEFE-EmOSER** (Émissions de méthane à l'échelle planétaire : Optimiser le Système d'assimilation de données pour des Estimations Routinières) contribuera aussi à développer l'Axe 1 sur la co-émission et à mettre un cadre méthodologique pour faire des inversions routinière permettant de répondre aux variations atmosphériques récentes.

- Le projet **ESA – RECCAP-2A** poursuivra la comparaison à l'échelle nationale entre les estimations déclarées aux Nations Unis et celles issues des inversions produites pour le GMB. De plus une **option TROPOMI**, que je coordonne, contribuera à l'Axe 2 via la mise en place de l'assimilation des données de TROPOMI dans le système d'inversion planétaire CIF-LMDZ et son analyse.
- Dans le cadre du projet **EMME-Care**, nous souhaitons faire des inversions à plus haute résolution que 96x96 sur la région du Moyen-Orient-Est-Méditerranéen. Pour cela, il faudra pallier les limites de ressources numériques et travailler sur l'Axe 3.
- Avec Nicole Montenegro, j'ai obtenu le financement de trois ans de thèse (**demi-bourse CNES + demi-bourse chilienne**) pour qu'elle travaille sur l'assimilation de données satellitaires actuelles (Axe 2). Cette thèse sera l'occasion de renforcer nos collaborations avec le LMD dans le cadre de l'utilisation des données IASI (en particulier C. Crevoisier).
- Avec les collègues du GMB (R. Jackson, Université de Standford), nous avons obtenu un **deuxième financement par la fondation Moore**, projet visant plus particulièrement les tropiques. Le LSCE sera impliqué sur les questions de l'évaluation des inversions, en particulier dans les tropiques et l'analyse de la distribution régionale des flux.

1 Comment utiliser la co-émission de traceurs pour améliorer la séparation des sources ?

1.1 Contexte – Séparation des sources dans les inversions et multi-contraintes possibles

Jusqu'à récemment, le système d'inversion atmosphérique du LSCE (PYVAR-LMDz-SACS) n'optimisait que le flux net à la surface, correspondant à la somme des sources d'émissions plus le puits par les sols. La répartition par secteurs sources du flux optimisé se fait donc après optimisation. Pour cela, différentes méthodes sont possibles ([55]), mais la méthode la plus utilisée consiste à appliquer les rapports des contributions sectorielles issus des flux *a priori* au flux net *a posteriori* à l'échelle d'une région ou d'un point de grille du modèle. Certains systèmes inverses optimisent pour quelques secteurs sources en raison de spécificités spatio-temporelles différentes. Cependant, les émissions liées aux zones humides, à l'agriculture et à la combustion de la biomasse se chevauchent dans les Tropiques (Afrique, Amérique du Sud); les émissions liées aux zones humides et aux combustibles fossiles s'étendent sur les mêmes régions, par exemple dans les basses terres de la Sibérie du Nord. Jusque récemment, les modèles inverses 3D permettant d'extraire les émissions de méthane sont basés uniquement sur des observations totales de CH₄, soit à la station de surface, soit à partir de la télédétection des colonnes atmosphériques et sont donc limités en termes de contraintes pour séparer les sources qui se chevauchent à l'échelle du pixel. Comme montré à la Fig. III.15, la plupart des modèles inverses sont en désaccord avec le signal isotopique observé du CH₄ atmosphérique en raison d'une distribution sectorielle incorrecte de leurs estimations [28].

L'inclusion de contraintes isotopiques dans le système inverse peut permettre de redistribuer les sources afin d'être compatible à la fois avec le méthane total et le signal isotopique observé dans l'atmosphère. Différents groupes (dont le LSCE) ont commencé à utiliser les contraintes isotopiques du carbone stable dans les systèmes d'inversion de l'atmosphère globale pour améliorer la distribution sectorielle des émissions de CH₄ ([56], Basu *et al.* (2022)). L'avantage de tels systèmes doit encore être évalué (voir Section 3.5 du chapitre III). En effet les incertitudes sur les signatures isotopiques des sources doivent être correctement prises en compte pour tirer parti du système en termes d'émissions. De plus, les isotopes stables du carbone ne permettent pas de différencier les émissions biogéniques naturelles (zones humides) des émissions biogéniques des sources anthropiques (agriculture, déchets). D'autres mesures pourraient fournir des informations plus spécifiques aux processus : par exemple, l'éthane est co-émis avec le méthane pendant l'exploitation des combustibles fossiles et pourrait aider à distinguer cette source (Simpson *et al.*, 2012; Aydin *et al.*, 2011; Bader *et al.*, 2017); le monoxyde de carbone est un traceur bien connu de la combustion de la biomasse et pourrait fournir des informations sur cette source variable (Wilson *et al.*, 2016); le signal isotopique en carbone 14 pourrait aussi être utilisé (Gonzalez Moguel *et al.*, 2022). Aucun des systèmes inverses 3D n'a essayé d'assimiler les espèces co-émises à l'échelle mondiale avec

les observations du méthane.

1.2 Limitations techniques dans le système d'inversion

Lors des développements récemment faits dans le CIF (Community Inversion Framework) pour inclure les mesures de signal isotopique dans l'atmosphère [56], différentes avancées techniques ont été franchies :

1. possibilité de faire une liste des traceurs et des réactions chimiques propres à l'utilisateur
2. possibilité de définir différents secteurs de sources à optimiser, ainsi que possibilité d'optimiser aussi les signatures des sources, avec le choix de la dimension spatio-temporelle de leur détermination.

Les limitations envisagées concernent essentiellement :

- les incertitudes existantes sur les signatures isotopiques et les rapports d'émission (éthane:CH₄) issus de la littérature et leur prise en compte adéquate dans le système d'inversion
- les données atmosphériques disponibles et la quantité d'information supplémentaire apportée au système pour contraindre les sources
- la disponibilité des inventaires d'émissions des espèces co-émises comme l'éthane et leurs incertitudes

1.3 Actions proposées

L'objectif de cet axe est donc d'évaluer l'apport des espèces co-émises sur l'estimation *a posteriori* des émissions de CH₄ et en particulier sur les émissions régionales et sectorielles en développant un système d'inversion atmosphérique multi-contraintes et multi-flux de données.

Ces études se feront dans un premier temps dans le cadre de l'ANR AMB-M³ lors de la thèse de A. Martinez débutant en octobre 2022. Pour cela, nous utiliserons le système d'inversion du CIF basé dans un premier temps sur le modèle de transport LDMZ à une résolution horizontale de 3.8° x 1.9° (96x96). Le modèle de chimie transport et sa résolution évolueront en fonction des développements faits dans l'axe 3.

Pour intégrer une nouvelle espèce co-émises comme l'éthane (ou le CO) dans le système d'inversion, il faudra recueillir les données d'entrée nécessaires pour la période d'étude (au moins 2010-2020) :

- les cartes d'émissions *a priori* existantes et leurs incertitudes associées
- les observations (observations de surface de la NOAA et d'autres réseaux, et données satellitaires disponibles tel que MOPITT pour le CO)
- les rapports d'émission CH₄:éthane et CH₄:CO et leurs incertitudes associées provenant de la littérature
- les réactions chimiques essentielles pour définir le temps de vie et les sources et puits chimiques de l'espèce en question

Pour assimiler simultanément différentes espèces co-émises de façon optimale (c'est à dire en tirant partie des différentes informations intégrées dans le système sans pour autant les sur-évaluer), il sera crucial d'évaluer l'impact des incertitudes sur les données *a priori* (émissions, signature isotopiques, rapport d'émissions éthane:CH₄ ou CO:CH₄) et les observations de CH₄, d'isotopes et des espèces co-émises sur les flux optimisés et leurs incertitudes.

Il s'agira de répondre aux questions suivantes :

- Les incertitudes sur les émissions d'éthane et les rapports d'émissions éthane :CH₄ sont-elles trop importantes pour pouvoir tirer de l'information à l'échelle nationale, régionale, mondiale ?

- Quelles sont les échelles sectorielles, horizontales et temporelles sur lesquels le système peut apporter de l'information pour répondre aux questions scientifiques ?
- Quelle est la faisabilité et l'apport d'un système d'assimilation multi-contraintes du méthane : CH₄ total - isotopes - éthane avec un réseau de surface ?
- Quelle est la faisabilité et l'apport d'un système d'assimilation multi-données du méthane : CH₄ total - isotopes en utilisant un réseau de surface et des données satellitaires (en lien avec l'Axe 2) ?

Pour cela les sorties des différentes configurations d'inversions seront analysées en termes de distributions spatiales, variations temporelles et de contributions relatives des sources de CH₄ dérivées des différentes configurations. Les simulations seront évaluées (avec des observations indépendantes) afin de déterminer le potentiel des espèces co-émises pour séparer les secteurs d'émissions et potentiellement réduire les incertitudes du bilan de CH₄.

2 Quel est l'apport des données satellitaires actuelles et comment se préparer aux missions futures ?

2.1 Contexte – Données satellitaires actuelles et missions futures

Des mesures passives dans le proche Infra Rouge (Short Wave Infra Red, SWIR) avec une résolution spatiale de quelques kilomètres, fournissent une estimation de la concentration moyenne de méthane dans la colonne atmosphérique avec une sensibilité allant de la surface à la tropopause (GOSAT-TANSO-FTS depuis 2009, GOSAT2-TANSO2 depuis 2018, S5P-TROPOMI depuis 2019). L'instrument actuellement utilisé pour l'estimation des sources et puits de méthane à l'échelle planétaire est GOSAT-TANSO-FTS dont la résolution spatiale horizontale est de 10 km, mais seules les mesures au-dessus des continents sont fiables et il existe des biais aux hautes latitudes. La nouvelle génération d'instrument à bord de Sentinel 5P avec TROPOMI offre une résolution spatiale un peu plus fine (7 x 7 km²). Actuellement, il existe trois produits issus de TROPOMI S5P pour la colonne atmosphérique de CH₄ :

- le produit officiel, obtenu à partir des mesures de radiances dans le proche infrarouge (NIR et SWIR) en utilisant l'algorithme du SRON RemoTeC-S5P
- le produit dit « scientifique » du SRON établi à partir de l'algorithme RemoTeC TROPOMI XCH₄, décrit dans (*Lorente et al., 2021*)
- le produit de l'université de Brême, UIP S5P (CH₄_S5P_WFMD), obtenu à partir de l'algorithme WFMD (ou WFMD-DOAS) et décrit dans (*Schneising et al., 2019*).

Ces produits ont été validés individuellement avec d'autres mesures de télédétection (TCCON) ou des mesures in-situ (Aircore), et comparés aux estimations de colonnes atmosphériques de GOSAT. Les estimations des colonnes atmosphériques de TROPOMI souffrent encore d'erreurs systématiques, en particulier au dessus des régions continentales à fort albédo (glace, neige, désert). Ainsi leur justesse constatée est au-delà du pour-cent, imposant un pré-traitement avant de les assimiler à l'échelle planétaire.

Des mesures passives dans l'infra-rouge thermique (TIR) permettent une caractérisation du profil atmosphérique avec typiquement une à trois informations entre la troposphère libre et la stratosphère (TES, CrIS, IASI). Actuellement des travaux sont en cours visant à combiner le signal dans l'infra-rouge thermique (TIR) avec celui du SWIR afin d'obtenir deux informations verticales indépendantes et d'améliorer la sensibilité aux basses couches, proches des sources (thèse en cours au LMD avec C. Crevoisier *Exploitation conjointe des observations dans l'infrarouge et le proche infrarouge pour l'étude de la distribution du méthane dans l'atmosphère* . Un produit de colonnes troposphériques partielles à partir des mesures GOSAT combinant le SWIR et le TIR de TANSO-FTS a été développé et est disponible dans une version 2 (https://www.eorc.jaxa.jp/GOSAT/GPCG/index_GOSAT.html).

Une mission spatiale projetée d'utiliser la technique active du LIDAR depuis l'espace (MERLIN, *Ehret et al. (2017)*), lancement prévu en 2027), pouvant offrir différentes solutions aux limites rencontrées par l'observation passive (mesure aux hautes latitudes, même en hiver, de nuit, sources de biais sur les

estimations de données de XCH₄ limitées grâce à une moindre sensibilité à des interférents tels que les aérosols, moindre sensibilité aux surfaces terrestres complexes ou accidentées) (Bousquet *et al.*, 2018).

2.2 Limitations liées à l'assimilation de données satellitaires

Un des points qui n'a pas encore été abordé est la capacité des modèles à représenter le profil vertical de méthane, condition critique lors de l'assimilation de données satellitaires (colonne atmosphérique intégrée). En effet la plupart des modèles simulent trop de méthane dans la stratosphère par rapport aux mesures [22] et des biais existent à la fois dans la colonne troposphérique et dans la colonne stratosphérique [29], avec une dépendance du biais en latitude pour la partie troposphérique pour la plupart des modèles. Ces études avaient été faites avec différents modèles dont LMDz, mais dans une version 19 niveaux de LMDZ. L'augmentation de la résolution verticale a sans doute amélioré la représentation du gradient vertical dans le modèle, cependant la sur-estimation du méthane dans la stratosphère existe toujours dans la version 39 niveau de LMDZ. Les comparaisons des profils verticaux de LMDZ par rapport à des mesures in-situ de Aircore le confirment (thèse de J. Thanwerdas).

L'assimilation de colonnes atmosphériques totales dans un système d'inversion nécessite une modélisation correcte du profil vertical de méthane par le modèle pour ne pas corriger des flux à la surface en réponse à une surestimation de la colonne stratosphérique. Dans les inversions assimilant les colonnes atmosphériques de GOSAT, nous ne faisons pas de correction latitudinale de biais comme d'autres systèmes le font (tels que TM5-SRON). De nouvelles études seraient nécessaires pour évaluer la nécessité et l'apport d'une telle correction. Différentes études ont testé l'assimilation des premiers produits TROPOMI (Qu *et al.*, 2021) et des produits officiels et scientifiques du SRON (projets VERIFY, CAMS 73). Pour le moment, du fait des erreurs systématiques et des biais dans les produits TROPOMI, les résultats d'inversions assimilant TROPOMI à l'échelle planétaire ne montrent pas d'amélioration par rapport à l'utilisation de GOSAT. À l'heure actuelle, ces systèmes d'inversions sont peu nombreux, et ne contribuent pas (encore) aux activités internationales telles que le Global Methane Budget ou RECCAP2. Malgré les limitations actuelles des produits TROPOMI, il est important d'intégrer cette composante dans notre système, afin d'avoir des résultats préliminaires d'assimilation, et d'être en mesure d'utiliser des versions ultérieures corrigées des produits TROPOMI qui, avec sa résolution plus fine, fournit plus de données que GOSAT.

2.3 Actions proposées

L'objectif de cet axe est donc de tirer parti de cet ensemble de données satellitaires pour optimiser les émissions mondiales de méthane. Il s'agit de développer des outils de traitement numérique des nouvelles (et futures) données satellitaires afin d'utiliser ces données dans un système d'inversion atmosphérique planétaire permettant d'estimer les sources et puits de méthane.

A court terme (1-2 ans), les actions envisagées porteront sur :

1. **TROPOMI** : adapter le système pour assimiler les données TROPOMI Sentinel 5P avec le modèle planétaire LMDz, déterminer les nécessités de filtrage et d'agrégation de ces données pour le système CIF-LMDz, tester les différents produits. Valider avec des données indépendantes et comparer à une inversion utilisant GOSAT. Cette partie sera financée dans le cadre du projet RECCAP2-A de l'ESA pour lequel un volet spécifique à TROPOMI a été ajouté.
2. **GOSAT – Colonnes troposphériques partielles** : tester ce produit à l'échelle mondiale avec LMDZ (simulations directes puis inverses) puis comparer avec une inversion utilisant les colonnes totales de GOSAT. Ce travail est envisagé dans le cadre d'une thèse co-financée par le CNES, débutant en décembre 2022/janvier 2023 (N. Montenegro).
3. **la complémentarité des multi-données d'observations de surface et des mesures satellitaires de CH₄** : assimiler les données satellitaires de GOSAT dans les flux de données des inversions en même temps que les observations de surface de CH₄ voire de son signal isotopique. (cadre de la thèse de A. Martinez)

A moyen et long termes (2-3 ans et plus), ces actions seront complétées par des études sur :

4. **IASI (SWIR-TIR)** : renforcer les collaborations avec le LMD dans le cadre de l'utilisation des données IASI. Peu adaptées à l'inversion atmosphérique des émissions car sensibles à la moyenne-haute troposphère, ces données offrent néanmoins plus de 15 ans de mesures et sont cruciales pour discuter les tendances du méthane dans l'atmosphère. Développer des études basées sur les premières données du produit SWIR-TIR du LMD
5. **MERLIN** : développer des études basées sur des pseudo-données MERLIN afin d'adapter notre système à ces futures données et être prêts à utiliser les premières données suite au lancement prévu en 2027.

3 Comment améliorer la résolution spatiale des estimations *a posteriori* des sources de méthane par les méthodes inverses ?

3.1 Résolution spatiale actuelle et limitations à la montée en résolution

La résolution spatiale utilisée dans les inversions avec LMDz est actuellement relativement grossière (96x96 correspond à 1,8° en latitude et 3,75° en longitude) et limite les estimations à l'échelle nationale pour l'ensemble des pays comme nous aimerions le faire dans le cadre du suivi des émissions anthropiques de méthane et de la vérification de l'application de mesures de réduction et de trajectoire des émissions. Dans l'article [55], des estimations nationales ne sont données que pour de grands pays ou pour une combinaison de pays (Europe). Une étude récente propose des estimations nationales pour l'ensemble des pays à partir d'une inversion à l'échelle mondiale (*Worden et al., 2022*) assimilant les colonnes totales de GOSAT mais les auteurs estiment que leur système est capable d'estimer les émissions de 57 pays seulement. Des estimations à des résolutions plus fines sont possibles avec le modèle régional CHIMERE, mais seulement sur des régions données, et il faudrait appliquer l'inversion régionale dans plusieurs régions pour obtenir des estimations nationales pour tous les pays. De plus, ces estimations, issues d'inversions régionales indépendantes, n'assurent pas forcément une cohérence de la quantité de méthane et des émissions déduites à l'échelle mondiale et dépendent d'une simulation planétaire en amont pour les conditions aux bords latérales et au toit. La prise en compte de la chimie du méthane est souvent négligée à l'échelle régionale, mais elle doit forcément rentrer en compte dans les inversions à l'échelle mondiale et la question des variations des puits chimiques de méthane reste entière.

Par conséquent, dans l'objectif de déterminer les émissions nationales de méthane de façon cohérente à l'échelle planétaire, il est nécessaire d'envisager une descente en résolution pour les inversions planétaires. Des études régionales utilisent une version zoomée de LMDz sur une zone donnée, au détriment du reste du monde qui est décrit de façon plus grossière. Ces versions zoomées ne concernent qu'une partie du monde à la fois et sont particulièrement gourmandes en temps de calculs du fait de la forte résolution spatiale associée à un plus petit pas de temps sur la région en question. Par exemple, une simulation directe de 1 mois en 96 x 96 mailles prend aujourd'hui environ 1 min sur la grappe de calcul du LSCE, contre environ 30 min dans une version zoomée sur le Moyen Orient / Méditerranée en 144 x 146 mailles. Dans ce contexte, une inversion sur 10 ans, nécessitant 10-20 itérations n'est actuellement pas envisageable. Il faut donc répondre à cette limitation technique.

3.2 Actions proposées

Les possibilités pour réduire les temps de calculs et augmenter la résolution spatiale sont les suivantes (du plus court terme au plus long terme) :

1. **la parallélisation "physique" des périodes d'inversions** telle que mise en place pour le CO₂ par *Chevallier (2013)* devrait permettre de lancer en parallèle des périodes d'inversions dépendantes les unes des autres afin de « découper » de longues inversions par périodes de 2-3 ans. Ce développement vient d'être achevé dans le CIF, permettant de gagner en temps de calcul et donc de

pouvoir répondre à la demande croissante de mise à jour d'inversions sur de longues périodes de temps comme pour le Global Methane Budget et descendre en résolution spatiale.

2. **un passage à la résolution 144x144** est possible et permettra d'atteindre 1,25° en latitude et 2,5° en longitude. Cette légère montée en résolution devrait permettre de pouvoir mieux représenter certains pays. Le temps de calcul étant un frein, une ré-évaluation de l'ensemble des routines et en particulier celles gérant les entrées/sorties est en cours afin de réduire le temps de calcul du code. Des tests seront nécessaires pour évaluer les temps de calcul nécessaires à une simulation directe et inverse. Il faudra ensuite adapter les flux *a priori* à cette résolution. Les inventaires d'émissions sont généralement disponibles à une résolution plus fine, donc cet aspect ne devrait pas poser de problème. Par contre il s'agira de modéliser les statistiques des erreurs sur ces flux pour définir la matrice B. De plus, il faudra ré-évaluer les erreurs modèles-observations, la représentativité spatiale du modèle étant affectée par sa résolution.
3. **un couplage LMDz-Flexpart ou LMDZ-CHIMERE** pourrait permettre de réduire les erreurs de représentativité dans LMDZ en ciblant les mailles contenant de l'information (des données de surface in-situ). Dans le cas de CHIMERE, ce bénéfice serait apporté par une meilleure résolution et paramétrisation des processus eulériens sous-maille (non-hydrostaticité de CHIMERE). Dans le cas de Flexpart, on bénéficierait d'une meilleure résolution des processus météorologiques issus des réanalyses météorologiques)
4. **DYNAMICO** - dans la prochaine version de LMDZ, DYNAMICO, la formulation de l'advection horizontale et de la dynamique se fera sur une grille icosaédrique, tout en préservant ou en améliorant leurs qualités en matière de précision, de lois de conservation et de dispersion des ondes. Des possibilités de raffinement de la grille sera possible. Ceci pourrait être envisagé autour des sites de mesures par exemples, ou dans certaines régions d'intérêt. Actuellement, l'utilisation de DYNAMICO en version débranchée pour le transport des traceurs est en cours de développement. Évidemment une réflexion et une adaptation de l'ensemble des éléments en entrée de l'inversion pour le méthane seront nécessaires.

4 Comment améliorer les flux *a priori* et la quantification de leurs incertitudes ?

Actuellement dans le système d'inversion du LSCE, l'incertitude sur les flux à la surface est fixée à 100% du maximum de la valeur des émissions du point de grille et de ses huit voisins, permettant un déplacement des émissions dans le cas d'une mauvaise distribution spatiale *a priori*. Cela pourrait suffire mais l'expérience montre que les résultats des inversions atmosphériques dépendent de la distribution spatio-temporelle des flux d'émissions *a priori* en particulier dans les régions qui sont peu contraintes par manque d'observations. Il est donc important d'avoir une distribution spatiale robuste des émissions de l'ensemble des flux *a priori*.

4.1 Comment améliorer les flux des émissions anthropiques *a priori* et développer des méthodes pour mieux quantifier leur incertitudes ?

4.1.1 Quels flux *a priori* des émissions anthropiques sont utilisés actuellement ?

Actuellement la plupart des systèmes d'inversions, dont celui du LSCE, utilisent les cartes d'émissions de méthane produit par le JRC : Emissions Database for Atmospheric Research, EDGAR (<https://edgar.jrc.ec.europa.eu>). Différentes versions ont été produites au cours des années, actuellement la version 6 fournit des cartes annuelles des émissions entre 1970 et 2018 et mensuelles depuis 2020 pour 25 secteurs d'émissions anthropiques à la résolution de 0.1° à l'échelle mondiale. Les mises à jour sont relativement régulière mais malheureusement il existe toujours un écart de plusieurs années entre la dernière année disponible et l'année de publication de la base de données. Pour pallier cette limite dans le cas de simulations allant au delà de la dernière année disponible, soit nous utilisons les mêmes émissions

que la dernière année, soit nous extrapolons les secteurs de production d'énergie fossile avec les statistiques de production issus de BP (www.bp.com) et le secteur agricole avec les données statistiques de la FAO (<https://www.fao.org/faostat/fr/>). Les autres secteurs (essentiellement les déchets) sont projetés avec une évolution linéaire par rapport aux dernières années. L'atout de cette base de données est sa distribution mondiale et la même méthodologie utilisée pour tous les pays. La dernière version d'EDGAR semble toujours surestimer les émissions en Chine liées à la production de charbon (comme noté dans plusieurs articles dont la synthèse [24] pour des versions antérieures (v4.3.2)). La spatialisation des émissions, en particulier des émissions du secteur du pétrole et du gaz, semble complexe. Ainsi, un changement de cartes d'activité entre 2010 et 2011 entraîne un saut abrupte d'environ 4 Tg CH₄ yr⁻¹ dans la région boréale (soit ~ 20% des émissions de la région) qui n'est pas corrigé par les inversions (Fig. IV.3). L'essentiel de ce saut est lié à une modification de la carte d'activités utilisée dans EDGAR, en particulier aux USA, transférant des émissions de l'Alaska vers le nord ouest des Etats-Unis. Dans une moindre mesure, la distribution spatiale a été aussi modifiée en Sibérie.

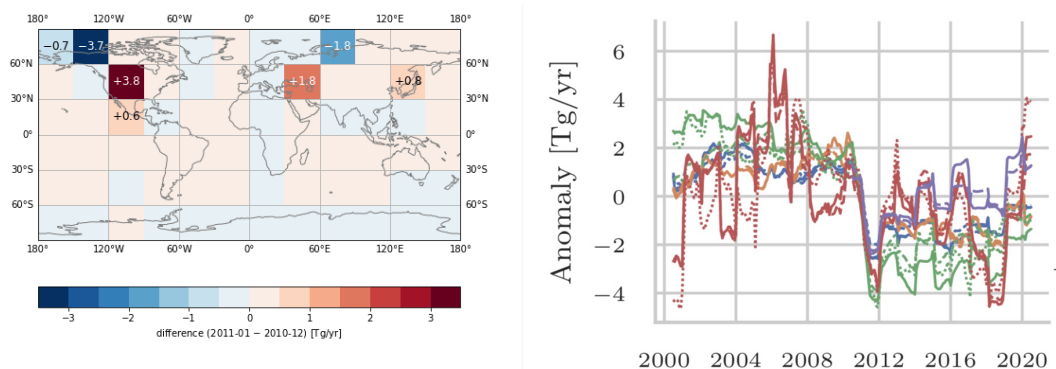


FIGURE IV.3 – Gauche : Différence des émissions des secteurs pétrole et gaz dans EDGARv6 entre 2010 et 2011, par boîte de 30°. Droite : Anomalie des émissions dans la région boréale (60° N-90° N) calculée par les inversions pour la prochaine synthèse GMB utilisant EDGARv6 en *a priori*.

Il existe des incertitudes à la fois sur l'amplitude et la localisation des émissions anthropiques. Les systèmes d'inversions atmosphériques sont censés corriger ces deux aspects, à condition que 1) les incertitudes soient bien définies dans la matrice B et 2) suffisamment de données soient disponibles pour contraindre le système et apporter de l'information. Quelle base de données utilisées pour les émissions anthropiques *a priori*? Comment mieux définir les incertitudes?

4.1.2 Actions proposées

A très court terme, la carte des émissions liée aux pétrole et gaz doit être corrigée pour les inversions de la prochaine synthèse du GMB :

- soit en corrigeant EDGAR avec un autre inventaire tel que GAINS. L'idée est de corriger les pixels qui ont un plus gros saut dans EDGAR (entre 2011 et 2010) que dans GAINS (entre 2005-2009 et 2010-2014), en appliquant la correction en 2010 ou 2011 selon les différences entre EDGAR et GAINS. Pour l'Alaska, on corrige toute la période 2000-2010.
- soit en utilisant directement la carte des émissions de la dernière version de GAINS qui fournit des données jusque 2020 (récemment mis à disposition pour la nouvelle synthèse de GMB).

A court terme, il est nécessaire d'évaluer l'impact du choix des émissions anthropiques sur les résultats des simulations directes d'une part puis des inversions. Il s'agira donc de :

- Faire des simulations directes avec respectivement, EDGAR (v6 corrigée), la dernière version de GAINS, voire les cartes proposées par *Scarpelli et al. (2020)* et estimer les incertitudes aux stations

et sur les colonnes satellitaires

- Utiliser ces résultats pour ré-évaluer les incertitudes sur les émissions anthropiques pour définir la matrice B (méthodologie similaire à [47])
- Évaluer l'impact du choix des émissions anthropiques sur les résultats d'inversions en termes d'amplitude et de distribution spatiale des émissions optimisées.

A moyen terme, les actions envisagées sont :

1. **proposer une collaboration aux collègues développant EDGAR** pour analyser leurs cartes d'émissions pour le méthane et leur remonter des défauts tels que ceux mentionnés précédemment.
2. **développer une méthodologie pour intégrer les estimations issus d'inversion locale avec TROPOMI** à l'échelle des bassins d'exploitation ou des sites (Kayros, *Lauvaux et al.* (2022)), dans les inventaires d'émissions ou/et pour la mise à jour pour les années les plus récentes non couvertes par les inventaires.

4.2 Comment améliorer les flux des émissions naturelles *a priori* ?

4.2.1 État de l'art sur les émissions naturelles et leur utilisation dans les systèmes inverses

L'estimation de la composante anthropique des émissions de méthane et de sa tendance de l'échelle planétaire à l'échelle régionale est l'élément clé pour évaluer les stratégies d'atténuation. Cependant, la connaissance incomplète des émissions de méthane, en particulier naturelles, complique la comparaison des émissions anthropiques estimées par des approches descendantes – qui résolvent principalement les sources totales (anthropiques + naturelles) – avec celles provenant des approches d'inventaire ou des rapports nationaux. Jusqu'à présent, plus de 80 % des sources naturelles de méthane proviennent des systèmes d'eaux douces (zones humides, tourbières, étangs, lacs, rivières,...) comme l'ont estimé des études montantes; elles représentent également la plus grande incertitude dans les sources naturelles de CH₄ [42].

La définition des zones humides reste problématique lorsqu'il s'agit de les détecter : toutes les surfaces inondées ne sont pas des zones humides, toutes les zones humides ne sont pas inondées mais peuvent être des sols saturés en eau, et certaines zones humides sont couvertes par la végétation et ne sont pas détectées par les capteurs optiques ou proche infra-rouge. De plus, les produits satellitaires sur l'étendue des zones humides souffrent de diverses déficiences des informations de télédétection (par exemple, le manque d'échantillonnage temporel, le manque de résolution spatiale, les perturbations atmosphériques, la topographie et la végétation; *Melton et al.*, 2013b). Enfin, les ensembles de données sur de longues périodes nécessitent l'utilisation d'une série de satellites utilisant différents instruments et à différentes résolutions, ce qui pourrait entraîner des artefacts dans les changements spatio-temporels de l'étendue des zones humides.

Pour les lacs, différents produits décrivant la distribution des lacs par taille existent (*Downing et al.*, 2006; *Verpoorter et al.*, 2014; *Lehner and Döll*, 2004; *Pekel et al.*, 2016; *Messager et al.*, 2016) mais ils diffèrent largement en termes de taille minimale des lacs et des zones pour chaque classe de taille.

De nombreux modèles des surfaces continentales (LSM, « Land surface Model ») représentent de manière dynamique les émissions des zones humides, mais une grande incertitude due à la diversité des processus représentés dans les modèles existe (*Melton et al.*, 2013b). Certains, comme le LSM IPSL-ORCHIDEE, ont également développé une composante tourbière pour les régions tempérées et boréales (*Qiu et al.*, 2019). Cependant, aucun n'intègre des schémas simulant les émissions de méthane provenant d'autres masses d'eaux douces. Les estimations des émissions des zones humides dans le GMB reposent sur un seul produit de surface des zones humides (Wetland Area Dynamics for Methane Modelling, WAD2M; *Zhang et al.*, 2021) appliqué à différents modèles de surface terrestre et ne montrant pratiquement aucune variation temporelle, contrairement aux études basées sur des observations [28].

Les différents produits de distribution en taille des lacs ont été utilisées pour estimer les émissions

de méthane à l'échelle mondiale en mettant à l'échelle les mesures locales (par exemple *Bastviken et al.*, 2011). Jusqu'à récemment, seules deux études étaient spatialement et temporellement explicites (*Tan and Zhuang*, 2015; *Matthews et al.*, 2020) mais elles ne couvrent que les régions nordiques. Dans le cadre du projet international RECCAP2, des estimations par régions et des cartes ont été développées pour les lacs, les réservoirs, et les rivières. Très récemment, une carte d'émissions par les réservoirs a été publiée (*Johnson et al.*, 2021), les mêmes auteurs sont en train de publier une estimation pour les lacs (lacs supérieurs à 0,002km²).

Alors qu'il existe des cartes d'émissions à l'échelle mondiale des zones humides, aucune n'était disponible pour les autres systèmes d'eaux douces jusqu'en 2020. C'est pourquoi ces flux naturels sont absents de l'ensemble des émissions *a priori* dans les approches descendantes [42]. Ces émissions de méthane biogénique étant sensibles en particulier à la couverture en eau, à la végétation, et à la température, elles présentent de fortes variations saisonnière et inter-annuelles [15]. **Afin de compléter l'ensemble des flux *a priori* dans les approches descendantes, il est nécessaire d'avoir à disposition une cartographie mensuelle et dynamique de ces différents systèmes d'eaux douces.**

4.2.2 Quelles nouvelles données pour déterminer et différencier les surfaces en eaux ?

Les distributions imprécises des surfaces saturées en eau et des surfaces inondées, le manque de cohérence en termes de distribution des surfaces et de définitions entre ces différents systèmes d'eaux douces induisent une grande incertitude et un probable double comptage (*Thornton et al.*, 2016). Par exemple, les petits étangs des régions boréales sont attribués aux zones humides dans certains inventaires et à d'autres systèmes d'eaux dans d'autres ; les tourbières et les zones humides peuvent être mélangées ou traitées séparément ; un marécage doit être distingué d'un marais ou d'une tourbière inondée car l'intensité du flux varie entre eux.

Un nouvel ensemble de données sur les zones inondées (Global Inundation Estimate from Multiple Satellites - Version 2, GIEMS-2) basé sur un capteur micro-ondes (*Prigent et al.*, 2020) fournit un ensemble de données cohérent sur une période de 30 ans (jusqu'en 2020), avec une couverture précise des zones inondées végétalisées. Il a été développé par le LERMA (C. Prigent et C. Jimenez) dans le but d'être utilisé pour estimer les surfaces des zones humides. Ce produit peut être combiné avec la couverture terrestre (types de végétation/sol) et d'autres distributions de plans d'eau (lacs, réservoirs, rivières, étangs et tourbières) afin de construire des cartes mensuelles et dynamique sur l'ensemble de la période de données (1995-2020) des surfaces des systèmes d'eaux douces.

4.2.3 Actions proposées

L'objectif est d'obtenir des distributions cohérentes des surfaces des zones humides, des tourbières, des lacs, des rivières, des réservoirs, associées aux critères de végétation et aux types de sol (fortement liés à la teneur en carbone du sol) à partir de GIEMS-2. De telles cartes fourniront un forçage cohérent pour les modèles de surface continentale comme ORCHIDEE afin de simuler les émissions de méthane de ces différents écosystèmes, et seront utilisées dans le cadre du développement d'un modèle simple d'émissions de méthane utilisant des données satellitaires.

Ces travaux se feront en collaboration avec le LERMA (C. Prigent, C. Jimenez) et les collègues travaillant sur ORCHIDEE dans l'équipe MOSAIC (E. Salmon, P. Peylin, C. Ottlé) et à l'ENS (B. Guenet).

A court terme (1-3 ans), les actions envisagées se feront dans le cadre du projet ANR AMB-M³, du projet CAMS2 52a et de la thèse de Juliette Bernard, et viseront à :

1. **développer des cartes de distribution dynamiques et cohérentes des différents systèmes d'eaux douces à partir de GIEMS-2**, qui seront pertinentes pour les émissions de méthane en incluant des informations sur les types de végétation et de sol sur la période 1992-2020. La distribution des masses d'eau de la nouvelle version de GLWD (*Lehner and Döll*, 2004), une distribution des tourbières de (*Xu et al.*, 2018) seront utilisées pour ajouter des informations sur les types et les

contributions relatives des masses d'eau dans le pixel (zones humides, tourbières, lacs – y compris la taille et la profondeur, rivières). D'autres informations sur les types de végétation et le contenu en carbone seront ajoutées à l'ensemble des données pour distinguer les zones humides des tourbières et des lacs.

2. **Développer un modèle simple basé sur des indicateurs dont des données satellitaires sont disponibles, pour estimer les émissions de méthane par les zones humides.** Un tel modèle s'affranchira de l'utilisation de simulation de modèles de surfaces continentale et pourra utiliser les cartes dynamiques obtenues à partir de GIEMS-2. Ce modèle devrait inclure la spécificité des tourbières.
3. **Reprendre les différents développements faits précédemment sur les zones humides et les tourbières (boréales et tropicales)** dans différentes versions d'ORCHIDEE (ORCHIDEE-MICT-PEAT-CH4) et les intégrer dans la branche principale du modèle (couplée au modèle du système Terre).
4. **Comparer les résultats des simulations ORCHIDEE utilisant des modèles de production de méthane de complexités différentes** (avec E. Salmon), afin d'estimer le niveau de complexité minimales pour reproduire les variations saisonnières et inter-annuelles observées aux sites.
5. **Évaluer l'impact du choix des émissions naturelles sur les résultats d'inversions** en termes d'amplitude et de distribution spatiale des émissions optimisées. Les nouvelles cartes d'émissions de méthane (par les zones humides et les tourbières) issus du modèle simple et de ORCHIDEE seront incluses dans l'ensemble des flux *a priori* des inversions avec LMDz. Les résultats des inversions seront comparés à ceux des inversions faites avec les cartes d'émissions de méthane basées WAD2M.
6. **Développer un système d'assimilation des mesures atmosphériques de méthane afin de contraindre les émissions de méthane par les zones humides.** L'idée est d'optimiser des paramètres de l'équation simple du modèle de production de méthane produit en (2) au lieu d'optimiser directement les émissions, comme dans *Bacour et al. (2022)*.

Ces intégrations et développements dans la version de référence d'ORCHIDEE permettront de faire des simulations sur le passé récent à partir de la carte de WAD2M ou des cartes dynamiques obtenues à partir de GIEMS-2. Des simulations passées pour la période pré-industrielle pourront aussi être réalisées suite aux développements de cartes de zones humides pour cette époque (Etienne Fluet-Chouinard), permettant d'estimer l'impact des activités humaines sur l'utilisation des sols et en termes de méthane.

Dans cette dynamique de modélisation des émissions de méthane des systèmes d'eaux douces, une représentation des lacs (en termes de bilan énergétique) a été récemment développée dans le LSM IPSL-ORCHIDEE (*Bernus and Otlé, 2022*), basée sur les distributions HydroLAKES (*Messenger et al., 2016*). Des développements sont aussi en cours sur la représentation des rivières et la matière organique dissoute dans ORCHIDEE ce qui permettra de compléter la capacité du modèle de surface terrestre IPSL à représenter pleinement le cycle du méthane à travers les différents systèmes d'eaux continentales (y compris les lacs et les rivières).

A moyen terme (3-5 ans), d'autres développements sont envisagés pour estimer les émissions de méthane par :

7. **les lacs** – dans le cadre du projet GREENFeedback (Horizon CL5- 2021), la modélisation des émissions de méthane par les lacs dans ORCHIDEE sera développée
8. **les rivières**, suite au développement de la version ORCHIDEE-LEAK et à son intégration dans la branche principale du modèle.

Ces travaux seront l'occasion de développer des collaborations les collègues de Université Libre de Bruxelles (Pierre Regnier) qui visent aussi à développer des modèles pour estimer pour sources des lacs et des rivières.

Ces développements pourront à terme être intégrés dans le modèle couplé du système terrestre LMDZ-ORCHIDEE de l'IPSL. L'intégration du schéma d'émissions de méthane provenant des zones humides,

des tourbières et des lacs dans l'ESM d'IPSL permettra des études entièrement couplées sur l'impact du changement climatique sur ces émissions naturelles de méthane. Cela permettra de compléter la compréhension de l'impact du changement climatique sur les émissions naturelles en fonction des trajectoires socio-économiques et d'inclure la rétroaction positive de ces émissions sensibles au climat.

5 Comment améliorer la prescription des puits de méthane et en particulier leurs variations spatio-temporelles et développer une méthodologie pour contraindre le puits par OH ?

5.1 Contexte – Quels champs d'oxydants existent et quels sont leur défauts ?

Dans le cadre de l'inversion des flux de méthane à la surface, les radicaux responsables des puits atmosphérique de méthane sont généralement prescrits. De fortes incertitudes existent toujours sur la quantité moyenne de ces radicaux, aussi bien pour OH (responsable de 90% du puits atmosphérique de méthane) que les autres, en particulier le chlore, discuté précédemment dans la section 3.4 du chapitre 3. Les champs de radicaux OH sont issus de modèles de chimie-climat ou de chimie-transport incluant un schéma chimique relativement complexe (voir Fig. Intro.1) et généralement souffrant de biais plus ou moins connus. Outre la quantité moyenne de radicaux dans l'atmosphère, leurs variations spatio-temporelles sont importantes car elles se transfèrent en termes de flux à la surface lors des inversions atmosphériques. L'apparente faible incertitude (5%) sur les émissions totales à l'échelle mondiale à travers l'ensemble des inversions du dernier GMB [42] est liée à l'utilisation d'un unique champ d'OH dans la plupart des systèmes d'inversions, omettant de plus les variations inter-annuelles de OH (voir Sect. 3.1).

De nombreuses études récentes visent à comprendre la variabilité d'OH et le rôle des différents paramètres (précurseurs dans la chimie, météorologie), comme par exemple [37, 40], *Nicely et al. (2017, 2020)*; *Anderson et al. (2021)*. Cependant il est nécessaire d'aller plus loin et de développer des méthodes permettant d'estimer la distribution spatio-temporelle d'OH pendant les périodes récentes. Dans cet objectif, différentes études ont tenté d'estimer les variations temporelles d'OH à partir du méthylchloroforme (MCF) en moyenne planétaire avec un modèle en boîte (*Patra et al., 2021a*) ou avec des inversions 3D (*Naus et al., 2021*), à partir de données satellitaires comme le formaldéhyde (*Wolfe et al., 2019*) ou avec des méthodes numériques de l'Intelligence Artificielle (*Anderson et al., 2022*).

Les incertitudes sur la quantité, la distribution spatiale et les variations d'OH restent importantes et le resteront sans doute. Néanmoins, il est important d'avoir en main plusieurs jeux de données issus de différentes méthodologies afin d'estimer l'impact de ces incertitudes sur les émissions dérivées des inversions atmosphériques.

Il reste aussi des incertitudes sur les autres oxydants et en particulier dans la stratosphère, même si la contribution à la destruction de méthane est moindre.

5.2 Actions proposées

Dans la suite des travaux de Y. Zhao, il faudra poursuivre nos efforts pour contribuer à améliorer les champs 4D d'OH utilisés dans les inversions.

Les actions envisagées à court terme sont les suivantes :

1. **développer une méthodologie visant à corriger les biais des champs d'OH issus des modèles de chimie-climat ou chimie-transport** à partir d'observations des précurseurs d'OH et de paramètres météorologiques (pour les modèles de chimie-climat qui ne sont pas contraints par des ré-analyses). Une étude en cours montre qu'il est possible de :
 - corriger les biais de certains précurseurs de OH (exemple la distribution N/S de CO)
 - corriger le ratio N/S de OH et s'approcher d'un rapport de 1 comme dans les estimations faites à partir du MCF

- corriger la quantité moyenne de OH dans l’atmosphère et se rapprocher de la valeur moyenne estimée par les estimations faites à partir du MCF
2. **déterminer en temps quasi-réel puis ré-évaluer les champs de OH produits par le modèle de chimie-transport au schéma chimique complet, LMDz-INCA (Collab. Didier Hauglustaine)**
- exemple : la période marquée par le COVID a eu un impact sur les émissions des précurseurs de OH comme le CO ou le NOx, en réponse à une utilisation moindre des énergies fossiles. L’utilisation de cartes d’émissions de CO et de NOx basé sur les données en temps quasi-réel du Carbon Monitor (<https://carbonmonitor.org>) ont permis de simuler les champs de OH et de trouver une diminution de 2% de la quantité moyenne de OH entre 2019 et 2020.
 - il s’agira de valider les concentrations simulées des précurseurs avec des observations satellitaires pour asseoir la validité des champs d’OH obtenus

A moyen et long termes, il faudra reprendre une étude poussée afin de **développer dans le CIF une méthodologie visant à assimiler des paramètres pour contraindre OH** via des paramétrisations ou des sensibilités pré-calculées, ou bien un schéma chimique de l’ozone simplifié.

6 Synthèse

Le cycle biogéochimique du méthane, et donc la quantification de ses sources et puits, restent fortement incertains comme discutés précédemment. Alors que la nécessité de réduire les émissions de gaz à effet de serre et en particulier de méthane est urgente, les outils actuels, et en particulier ceux de l’inversion atmosphérique sont limités pour détecter certains signaux atmosphérique, relativement faible en comparaison à notre niveau d’incertitudes. De nombreuses questions (page 57 du chapitre IV) cherchent toujours des réponses non seulement eu sein de la communauté scientifique mais aussi pour la société et les décideurs politiques. Il est donc primordial d’améliorer nos outils et nos méthodologies afin de pouvoir répondre plus précisément à ces questions.

Dans ce contexte, je souhaite m’attacher à développer des méthodologies pour améliorer la capacité du système inverse CIF-LMDZ à déterminer les sources et puits de méthane et en particulier à pouvoir détecter au mieux les secteurs et les régions sources qui contribuent aux variations des concentrations atmosphériques du méthane, et à déterminer les émissions de méthane à l’échelle quasi nationale. Ces résultats contribueront d’une part à nourrir les synthèses du bilan mondial du méthane (GMB) et à discuter les causes des variations du méthane atmosphérique et d’autre part à servir au Bilan Mondial (« Global Stock Take » des Accords de Paris, outil de suivi de l’efficacité des politiques de réduction des émissions de gaz à effet de serre et des politiques mises en oeuvre. Pour cela, à court-moyen terme, l’objectif est de pouvoir fournir annuellement des estimations nationales des émissions de méthane en temps quasi-réel (données préliminaires année N-1 fournies en année N).

Pour cela différentes briques de construction du système d’inversion CIF-LMDz nécessitent des améliorations – directement ou indirectement. Les différents axes de recherche (Fig. IV.4) détaillés précédemment apporteront des éléments de réponses aux différentes questions scientifiques posées.

Les actions engagées en collaboration avec l’équipe MOSAIC sur le développement du modèle ORCHIDEE permettront d’étudier la rétroaction du climat sur les émissions de méthane par les sources naturelles. Coupler dans un modèle du système Terre comme celui de l’IPSL permettra aussi de déployer des études sur les liens chimie/climat et en particulier les liens entre l’ozone et le méthane.

Vers une meilleure estimation des sources et puits de méthane

Cinq axes de travail – développements envisagés de l'actuel vers le moyen/long terme

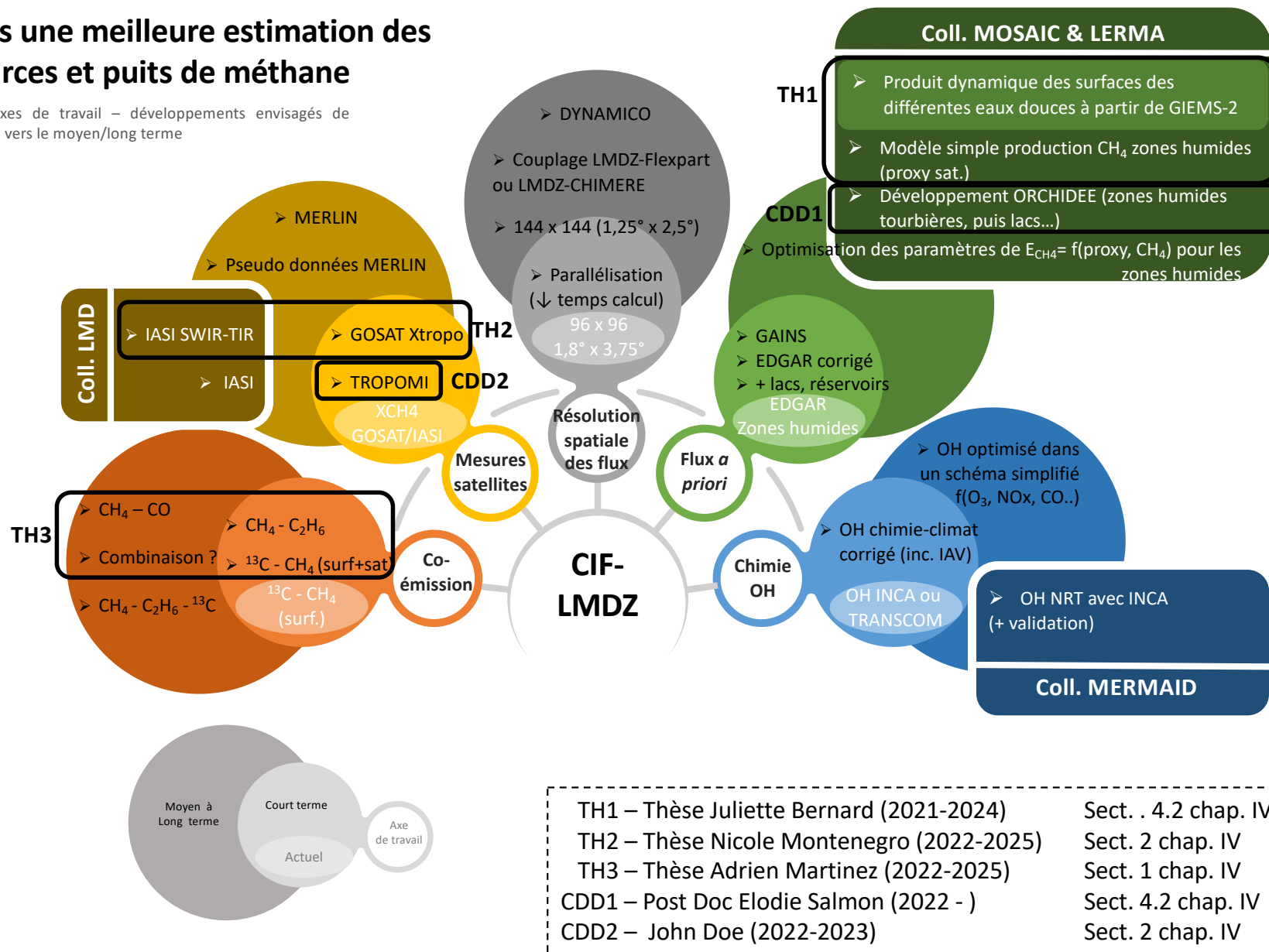


FIGURE IV.4 – Schéma synthétisant mon projet scientifique en cinq axes de travail autour du CIF-LMDZ, avec les collaborations envisagées. Les thèses en cours ou débutant en 2022 sont intégrés dans le schéma. Ce schéma reprend les éléments des court et moyen termes illustrés sur la Fig. IV.2, correspondant à des éléments de projets en cours ou financés.



Bibliographie

La bibliographie indiquée ici correspond uniquement aux références indiquées dans le texte par le nom du premier auteur et la date. Les références indiquées sous la forme [n] renvoient à la liste des publications donnée dans le curriculum vitæ (p. 7) et suivantes.

- Anderson, D. C., B. N. Duncan, A. M. Fiore, C. B. Baublitz, M. B. Follette-Cook, J. M. Nicely, and G. M. Wolfe, Spatial and temporal variability in the hydroxyl (oh) radical : understanding the role of large-scale climate features and their influence on oh through its dynamical and photochemical drivers, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(8), 6481–6508, doi :10.5194/acp-21-6481-2021, 2021.
- Anderson, D. C., M. B. Follette-Cook, S. A. Strode, J. M. Nicely, J. Liu, P. D. Ivatt, and B. N. Duncan, A machine learning methodology for the generation of a parameterization of the hydroxyl radical : a tool to improve computational-efficiency in chemistry climate models, *Geoscientific Model Development Discussions*, 2022, 1–24, doi :10.5194/gmd-2022-44, 2022.
- Aydin, M., K. R. Verhulst, E. S. Saltzman, M. O. Battle, S. A. Montzka, D. R. Blake, Q. Tang, and M. J. Prather, Recent decreases in fossil-fuel emissions of ethane and methane derived from firn air, *Nature*, 476(7359), 198–201, doi :doi:10.1038/nature10352, 2011.
- Bacour, C., N. MacBean, F. Chevallier, S. Léonard, E. N. Koffi, and P. Peylin, Assimilation of multiple different datasets results in large differences in regional to global-scale nee and gpp budgets simulated by a terrestrial biosphere model, *Biogeosciences Discussions*, 2022, 1–42, doi :10.5194/bg-2022-109, 2022.
- Bader, W., et al., The recent increase of atmospheric methane from 10 years of ground-based NDACC FTIR observations since 2005, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(3), 2255–2277, doi :10.5194/acp-17-2255-2017, publisher : Copernicus GmbH, 2017.
- Bastviken, D., L. J. Tranvik, J. A. Downing, P. M. Crill, and A. Enrich-Prast, Freshwater Methane Emissions Offset the Continental Carbon Sink, *Science*, 331(6013), 50, doi :10.1126/science.1196808, 2011.
- Basu, S., et al., Estimating emissions of methane consistent with atmospheric measurements of methane and $\delta^{13}\text{C}$ of methane, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 2022, 1–38, doi :10.5194/acp-2022-317, 2022.
- Berchet, A., et al., Towards better error statistics for atmospheric inversions of methane surface fluxes, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(14), 7115–7132, doi :10.5194/acp-13-7115-2013, 2013.

- Bernus, A., and C. Ottlé, Modeling subgrid lake energy balance in orchidee terrestrial scheme using the flake lake model, *Geoscientific Model Development Discussions*, 2022, 1–36, doi :10.5194/gmd-2021-432, 2022.
- Blake, D. R., E. W. Mayer, S. C. Tyler, Y. Makide, D. C. Montague, and F. S. Rowland, Global Increase in Atmospheric Methane Concentrations between 1978 and 1980, *Geophysical Research Letters*, 9(4), 477–480, 1982.
- Bongrand, e. a., G., Rapport national d’inventaire pour la france au titre de la convention cadre des nations unies sur les changements climatiques et du protocole de kyoto, *Rapport ccnucc*, CITEPA, 2022.
- Bousquet, P., et al., Contribution of anthropogenic and natural sources to atmospheric methane variability, *Nature*, 443(7110), 439–443, doi :10.1038/nature05132, 2006.
- Bousquet, P., et al., Error Budget of the MEthane Remote Lidar missioN and Its Impact on the Uncertainties of the Global Methane Budget, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 123(20), 11,766–11,785, doi :10.1029/2018JD028907, _eprint : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1029/2018JD028907>, 2018.
- Chevallier, F., On the parallelization of atmospheric inversions of CO₂ surface fluxes within a variational framework, *Geoscientific Model Development*, 6(3), 783–790, doi :10.5194/gmd-6-783-2013, 2013.
- Cunnold, D. M., et al., In situ measurements of atmospheric methane at GAGE/AGAGE sites during 1985-2000 and resulting source inferences, *Journal of Geophysical Research - Atmospheres*, 107(D14), doi :10.1029/2001jd001226, 2002.
- Downing, J. A., et al., The global abundance and size distribution of lakes, ponds, and impoundments, *Limnology and Oceanography*, 51(5), 2388–2397, doi :10.4319/lo.2006.51.5.2388, _eprint : <https://aslopubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.4319/lo.2006.51.5.2388>, 2006.
- Ehret, G., et al., MERLIN : A French-German Space Lidar Mission Dedicated to Atmospheric Methane, *Remote Sensing*, 9(10), 2017.
- Francey, R. J., L. P. Steele, R. L. Langenfelds, and B. C. Pak, High precision long-term monitoring of radiatively active and related trace gases at surface sites and from aircraft in the southern hemisphere atmosphere, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 56(2), 279–285, 1999.
- Gonzalez Moguel, R., F. Vogel, S. Ars, H. Schaefer, J. C. Turnbull, and P. M. J. Douglas, Using carbon-14 and carbon-13 measurements for source attribution of atmospheric methane in the athabasca oil sands region, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 22(3), 2121–2133, doi :10.5194/acp-22-2121-2022, 2022.
- Hess, P., and J.-F. Lamarque, O₃ source attribution and its modulations by the arctic oscillation during the spring months, *J. Geophys. Res.*, 112(D11303), 2007.
- Houweling, S., P. Bergamaschi, F. Chevallier, M. Heimann, T. Kaminski, M. Krol, A. M. Michalak, and P. Patra, Global inverse modeling of CH₄ sources and sinks : an overview of methods, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(1), 235–256, doi :10.5194/acp-17-235-2017, 2017.
- Janssens-Maenhout, G., et al., EDGAR v4.3.2 Global Atlas of the three major Greenhouse Gas Emissions for the period 1970-2012, *Earth Syst. Sci. Data Discuss.*, 2019, 1–52, doi :10.5194/essd-2018-164, 2019.
- Johnson, M. S., E. Matthews, D. Bastviken, B. Deemer, J. Du, and V. Genovese, Spatiotemporal methane emission from global reservoirs, *Journal of Geophysical Research : Biogeosciences*, 126(8), e2021JG006305, doi :<https://doi.org/10.1029/2021JG006305>, e2021JG006305 2021JG006305, 2021.

- Jonson, J. E., D. Simpson, H. Fagerli, and S. Solberg, Can we explain the trends in European ozone levels ?, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(1), 51–66, doi :10.5194/acp-6-51-2006, 2006.
- Karion, A., C. Sweeney, P. Tans, and T. Newberger, AirCore : An Innovative Atmospheric Sampling System, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 27, 1839–1853, 2010.
- Lauvaux, T., C. Giron, M. Mazzolini, A. d’Aspremont, R. Duren, D. Cusworth, D. Shindell, and P. Ciais, Global assessment of oil and gas methane ultra-emitters, *Science*, 375(6580), 557–561, doi :10.1126/science.abj4351, 2022.
- Lehner, B., and P. Döll, Development and validation of a global database of lakes, reservoirs and wetlands, *Journal of Hydrology*, 296, 1–22, doi :10.1016/j.jhydrol.2004.03.028, 2004.
- Lin, M., et al., Revisiting the evidence of increasing springtime ozone mixing ratios in the free troposphere over western north america, *Geophysical Research Letters*, 42(20), 8719–8728, doi :https://doi.org/10.1002/2015GL065311, 2015.
- Logan, J., et al., Trends in the vertical distribution of ozone : A comparison of two analyses of ozonesonde data, *J. Geophys. Res.*, 104(D21), 26,373–26,399, 1999.
- Lorente, A., et al., Methane retrieved from tropomi : improvement of the data product and validation of the first 2 years of measurements, *Atmospheric Measurement Techniques*, 14(1), 665–684, doi : 10.5194/amt-14-665-2021, 2021.
- Marenco, A., et al., Measurement of ozone and water vapor by airbus in-service aircraft : The MOZAIC airborne program, An Overview, *Journal of Geophysical Research*, 103(D19), 25,631–25,642, 1998.
- Masson-Delmotte, V., et al., Summary for policymakers. in : Climate change 2021 : The physical science basis. contribution of working group i to the sixth assessment report of the intergovernmental panel on climate change, *Ipcc*, IPCC, 2021.
- Matthews, E., M. S. Johnson, V. Genovese, J. Du, and D. Bastviken, Methane emission from high latitude lakes : methane-centric lake classification and satellite-driven annual cycle of emissions, *Scientific Reports*, 10(1), 12,465, doi :10.1038/s41598-020-68246-1, 2020.
- Melton, J. R., et al., Present state of global wetland extent and wetland methane modelling : conclusions from a model intercomparison project (WETCHIMP), *Biogeosciences*, 10(2), 753–788, doi :10.5194/bg-10-753-2013, 2013a.
- Melton, J. R., et al., Present state of global wetland extent and wetland methane modelling : conclusions from a model intercomparison project (WETCHIMP), *Biogeosciences*, 10(2), 753–788, doi :10.5194/bg-10-753-2013, 2013b.
- Messenger, M. L., B. Lehner, G. Grill, I. Nedeva, and O. Schmitt, Estimating the volume and age of water stored in global lakes using a geo-statistical approach, *Nature Communications*, 7(1), 1–11, doi :10.1038/ncomms13603, number : 1 Publisher : Nature Publishing Group, 2016.
- Naja, M., H. Akimoto, and J. Staehelin, Ozone in background and photochemically aged air over central Europe : Analysis of long-term ozonesonde data from Hohenpeissenberg and Payerne, *J. Geophys. Res.*, 108(D2), 4063, doi :10.1029/2002JD002477, 2003.
- Naus, S., S. A. Montzka, P. K. Patra, and M. C. Krol, A three-dimensional-model inversion of methyl chloroform to constrain the atmospheric oxidative capacity, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(6), 4809–4824, doi :10.5194/acp-21-4809-2021, 2021.
- Nicely, J. M., et al., Quantifying the causes of differences in tropospheric OH within global models, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 122(3), 1983–2007, doi :10.1002/2016JD026239, 2017.

- Nicely, J. M., et al., A machine learning examination of hydroxyl radical differences among model simulations for ccmi-1, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 20(3), 1341–1361, doi :10.5194/acp-20-1341-2020, 2020.
- Nisbet, E. G., et al., Very strong atmospheric methane growth in the four years 2014–2017 : Implications for the Paris Agreement, *Global Biogeochemical Cycles*, 0(ja), doi :10.1029/2018GB006009, 2019a.
- Nisbet, E. G., et al., Very strong atmospheric methane growth in the four years 2014–2017 : Implications for the Paris Agreement, *Global Biogeochemical Cycles*, 0(ja), doi :10.1029/2018GB006009, 2019b.
- Oltmans, S., et al., Long-term changes in tropospheric ozone, *Atmospheric Environment*, 40(17), 3156 – 3173, doi :10.1016/j.atmosenv.2006.01.029, 2006.
- Ordóñez, C., H. Mathis, M. Furger, S. Henne, C. Hüglin, J. Staehelin, and A. S. H. Prévôt, Changes of daily surface ozone maxima in Switzerland in all seasons from 1992 to 2002 and discussion of summer 2003, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(5), 1187–1203, doi :10.5194/acp-5-1187-2005, 2005.
- Parrish, D. D., D. B. Millet, and A. H. Goldstein, Increasing ozone in marine boundary layer inflow at the west coasts of North America and Europe, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(4), 1303–1323, doi :10.5194/acp-9-1303-2009, 2009.
- Patra, P. K., et al., TransCom model simulations of CH₄ and related species : linking transport, surface flux and chemical loss with CH₄ variability in the troposphere and lower stratosphere, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(24), 12,813–12,837, doi :10.5194/acp-11-12813-2011, 2011.
- Patra, P. K., et al., Methyl chloroform continues to constrain the hydroxyl (oh) variability in the troposphere, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 126(4), e2020JD033,862, doi :https://doi.org/10.1029/2020JD033862, e2020JD033862 2020JD033862, 2021a.
- Patra, P. K., et al., Methyl chloroform continues to constrain the hydroxyl (oh) variability in the troposphere, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 126(4), e2020JD033,862, doi :https://doi.org/10.1029/2020JD033862, e2020JD033862 2020JD033862, 2021b.
- Pausata, F. S. R., L. Pozzoli, E. Vignati, and F. J. Dentener, North atlantic oscillation and tropospheric ozone variability in europe : model analysis and measurements intercomparison, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(14), 6357–6376, doi :10.5194/acp-12-6357-2012, 2012.
- Pekel, J.-F., A. Cottam, N. Gorelick, and A. S. Belward, High-resolution mapping of global surface water and its long-term changes, *Nature*, 540(7633), 418–422, doi :10.1038/nature20584, number : 7633 Publisher : Nature Publishing Group, 2016.
- Peng, S., et al., Inventory of anthropogenic methane emissions in mainland china from 1980 to 2010, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(22), 14,545–14,562, doi :10.5194/acp-16-14545-2016, 2016.
- Peyrille, P., J.-P. Lafore, and J.-L. Redelsperger, An idealized two-dimensional framework to study the west african monsoon. part i : validation and key controlling factors, *J. Atmos. Sci.*, 64, 2765–2782, 2007.
- Prigent, C., C. Jimenez, and P. Bousquet, Satellite-Derived Global Surface Water Extent and Dynamics Over the Last 25 Years (GIEMS-2), *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 125(3), e2019JD030,711, doi :10.1029/2019JD030711, _eprint : https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1029/2019JD030711, 2020.
- Prinn, R. G., et al., A history of chemically and radiatively important gases in air deduced from ALE/GAGE/AGAGE, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 105(D14), 17,751–17,792, 2000.

- Qiu, C., D. Zhu, P. Ciais, B. Guenet, S. Peng, G. Krinner, A. Tootchi, A. Ducharne, and A. Hastie, Modelling northern peatland area and carbon dynamics since the Holocene with the ORCHIDEE-PEAT land surface model (SVN r5488), *Geoscientific Model Development*, 12(7), 2961–2982, doi : 10.5194/gmd-12-2961-2019, publisher : Copernicus GmbH, 2019.
- Qu, Z., et al., Global distribution of methane emissions : a comparative inverse analysis of observations from the tropomi and gosat satellite instruments, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(18), 14,159–14,175, doi :10.5194/acp-21-14159-2021, 2021.
- Redelsperger, J., et al., AMMA : un projet international et multidisciplinaire d'étude de la mousson ouest africaine, *La Météorologie*, 54, 22, 2006.
- Rutherford, J. S., et al., Closing the methane gap in us oil and natural gas production emissions inventories, *Nature Communications*, 12(1), 4715, doi :10.1038/s41467-021-25017-4, 2021.
- Sauvage, B., V. Thouret, J.-P. Cammas, J. Brioude, P. Nédélec, and C. Mari, Meridional ozone gradients in the African upper troposphere, *Geophysical Research Letters*, 34(L03187), doi :10.1029/2006GL028542, 2007.
- Scarpelli, T. R., D. J. Jacob, J. D. Maasackers, M. P. Sulprizio, J.-X. Sheng, K. Rose, L. Romeo, J. R. Worden, and G. Janssens-Maenhout, A global gridded ($0.1^\circ \times 0.1^\circ$) inventory of methane emissions from oil, gas, and coal exploitation based on national reports to the united nations framework convention on climate change, *Earth System Science Data*, 12(1), 563–575, doi :10.5194/essd-12-563-2020, 2020.
- Schaefer, H., et al., A 21st century shift from fossil-fuel to biogenic methane emissions indicated by $^{13}\text{CH}_4$, *Science*, doi :doi:10.1126/science.aad2705, 2016.
- Schneising, O., et al., A scientific algorithm to simultaneously retrieve carbon monoxide and methane from tropomi onboard sentinel-5 precursor, *Atmospheric Measurement Techniques*, 12(12), 6771–6802, doi :10.5194/amt-12-6771-2019, 2019.
- Schwietzke, S., et al., Upward revision of global fossil fuel methane emissions based on isotope database, *Nature*, 538(7623), 88–91, doi :10.1038/nature19797, number : 7623 Publisher : Nature Publishing Group, 2016.
- Sherwood, O. A., S. Schwietzke, V. A. Arling, and G. Etiope, Global Inventory of Gas Geochemistry Data from Fossil Fuel, Microbial and Burning Sources, version 2017, *Earth System Science Data*, 9(2), 639–656, doi :10.5194/essd-9-639-2017, publisher : Copernicus GmbH, 2017.
- Simpson, I. J., M. P. Sulbaek Andersen, S. Meinardi, L. Bruhwiler, N. J. Blake, D. Helmig, F. S. Rowland, and D. R. Blake, Long-term decline of global atmospheric ethane concentrations and implications for methane, *Nature*, 488(7412), 490–494, doi :10.1038/nature11342, 2012.
- Solazzo, E., M. Crippa, D. Guizzardi, M. Muntean, M. Choulga, and G. Janssens-Maenhout, Uncertainties in the emissions database for global atmospheric research (edgar) emission inventory of greenhouse gases, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(7), 5655–5683, doi :10.5194/acp-21-5655-2021, 2021.
- Steele, L. P., P. J. Fraser, R. A. Rasmussen, M. A. K. Khalil, T. J. Conway, A. J. Crawford, R. H. Gammon, K. A. Masarie, and K. W. Thoning, The global distribution of methane in the troposphere, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 5, 125–171, 1987.
- Tan, Z., and Q. Zhuang, Methane emissions from pan-Arctic lakes during the 21st century : An analysis with process-based models of lake evolution and biogeochemistry, *Journal of Geophysical Research : Biogeosciences*, 120(12), 2641–2653, doi :10.1002/2015JG003184, _eprint : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1002/2015JG003184>, 2015.

- Tarasick, D., et al., Tropospheric Ozone Assessment Report : Tropospheric ozone from 1877 to 2016, observed levels, trends and uncertainties, *Elementa : Science of the Anthropocene*, 7, doi :10.1525/elementa.376, 39, 2019.
- Thornton, B. F., M. Wik, and P. M. Crill, Double-counting challenges the accuracy of high-latitude methane inventories, *Geophysical Research Letters*, 43(24), 12,569–12,577, doi :10.1002/2016GL071772, 2016.
- Thouret, V., A. Marengo, P. Nédélec, and C. Grouhel, Ozone climatologies at 9-12 km altitude as seen by MOZAIC airborne program between september 1994 and August 1996, *Journal of Geophysical Research*, 103(D19), 25,653–25,680, 1998.
- Verpoorter, C., T. Kutser, D. A. Seekell, and L. J. Tranvik, A global inventory of lakes based on high-resolution satellite imagery, *Geophysical Research Letters*, 41(18), 6396–6402, doi :10.1002/2014gl060641, 2014.
- Wania, R., et al., Present state of global wetland extent and wetland methane modelling : Methodology of a model inter-comparison project (WETCHIMP), *Geoscientific Model Development*, 6(3), 617–641, 2013.
- Wilson, C., M. Gloor, L. V. Gatti, J. B. Miller, S. A. Monks, J. McNorton, A. A. Bloom, L. S. Basso, and M. P. Chipperfield, Contribution of regional sources to atmospheric methane over the Amazon Basin in 2010 and 2011, *Global Biogeochemical Cycles*, 30(3), 400–420, doi :https://doi.org/10.5194/acp-17-2255-2017, 2016.
- WMO, Scientific assessment of ozone depletion : 2006, global Ozone Research and Monitoring Project, Report No. 50, 2006.
- Wolfe, G. M., et al., Mapping hydroxyl variability throughout the global remote troposphere via synthesis of airborne and satellite formaldehyde observations, *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 116(23), 11,171–11,180, doi :10.1073/pnas.1821661116, publisher : National Academy of Sciences Section : PNAS Plus, 2019.
- Worden, J. R., et al., The 2019 methane budget and uncertainties at 1° resolution and each country through bayesian integration of gosat total column methane data and a priori inventory estimates, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 22(10), 6811–6841, doi :10.5194/acp-22-6811-2022, 2022.
- Xu, J., P. J. Morris, J. Liu, and J. Holden, Peatmap : Refining estimates of global peatland distribution based on a meta-analysis, *CATENA*, 160, 134–140, doi :https://doi.org/10.1016/j.catena.2017.09.010, 2018.
- Zbinden, R. M., J.-P. Cammas, V. Thouret, P. Nédélec, F. Karcher, and P. Simon, Mid-latitude tropospheric ozone columns from the MOZAIC program : climatology and interannual variability, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(4), 1053–1073, doi :10.5194/acp-6-1053-2006, 2006.
- Zhang, Z., et al., Development of the global dataset of wetland area and dynamics for methane modeling (wad2m), *Earth System Science Data*, 13(5), 2001–2023, doi :10.5194/essd-13-2001-2021, 2021.

Annexes

Acronymes et notations courantes

Tableau A.1 – Acronymes et abréviations utilisés dans le rapport

Acronyme	Signification
ACP	Atmospheric Chemistry and Physics
AGAGE	Advanced Global Atmospheric Gases Experiment
AMB-M ³	Advanced Methane Budget through Multi-constraints and Multi-data streams Modelling
AR6	Assessment Report 6 (from IPCC)
CAM	Community Atmosphere Model
CAMS	Copernicus Atmosphere Monitoring Service
CAMS2	Copernicus Atmosphere Monitoring Service 2.0
CCM	Modèle de chimie-climat
CCMI	Chemistry-Climate Model Intercomparison
CCI	Chemistry Climate Initiative
CEA	Commissariat à l'Énergie Atomique et aux Énergies Alternatives
CEDS	Community Emissions Data System
CHIMERE	Multi-scale chemistry-transport model for atmospheric composition analysis and forecast
CIF	Community Inversion Framework
CMIP	Projet d'Intercomparaison des Modèles Couplés
CNES	Centre National d'Études Spatiales
COV	Composé Organique Volatile
CrIS	Cross-track Infrared Sounder
CSIRO	Commonwealth Scientific and Industrial Research Organisation
CSTB	Centre Scientifique et Technique du Bâtiment
CTM	Modèle de chimie-transport
ECLAT	Etudes des Climat de la Terre
ECMWF	European Centre for Medium-range Weather Forecasts
EDGAR	Emission Database for Global Atmospheric Research
EMME	Eastern Mediterranean and Middle East region
EMME-Care	Eastern Mediterranean and Middle East region - climate and atmosphere re-search Center
ENVISAT	ENVIronmental SATellite
EPA	(US) Environmental Protection Agency

ESA	European Space Agency
ESSD	Earth System Science Data
FAO	Food and Agriculture Organization of the United Nations
EDGAR	Emissions Database for Global Atmospheric Research
EGU	European Geosciences Union
ERA-INTERIM	interim ECMWF Re-Analysis
ESA	European Space Agency
EUMETSAT	European operational satellite agency for monitoring weather
GAINS	Greenhouse Gas - Air Pollution Interactions and Synergies
GAW	Global Atmospheric Watch
GCM	General Circulation Model
GCP	Global Carbon Project
GEOS	Goddard Earth Observing System
GES	Gaz à effet de serre
GFED	Global Fire Emission Database
GGGRN	Global Greenhouse Gas Reference Network de la NOAA
GIEC	Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Évolution du Climat
GIEMS	Global Inundation Extent from Multi-Satellites
GLWD	Global Lakes and Wetlands data set
GMB	Global Methane Budget
GMD	Geoscientific Model Development
GOSAT	Greenhouse gases Observing SATellite
IAGOS	In-service Aircraft Global Observation system)
IASI	Interféromètre Atmosphérique de Sondage Infrarouge
ICOS	Integrated Carbon Observing System
INCA	INteraction Chemistry - Aerosols
InGOS	Integrated non CO ₂ Greenhouse gas Observing System
IPCC	Intergovernmental Panel for Climate Change
IPSL	Institut Pierre Simon Laplace
IZOMET-FS	Projet : Distinguishing Arctic CH ₄ Sources to the Atmosphere Using Inverse Analysis of High Frequency CH ₄ , 13CH ₄ and CH ₃ D Measurements
JAXA	Japan Aerospace Exploration Agency
JMA	Japan Meteorological Agency
JRG	Centre commun de recherche de la Commission Européenne
KIE	Kinetic Isotope Effect
LERMA	Laboratoire d'Etudes du Rayonnement et de la Matière en Astrophysique et Atmosphères
LIDAR	LIght Detection And Ranging
LMD	Laboratoire de Météorologie Dynamique
LMDz	Modèle de circulation générale zoomé du Laboratoire de Météorologie Dynamique
LSCE	Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement
MERLIN	Methane Remote Sensing Lidar Mission
MEMO2	MEthane goes MOBILE – MEasurements and MOdelling
MODIS	Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer
MOPITT	Measurement of Pollution in the Troposphere
MOZAIC	Measurements of OZone and water vapor by in-service AIrCraft
NAO	Oscillation Nord Atlantique
NASA	National Aeronautics and Space Administration
NDAC	Network for the Detection of Atmospheric Composition Change
NIES	National Institute for Environmental Studies

NIR	Near Infra red
NOAA	National Ocean and Atmosphere Administration
NOAA ESRL	NOAA Earth System Research Laboratory
NOAA GML	NOAA Global Monitoring Laboratory
OCDE	Organisation de Coopération et de Développement Économique
ORCHIDEE	Organising Carbon and Hydrology In Dynamic Ecosystems
OMM	Organisation Météorologique Mondiale
PDB	PeeDee Belemnite
PRG	Pouvoir de Réchauffement Global
PYVAR	module d'inversion VARIationnelle basé sur PYthon
SACS	Simplified Atmospheric Chemistry System
SCHIAMACHY	SCanning Imaging Absorption spectroMeter for Atmospheric CHartographY
SRON	Netherland Institute for Space Research
STE	Stratospheric–Tropospheric Exchange
STePE	Sciences de la Terre, des planètes, environnement
SWIR	Short Wave Infra Red
TANSO	Thermal And Near infrared Sensor for carbon Observation
TCCON	Total Carbon Column Observing Network
TES	Tropospheric Emission Spectrometer
TIR	Thermal Infra-red
TOMS	Total Ozone Mapping Spectrometer
TROPOMI	TROPOspheric Monitoring Instrument
USEPA	U.S. Environmental Protection Agency
UV	Ultra-violet
UVSQ	Université de Versailles – Saint-Quentin-en-Yvelines
VERIFY	Veryfing Greenhouse Gas Emissions
VSMOW	Vienna Standard Mean Ocean Water
WACCM	Whole Atmosphere Community Climate Model
WDCGG	World Data Center for Greenhouse Gases
WMO	World Meteorological Organization
YAK-AEROSIB	Airborne Extensive Regional Observations in Siberia French-Russian project
ZCIT	Zone de CONvergence Inter Tropicale

Tableau A.2 – Notations scientifiques et mathématiques (conformes à ?).

Notation	Signification
Ar	argon
C ₂ H ₆	éthane
C ₅ H ₈	isoprène
CCl ₄	tétrachlorure de carbone
CH ₂ O	formaldéhyde
CH ₃ Cl	chlorométhane
CH ₃ CCl ₃	méthylchloroforme (MCF)
CH ₄	méthane
COV	Composés Organiques Volatiles
Cl	radical chlore
CO	monoxyde de carbone
CO ₂	dioxyde de carbone
H ₂	dihydrogène
H ₂ O	vapeur d'eau
HCFC	Hydro Chloro Fluoro carbones

HCl	chlorure d'hydrogène
HCHO	Formaldéhyde
HFC	Hydro Fluoro carbones
HO ₂	hydroperoxyde
OH	radical hydroxyle
O(¹ D)	oxygène atomique - état singlet D
O ₂	dioxygène
O ₃	ozone
Ox	famille des oxygènes impairs (O + O ₃)
MCF	Méthylchloroforme
N ₂	diazote
NMHC	hydrocarbure non-méthanique
NO	monoxyde d'azote
NO ₂	dioxyde d'azote
NO _x	famille des oxydes d'azote (NO + NO ₂)
N ₂ O	protoxyde d'azote
KIE	facteur de fractionnement isotopique = $\frac{k_{\text{léger}}}{k_{\text{lourd}}}$
$\delta^{13}\text{C}(\text{CH}_4)_{\text{atm}}$	signal isotopique atmosphérique en ¹³ C : ¹² C du méthane
$\delta\text{D}(\text{CH}_4)_{\text{atm}}$	signal isotopique atmosphérique en D : H du méthane
$\delta^{13}\text{C}(\text{CH}_4)_{\text{source}}$	signature isotopique en ¹³ C : ¹² C d'une source de méthane
$\delta\text{D}(\text{CH}_4)_{\text{source}}$	signature isotopique en D : H d'une source de méthane
Pg	pétagramme 1 Pg = 10 ¹⁵ g
Tg	téragramme 1 Tg = 10 ¹² g
ppb	parties par milliard 1 ppb = 10 ⁻⁹
ppm	parties par million 1 ppm = 10 ⁻⁶
(·) ^T	opérateur transposée
$p(\mathbf{X} \mathbf{Y})$	densité de probabilité de la variable \mathbf{X} sachant \mathbf{Y}
\mathcal{H}	opérateur d'observation
\mathbf{H}	matrice jacobienne de l'opérateur d'observation
\mathbf{x}	vecteur de contrôle
\mathbf{x}^b	vecteur d'ébauche
\mathbf{x}^t	vecteur d'état réel
\mathbf{x}^a	vecteur d'analyse, c'est-à-dire après l'inversion
n	nombre de variables optimisées
ϵ^b	erreur sur l'état à priori = $\mathbf{x}^b - \mathbf{x}^t$
\mathbf{B}	matrice de covariance des erreurs d'état = $\mathbb{E}[\epsilon^b(\epsilon^b)^T]$
\mathbf{y}^o	vecteur d'observations
p	nombre d'observations disponibles dans le système
ϵ^μ	erreur de mesure
ϵ^m	erreur de modélisation
ϵ^o	erreur d'observation = $\epsilon^\mu + \epsilon^m = \mathbf{y}^o - \mathcal{H}(\mathbf{x}^t)$
\mathbf{R}	matrice de covariance des erreurs d'observations = $\mathbb{E}[\epsilon^o(\epsilon^o)^T]$
\mathbf{K}	matrice de gain de Kalman = $\mathbf{B}\mathbf{H}^T(\mathbf{R} + \mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T)^{-1}$
$\mathcal{J}(\mathbf{x})$	fonction de coût de l'inversion bayésienne = $\frac{1}{2}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b)^T \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b) + \frac{1}{2}(\mathbf{y}^o - \mathbf{H}\mathbf{x})^T \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{y}^o - \mathbf{H}\mathbf{x})$

Résumé: L'étude de la composition de l'atmosphère et la compréhension des variations des concentrations des gaz en trace est essentielle dans l'étude du climat et de la qualité de l'air. Dans ce document, je présente une synthèse de mes travaux de recherche concernant l'analyse des concentrations d'ozone troposphérique et du méthane. En particulier, je détaille les enjeux de la synergie entre les outils d'observations et de modélisation pour ces deux gaz en trace dont le rôle est majeur pour le climat et la qualité de l'air, ainsi que la méthodologie suivie pour leur étude dont l'optimisation des sources et des puits de méthane par inversion du transport et de la chimie atmosphérique. 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 sources et puits d'un gaz, afin d'optimiser les sources et puits de ce gaz (ici le méthane). Je détaille les résultats obtenus ainsi que les limitations rencontrées formant les verrous actuels. Enfin dans un dernier chapitre, je présente un projet de recherche visant à améliorer nos outils et nos méthodes pour mieux estimer les sources et puits de méthane, et espérer réduire nos incertitudes.

Mots clés: composition atmosphère, ozone, méthane, émissions, observation, modélisation

Abstract: Understanding the atmospheric composition and the variations of trace gas concentrations is essential for climate and air quality sciences. In this manuscript, I present an overview of my research work on analysing tropospheric ozone and methane concentrations. In particular, I provide details on the issues of the synergy between observations and modelling for these two trace gases, that are important for both climate and air quality. Also, I explain the methodology used for their study including atmospheric inversion. Atmospheric inversion is a top-down approach that combines atmospheric observations, chemistry-transport modelling and a priori knowledge on sources and sinks of a gas in order to statistically optimize its sources and sinks. I provide details on the results as well as the limits encountered. In the final chapter, I present a research project for the following years aiming at improving our tools and methods to better estimate methane sources and sinks and hopefully reduce our uncertainties.

Keywords: atmospheric composition, ozone, methane, emissions, observation, modelling