

CNRS - Université Pierre et Marie Curie – Université Versailles-Saint-Quentin
CEA – ORSTOM – Ecole Normale Supérieure – Ecole Polytechnique



Institut Pierre Simon Laplace

des Sciences de l'Environnement Global

Notes techniques du pôle de modélisation

Emissions de polluants par les feux de biomasse et impact sur le bilan de l'ozone dans le modèle de circulation générale LMDz-INCA

Juliette Lathière

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



Mai 2002

Remerciements

Ceci est le rapport du stage de DEA effectué sous la direction de Cathy Clerbaux et Didier Hauglustaine, d'Avril à Juin 2001.

Je tiens tout d'abord à remercier Philippe Waldteufel, directeur du Service d'Aéronomie, et Laurent Turpin, directeur du Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement pour m'avoir accueillie dans leur laboratoire.

Tous mes plus vifs et sincères remerciements à Cathy Clerbaux et Didier Hauglustaine pour ce stage passionnant .

Ma plus grande reconnaissance à Cathy Liousse, du Laboratoire d'Aérodynamique de Toulouse, qui a mis à ma disposition ses inventaires, permettant ainsi d'accomplir une étape importante de ce stage.

Un grand merci également à Juliette Hadji-Lazaro, Gerd Folberth, Nicolas Houy et Frédéric Fluteau pour leur sympathique coopération et leurs conseils avisés.

Sommaire

INTRODUCTION	p.3
CHAPITRE 1	p.5
1) Combustion de la biomasse et émissions de polluants	p.6
1.1) Localisation et rythme saisonnier	p.6
1.2) Processus de combustion et émissions de gaz traces et de particules	p.7
1.3) Utilisation des satellites dans la localisation des feux	p.9
2) Perturbations du cycle de l’ozone troposphérique par les émissions au sol	p.10
2.1) Cycle de l’ozone en troposphère naturelle :	p.10
2.1.1) Production d’ozone	p.10
2.1.2) Destruction photochimique de l’ozone	p.11
2.2) Perturbations du cycle de l’ozone en troposphère polluée	p.12
2.2.1) Oxydation des composés organiques volatils	p.13
2.2.2) Chimie des composés carbonylés	p.14
2.3) Ozone et combustion de la biomasse en régions tropicales	p.14
3) Le modèle LMDz-INCA	p.15
3.1) Intérêt et caractéristiques	p.15
3.2) Détermination de l’ozone troposphérique et introduction des gaz traces	p.15
CHAPITRE 2	p.17
1) Variations des concentrations d’ozone et de monoxyde de carbone à la surface et inventaires	p.18
2) Variations des concentrations d’ozone à l’échelle globale	p.21
CHAPITRE 3	p.27
1) Inventaires disponibles : caractéristiques et comparaisons	p.28
1.1) Brûlage de la savane	p.30
1.2) Brûlage des forêts tropicales	p.30
1.3) Brûlage des forêts boréales	p.31
1.4) Brûlage des déchets agricoles	p.32
1.5) Brûlage domestique des combustibles naturels (bio fuel)	p.32
2) Localisation et intensité des émissions de CO dans les inventaires à l’échelle d’un continent : Brûlage de la végétation en Afrique	p.33
CHAPITRE 4	p.40
Prise en compte de nouvelles espèces dans le modèle LMDz-INCA et utilisation des inventaires de <i>Lioussé & al. 1996</i> .	p.41
CONCLUSION	p.48
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES	p.49

Introduction

Si la présence de l'ozone dans la stratosphère est indispensable afin d'assurer un filtrage du rayonnement solaire ultraviolet, l'existence en fortes concentrations de cette molécule, toxique, n'est pas souhaitable dans l'environnement proche de tout être vivant, c'est-à-dire à proximité de la surface terrestre, dans la basse atmosphère. L'ozone est en effet un gaz à effet de serre et un oxydant puissant. Il est donc prépondérant de pouvoir suivre et déterminer l'évolution de la composition chimique de la troposphère.

L'évolution de la concentration de l'ozone troposphérique sous l'effet des perturbations naturelles ou anthropiques peut être établie notamment au moyen des modèles de simulation, rendant compte de la compréhension actuelle des mécanismes physiques, chimiques et dynamiques de la basse atmosphère.

C'est le cas du modèle LMDz (Laboratoire de Météorologie Dynamique Zoom) dont la première version date de 1984 mais qui reste en évolution constante : les processus photochimiques de l'atmosphère, notamment, ont été introduits dans le modèle LMDz en 1999 par l'intermédiaire d'un couplage entre la version transport du modèle et le nouveau module interactif de chimie atmosphérique INCA (INteraction avec la Chimie et les Aérosols).

Cependant, pour que le modèle puisse déterminer la concentration d'ozone, toutes les informations concernant les émissions des précurseurs ou destructeurs de l'ozone doivent lui être fournies. Différentes sources d'émissions et espèces chimiques ont donc été progressivement introduites dans le modèle afin d'obtenir une prédiction la mieux justifiée possible, c'est-à-dire tenant compte de toute la complexité chimique de l'atmosphère et des émissions naturelles ou anthropiques les plus diversifiées.

Dans le cadre de ce stage, il s'agira justement de considérer une source d'émissions, prise en compte jusqu'alors dans le modèle de façon partielle : la combustion de la biomasse, phénomène d'ampleur non négligeable, principalement dans les régions tropicales d'Amérique du Sud, d'Afrique et d'Indonésie, et conduisant à l'émission en quantités significatives d'espèces comme le monoxyde de carbone CO, le méthane CH₄, les oxydes d'azote NO_x, les hydrocarbures non méthaniques NMHC ainsi qu'à l'émission de particules de carbone. En tant que précurseurs de l'ozone, ces espèces sont en effet susceptibles de perturber la composition en ozone de la troposphère : c'est ce que nous pourrions vérifier en comparant préalablement les concentrations d'ozone troposphérique avec et sans émissions dues à la combustion de la végétation, pour les espèces et les inventaires considérés actuellement dans le modèle. Nous pourrions ainsi analyser si les perturbations de l'ozone dues au brûlage de la végétation sont essentiellement locales ou si elles se font ressentir à une plus grande échelle.

De plus, face aux différents inventaires concernant les émissions de gaz traces par combustion de biomasse, il paraît fondamental de s'assurer que les informations fournies sont suffisamment cohérentes et représentatives pour permettre un calcul de l'ozone le plus juste possible : les inventaires des espèces considérées seront donc actualisés en fonction des données les plus récentes disponibles. Les inventaires établis par *Lioussé et al. (1996)*,

notamment, pourront être utilisés, permettant ainsi une meilleure prise en compte de la variation saisonnière et de la diversité des sources de brûlage.

Une comparaison avec des relevés de feux par satellite permettra de vérifier la cohérence de la localisation de ces émissions, et donc des précurseurs de l'ozone dans les inventaires utilisés. Il sera également important d'analyser les variations saisonnières des différentes émissions introduites dans le modèle et de s'assurer qu'elles sont représentatives du rythme saisonnier du brûlage de la végétation.

Dans une première partie, plus théorique, le lien étroit entre combustion de la biomasse et perturbation de l'ozone troposphérique sera souligné : il est en effet important de comprendre l'ampleur de cette pratique ancestrale et vitale ainsi que les voies chimiques par lesquelles s'opère la perturbation du cycle de l'ozone troposphérique. L'intérêt des relevés de feux par satellite comme moyen de vérification de la cohérence des données utilisées sera également relevé.

Chapitre 1

1) Combustion de biomasse et émissions de polluants :

Pratique d'importance vitale pour de nombreuses populations, le brûlage de la végétation est extrêmement répandu dans les régions tropicales. Source d'énergie domestique et industrielle ou création de terres cultivables, la combustion de la biomasse permet à des millions de personnes d'assurer des besoins essentiels. Mais la pratique de combustion à une telle échelle, si elle est d'une importance indéniable, n'est sûrement pas sans conséquence sur la composition chimique de l'atmosphère et principalement de la troposphère, et en particulier sur le cycle de l'ozone. L'étude menée par *Granier et al. 1996* montre ainsi que le brûlage de la végétation est responsable d'une augmentation annuelle de la production photochimique nette d'ozone de 19% à l'échelle globale : la concentration d'ozone augmente ainsi de 5% à toutes les altitudes et latitudes et jusqu'à 100% au voisinage des feux de biomasse. D'autres études comme celles de *Bonsang & al. 1991*, *Thompson & al. 1996*, *Roelofs & al. 1997*, *Galanter & al. 2000* démontrent également l'influence des émissions de CO, CH₄ et NO_x par brûlage de la végétation sur le cycle de l'ozone troposphérique. Il est donc essentiel de connaître la distribution spatiale et temporelle du brûlage de la végétation mais aussi les émissions de gaz traces qui lui sont liées pour pouvoir ensuite déterminer dans quelles mesures s'effectue la perturbation de l'ozone troposphérique.

1.1) Localisation et rythme saisonnier :

***Localisation :**

Le brûlage de la végétation est une pratique très répandue dans les régions tropicales et notamment en Afrique (46% de la biomasse brûlée totale), en Amérique du Sud (31% de la biomasse brûlée), en Indonésie (16%) ou encore en Australie (6% seulement) (*Hao & Liu, 1994*). On estime ainsi que chaque année, en Afrique, 390 millions de tonnes de biomasse sont brûlées par la déforestation et 2430 millions de tonnes par le brûlage de la savane, représentant la moitié de la biomasse totale mondiale. Les feux de végétation, d'origine anthropique puisque initiés et contrôlés par l'homme dans la grande majorité des cas, sont répartis en plusieurs catégories. Ainsi les feux de brousses, déclenchés pendant la saison sèche, permettent de nettoyer la savane et de renouveler les pâturages. Le brûlage permet aussi le défrichement de la forêt, assurant ainsi l'extension de l'agriculture par la création de terres cultivables. Il peut également s'agir de sources d'énergie domestique: cuisine, chauffage assurés par l'utilisation intensive du bois et du charbon de bois, autant de pratiques de haute importance pour les populations concernées. Le brûlage des déchets agricoles et en majorité du blé, maïs, millet, est aussi fortement pratiqué.

Cependant, selon le pays considéré, les caractéristiques du brûlage sont différentes. Dans les pays en voie de développement, des quantités de plus en plus importantes de combustible sont nécessaires pour répondre à la croissance de la population. Dans les régions où le manque de bois se fait ressentir, ce sont les déchets agricoles ou le fumier qui sont utilisés comme combustible. C'est le cas de l'Asie du Sud-Est et de l'Amérique du Sud où les déchets de riz et de canne à sucre sont brûlés de façon intensive pour la cuisine par exemple (*Lioussse et al., 1996*). Ainsi l'Afrique est-elle plutôt dominée par les feux de savane (2/3 de la biomasse brûlée en Afrique) qui recouvre une grande partie du territoire alors que la forêt tropicale et la brousse sont présents dans une moindre proportion (*Hao & Liu, 1994*). L'utilisation du bois comme combustible domestique est encore plus fortement marquée en Ethiopie, au Niger ou encore au Zaïre alors que le brûlage des déchets agricoles est également réparti sur tout le continent.

En Indonésie, ce sont les feux de forêts qui dominent et sont très présents dans des régions comme l'Inde, le Laos ou encore la Thaïlande. Seulement 8% de la biomasse totale brûlée en Asie concerne les feux de savanes. En Inde, les combustibles sont principalement le bois, les déchets agricoles ou encore le fumier séché. La quantité de bois brûlé comme combustible en Asie représente ainsi plus de la moitié du brûlage de bois total dans les régions tropicales. Plus de 130 millions de personnes trouvent ainsi une source d'énergie vitale (*Venkataraman & Rao, 2001*). Une croissance d'un facteur 3 est prévu entre 1985 et 2015 dans l'utilisation du bois comme combustible en Inde (*World Resources, 1992-1993*).

En Amérique du Sud, on observe une contribution égale des feux de forêts et de savanes. Le Brésil est également très imprégné par cette pratique et la politique de culture intensive entraîne un brûlage massif des terres et des déchets agricoles.

En Australie, c'est le brûlage de la savane qui est le plus présent mais l'ampleur de cette pratique sur le continent australien n'a rien de comparable avec son intensité en régions tropicales.

Si le brûlage de la végétation est également présent dans les régions boréales et tempérées, il est cependant d'ampleur très faible comparativement au brûlage en régions tropicales. Ainsi dans les forêts tempérées et mixtes d'Eurasie et d'Amérique du Nord, les surfaces brûlées moyennes restent relativement faibles. En Europe, les surfaces brûlées ne dépassent pas 20000 hectares par an. Au Sud du Canada, près des grands Lacs, le brûlage des forêts est pratiquement inexistant. La forêt boréale, constituée de deux immenses forêts en Amérique du Nord et en Eurasie, ne subit pratiquement pas la pression anthropique, en raison de la faible densité de population qui règne dans les régions boréales (*Lavoué, 2000*) et ce sont principalement les conditions météorologiques particulières qui, provoquant des incendies de forêts, sont à l'origine du brûlage de la végétation.

***Rythme saisonnier :**

La période de brûlage dure au maximum 6 mois et correspond à la saison sèche de la région considérée. Ainsi elle s'étend principalement de Mars à Juin au Nord de l'Equateur et de Septembre à Décembre au Sud de l'Equateur (*Hao & Liu, 1994*).

1.2) Procédé de combustion et émissions de gaz traces :

***Combustion :**

Le mécanisme de combustion se déroule en plusieurs étapes qui correspondent chacune à des processus chimiques différents et donc à des émissions de gaz différents. Les deux étapes prépondérantes sont celles du « feu vif » et du « feu sans flamme ». A noter qu'elles peuvent également se dérouler indépendamment l'une de l'autre. La biomasse contient, outre de la cellulose, des minéraux et de l'eau, des protéines constituées de molécules d'alcools, aldéhydes, alcènes, terpènes...constituants qui seront déterminants dans la nature des composés émis lors de la combustion.

1^{ère} étape : feu vif : l'eau et les produits volatils sont dégradés, il y a alors formation d'un solide à haute teneur en carbone, d'une molécule intermédiaire et de premiers gaz. Dès que la température dépasse 800K, le mélange est réduit en substances simples comme CO, CO₂ et des produits intermédiaires (CH₄, C₂H₄, PAH : poly-aromatics-hydrocarbons) peuvent être produits selon les conditions.

2^{ème} étape : feu sans flamme : dès que les produits volatils sont dégradés se met en place une réaction entre l'oxygène et le carbone, produisant de l'énergie et responsable de l'émissions de produits oxydés. C'est ce stade de combustion, moins complète que celle qui se déroule dans le cas du feu vif, qui entraîne l'émission de produits très divers, comme des particules solides très riches en carbone et surtout de nombreux gaz traces précurseurs de l'ozone.

Il est important de noter que cette description correspond plus à un processus observé en laboratoire : en milieu naturel, ces deux étapes se déroulent souvent simultanément avec une prédominance de l'une ou l'autre selon la nature de la biomasse brûlée. Dans le cas des feux de forêts en régions tropicales ou encore dans la formation du charbon, la 2^{ème} étape peut durer plusieurs jours et même plusieurs semaines, entraînant des émissions importantes de gaz traces, alors que dans le cas des feux de savanes, c'est la 1^{ère} étape qui domine, les émissions de gaz traces induites sont donc beaucoup plus faibles. Mais même pour un type de feu donné, les paramètres internes peuvent varier et ainsi modifier l'importance de l'une ou l'autre étape, donc des émissions de gaz. Les paramètres externes comme la direction du vent, la pente du terrain ont aussi des conséquences importantes (Andreae & Merlet, 2001).

***Emissions :**

De nombreuses études ont été faites concernant les émissions de précurseurs de l'ozone en régions tropicales liées au brûlage de la végétation. Ainsi 50% du CO total en régions tropicales provient du brûlage de la biomasse, déterminant 26% environ du CO troposphérique (Granier & al. 1996). Une étude menée en Inde par Venkataraman & Rao, 2001 a montré l'importance des émissions de CO dans l'atmosphère, consécutive au brûlage de combustibles domestiques (bois, fumier et déchets) dans des fourneaux dont l'utilisation est coutumière. La combustion incomplète qui s'y déroule est à l'origine d'émissions importantes de polluants et notamment de CO. L'utilisation récente de fours améliorés, en métal, et dont la chambre de combustion est plus petite semble accroître encore plus ces émissions. Pour les NO_x, dont la durée de vie est plus faible que celle du CO, le transport sera moins déterminant et on retrouvera de fortes augmentations d'oxyde d'azote localisées autour des zones de combustion. De plus, dans les régions tropicales, l'ensoleillement fort favorise la réalisation des réactions photochimiques de production d'ozone, à partir de gaz précurseurs présents en forte concentration. La production d'ozone peut ainsi atteindre 5 fois la concentration normale (Graedel & Crutzen, 1989). La plupart des sources étant localisées en régions tropicales, le brûlage de la végétation joue un rôle déterminant dans la chimie de la troposphère tropicale et notamment dans le bilan de CO, NO_x et CO₂. On estime ainsi que 90% du charbon de bois est transformé en CO₂ impliquant des émissions de CO₂ de l'ordre de 465MT/an à l'échelle globale dont les 2/3 en régions tropicales (Müller, 1992). Plusieurs études menées par Crutzen & al. 1985, Hao & al. 1990, Crutzen & Andreae 1990 ou encore Bonsang & al. 1991 confirment le rôle important des émissions par brûlage de végétation, notamment dans les régions tropicales, sur la chimie de la troposphère. Cette pratique est une source importante de CO, CO₂, NO_x, CH₄, NMHC et particulièrement d'espèces à deux ou trois carbones. L'impact des hydrocarbures et du CO sur l'ozone troposphérique est initié par la réaction avec le radical OH. La chaîne de réactions photochimiques conduit finalement à la production d'ozone puisqu'elle s'établit dans des conditions de concentrations de NO importantes en présence de combustion de la végétation. Une telle formation d'ozone troposphérique a d'ailleurs pu être observé en Amazonie (Kirchhoff & al., 1988, Kirchhoff & Rasmussen, 1990) et également dans les régions tropicales d'Afrique.

Il paraît donc incontournable, si l'on souhaite déterminer avec plus d'exactitude l'évolution de l'ozone troposphérique, de prendre en compte la pratique de brûlage de la végétation en régions tropicales. Les émissions de précurseurs de l'ozone atteignent en effet de tels niveaux que les négliger serait sans doute une source d'erreur importante pour le calcul des concentrations d'ozone troposphérique.

1.3) Utilisation de satellites dans la localisation des feux :

Considérant les changements globaux dus aux émissions fortes de gaz traces par combustion de biomasse, il s'est avéré essentiel de pouvoir suivre rapidement et de façon permanente l'évolution et la localisation de ces feux. En raison de sa précision l'instrument ATSR (Along Track Scanning Radiometer) développé par l'ESA/ESRIN, embarqué à bord du satellite ERS2 a pu être utilisé pour réaliser un Atlas mondial des surfaces brûlées. Nous pourrions utiliser ces mesures, notamment pour vérifier la cohérence de la localisation des sources de brûlage introduites dans le modèle LMDZ-INCA. L'instrument ATSR possède 4 canaux visibles (0.55 μm , 0.67 μm , 0.87 μm , 1.6 μm) et mi-infrarouge et 3 canaux thermiques-infrarouge (3.7 μm , 11 μm , 12 μm). Le canal 3.7 μm est très sensible aux radiations émises à des températures de 400 à 1000K. Il est prévu pour donner une double vue de la même surface avec une résolution de 1km. Les mesures sont effectuées de nuit. Le satellite revisite l'équateur avec une période de 3 jours et la durée de son cycle autour de la Terre est de 35 jours.

Les données ATSR, regroupées dans des fichiers (disponibles sur le site Internet de l'ESA), permettent d'identifier les zones de « hots spots », où sont relevés des feux d'ampleur importante. Il est à noter cependant que l'instrument ne fait pas la distinction entre brûlage de végétation et d'autres formes de feux comme les puits de pétrole... L'utilisation de données pour la localisation des feux de biomasse en régions tropicales est possible car il s'agit de zones non industrielles ou les feux relevés proviendront donc essentiellement du brûlage de la végétation. 3 algorithmes sont utilisés pour la détermination temporelle et géographique des feux à partir des mesures effectuées par l'ATSR, correspondant à un niveau de saturation différent pour les canaux thermiques. Ainsi dans le cas de l'algorithme 1, le niveau de saturation est fixé à 312K alors que dans le cas de l'algorithme 2, il est situé à 308K, impliquant ainsi la détection de surfaces chaudes comme zones de feux. Il est donc conseillé, pour l'évaluation de données, d'utiliser l'algorithme 1, évitant ainsi la surestimation des zones de brûlage. L'algorithme 3 n'est pas encore suffisamment efficace pour être utilisé, les données qui lui sont relatives ne sont d'ailleurs pas publiées sur le site de l'ESA. La prise des mesures de nuit uniquement évite ainsi l'artefact dû à la réflexion du rayonnement solaire, impliquant toutefois une légère sous-estimation des feux (*Arino & Melinotte, 1995*). La comparaison avec des relevés de jour montre un bon accord des localisations de feux dans les régions tropicales considérées. Il n'y a pas non plus de variation de l'orbite du satellite ERS autour de la Terre, permettant une comparaison inter annuelle. Il faut noter également la limitation des algorithmes dans certaines conditions météorologiques : la présence de nuage, par exemple, cache la présence de nombreux feux. De même par temps de pluie sous un ciel nuageux la détection des feux est limitée. La pratique de la combustion de la végétation ayant lieu en saison sèche dans les régions tropicales, on peut penser que les limitations de l'instrument interviendront peu.

De nouveaux instruments de mesures atmosphériques comme Sciamachy et AATSR (Advanced Along Track Scanning radiometer) sont développés et permettront prochainement de chercher un lien entre la distribution des feux de brûlage et la présence de gaz traces, par mesures directes. Ces instruments sont embarqués sur le satellite ENVISAT dont le lancement est prévu en Octobre 2001. Le CNES et EUMETSAT (European organisation for the

exploitation of meteorological satellites) élaborent actuellement un satellite baptisé « METOP », destiné à l'étude de l'atmosphère. Il devrait être mis sur orbite en 2003 et l'objectif est notamment de pouvoir mesurer le spectre atmosphérique dans les longueurs d'ondes infrarouges (système IASI : Infrared Atmosphere Sounding Interferometer). De nouveaux capteurs comme BIRD (Bi spectral InfraRed Detecor) et FUEGO sont également en cours de réalisation. Ils permettront d'obtenir des informations sur les feux non seulement en surface mais également en profondeur, impliquant la nécessité de développer de nouveaux algorithmes pour l'exploitation des mesures effectuées. Le lancement de FUEGO, de l'ESA/INSA est prévu entre 2004 et 2005 : il a la particularité d'être constitué d'une constellation de mini-satellites.

2) Perturbations du cycle de l'ozone troposphérique par les émissions au sol:

Composant minoritaire de l'atmosphère (0.04 ppm en moyenne à la surface et jusqu'à plus de 10ppm dans la stratosphère), l'ozone est d'autant plus sensible aux émissions anthropiques et naturelles qu'il est présent dans la troposphère en très faible concentration. Il est donc prépondérant de comprendre par quelles réactions chimiques la concentration d'ozone troposphérique est liée étroitement aux émissions au sol, et notamment aux émissions de CO, CH₄, NO_x et NMHC, liées au phénomène de combustion de la biomasse tropicale étudié ici.

Si la distribution spatiale et temporelle de l'ozone dans la troposphère est également contrôlée par des processus comme le dépôt au sol ou les échanges de masse d'air entre stratosphère et troposphère, processus qui sont d'ailleurs pris en compte dans le modèle LMDz-INCA, nous étudierons uniquement les processus chimiques qui contrôlent cette distribution, c'est-à-dire la production et la destruction photochimique de l'ozone dans la troposphère.

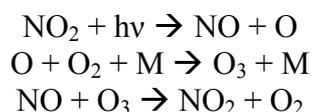
L'objectif n'est pas ici de présenter de façon détaillée et complète les réactions chimiques en jeu mais plus de souligner l'étroite dépendance entre émissions au sol, donc émissions de gaz traces par combustion de biomasse, et concentration d'ozone troposphérique.

2.1) Cycle de l'ozone en troposphère naturelle:

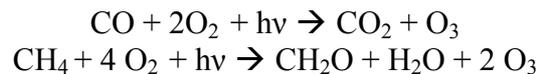
2.1.1) Production d'ozone :

La production directe d'ozone dans l'atmosphère résulte de la seule réaction de recombinaison d'un atome d'oxygène avec une molécule d'oxygène, en présence d'un troisième corps qui stabilise les produits de la réaction.

Dans la troposphère, l'atome d'oxygène nécessaire est produit à partir de la photodissociation du dioxyde d'azote NO₂ aux longueurs d'ondes inférieures à 400nm.



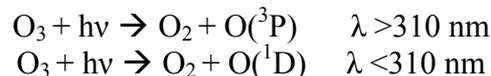
Un état stationnaire s'établit ainsi entre NO_2 , NO et O_3 . La conversion de NO en NO_2 est très rapide. On évalue habituellement le contenu de l'atmosphère en oxyde d'azote en considérant la somme des concentrations en NO et NO_2 , notée NO_x . Il n'y a donc production nette d'ozone que lorsque NO est converti en NO_2 sans perte d'ozone. Cette conversion fait intervenir dans la troposphère naturelle les radicaux hydroperoxy HO_2 et méthylperoxy CH_3O_2 , intermédiaire de l'oxydation du monoxyde de carbone CO et du méthane CH_4 . Les radicaux HO_2 réagissent préférentiellement avec NO plutôt qu'avec l'ozone lorsque le rapport des concentrations de NO et d'ozone est supérieur à $2 \cdot 10^{-4}$, ce qui correspond à des teneurs en NO_x supérieures à 10 à 20 pptv. Cette valeur constitue donc un seuil déterminant quant à la production nette d'ozone. Les chaînes d'oxydation de CO et CH_4 , initiées par la réaction d'oxydation avec le radical hydroxyle OH ont alors pour équation bilan :



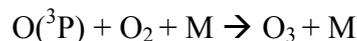
En troposphère modérément riche en NO_x , l'oxydation de CO et CH_4 conduit donc à la formation d'ozone. L'oxydation complète d'une molécule de CH_4 en CO_2 produit en fait 3.7 molécules d'ozone, dans la mesure où le formaldéhyde CH_2O formé peut à son tour être oxydé. Ces chaînes d'oxydation se généralisent pour l'ensemble des hydrocarbures et selon la nature de l'hydrocarbure de départ, le potentiel maximum de formation d'ozone varie de 4 molécules (C_2H_2 , C_2H_4) à 14 molécules (C_5H_{12}).

2.1.2) Destruction photochimique de l'ozone :

Dans la troposphère, l'ozone absorbe le rayonnement solaire dans le domaine des longueurs d'onde visibles, entre 410 nm et 850 nm, et ultra-violettes, entre 290 nm et 350 nm. Cette absorption conduit à la photodissociation de l'ozone qui produit de l'oxygène atomique dans l'état fondamental $\text{O}(^3\text{P})$ ou excité $\text{O}(^1\text{D})$



La photodissociation aux longueurs d'onde supérieures à 310 nm n'a pas d'effet sur l'ozone car celui-ci est immédiatement reformé par recombinaison :



En revanche, l'atome $\text{O}(^1\text{D})$ produit par photodissociation aux longueurs d'onde inférieures à 310 nm réagit avec la vapeur d'eau, pour la fraction non relaxée en $\text{O}(^3\text{P})$ par collision avec N_2 ou O_2 pour former le radical hydroxyle OH qui joue le rôle d'agent nettoyant de l'atmosphère. Il réagit principalement avec CO , CH_4 et les hydrocarbures (en troposphère naturelle). Comme nous l'avons vu précédemment, la nature des chaînes d'oxydation de CO et CH_4 dépend alors des teneurs en NO_x de l'atmosphère. Pour de faibles teneurs en NO_x , inférieures à environ 10 à 20 ppt, les chaînes d'oxydation de CO et CH_4 conduisent, par une suite complexe de réactions, à la destruction de l'ozone. Le bilan de l'oxydation complète de CH_4 en CO_2 en atmosphère pauvre en NO_x fait ainsi apparaître une perte nette d'ozone de 1.7 molécule par molécule de CH_4 oxydée.

2.2) Perturbations du cycle de l'ozone en troposphère polluée:

La situation est différente dans le cas d'une atmosphère polluée, et notamment à proximité des régions tropicales ou la combustion de la biomasse rejette dans la troposphère de très fortes quantités de gaz traces qui sont des composés organiques volatils (COV ou NMHC) autres que le méthane d'origine anthropique. Le terme désigne des produits à tension de vapeur suffisamment élevée (la valeur seuil aux Etats-Unis est de 0.13 Pa dans les conditions normales de température) et à réactivité suffisante pour pouvoir participer à des réactions photochimiques. Cette dénomination regroupe les hydrocarbures (alcane, alcènes, alcynes, aromatiques) et les composés oxygénés. Les NMHC sont extrêmement nombreux et de structures très diverses. Ils ont des réactivités très variées en général très supérieures à celles du méthane. Leurs émissions sont souvent associées à celles d'oxyde d'azote. Les processus chimiques sont alors plus complexes et les mécanismes chimiques mis en jeu conduisent à des concentrations d'ozone qui peuvent être très supérieures à celles observées en milieu naturel non pollué. Cette augmentation de la concentration d'ozone est due à des mécanismes d'oxydation des NMHC dans la troposphère qui viennent perturber le cycle naturel $\text{NO}_x - \text{O}_3$ en offrant d'autres voies d'oxydation de NO et NO_2 que la réaction avec l'ozone. Les mécanismes d'oxydation des NMHC sont induits principalement par le radical hydroxyle OH le jour et le radical NO_3 la nuit, ainsi que par l'ozone pour certains NMHC.

Tableau 1 Réactivités des différents NMHC, fondée sur la réaction avec le radical OH dans la troposphère

Composés	Réactivité relative au méthane
<i>Méthane</i>	1
<i>Monoxyde de carbone</i>	18
<i>Acétylène</i>	23
<i>Ethane</i>	33
<i>Benzène</i>	180
<i>Propane</i>	270
<i>n-Butane</i>	375
<i>Iso pentane</i>	420
<i>2-Méthylpentane</i>	670
<i>Toluène</i>	750
<i>Ethylène</i>	790
<i>n-Hexane</i>	790
<i>3-Méthylpentane</i>	900
<i>Ethylbenzène</i>	1000
<i>1,2,3-Triméthylbenzène</i>	3100
<i>Propène</i>	3150
<i>Cis-2-Butène</i>	6730
<i>Alpha pinène</i>	8750
<i>1,2-Butadiène</i>	9670
<i>Méthanol</i>	225
<i>Ethanol</i>	765
<i>Formaldéhyde</i>	2475

2.2.1) Oxydation des composés organiques volatils :

Plusieurs mécanismes d'oxydation peuvent se dérouler selon la nature du radical responsable de l'initiation de cette oxydation.

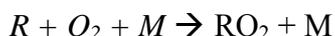
*** Oxydation initiée par le radical hydroxyle OH :**

En troposphère polluée, les radicaux OH ont plusieurs sources possibles : photolyse du formaldéhyde et réactions en chaîne, photolyse de l'acide nitreux HONO ou encore photolyse de l'ozone aux longueurs d'onde inférieures à 310 nm, suivie de la réaction de O(¹D) avec la vapeur d'eau, mécanisme détaillé dans le cas de la troposphère naturelle.

Les mécanismes d'oxydation des composés organiques volatils dans la troposphère peuvent être décomposés en 4 étapes générales. Il faut noter cependant que la complexité du mécanisme complet augmente très rapidement avec la taille du composé de départ.

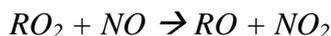
1^{ère} étape : formation de radicaux organiques par arrachement d'hydrogène ou addition sur une liaison non saturée, dont la nature diffère selon le composé initial. Cette étape est limitante: les constantes de vitesse varient très fortement en fonction de la nature du composé organique de départ, les alcènes et les composés aromatiques étant les plus réactifs.

2^{ème} étape : formation d'un radical peroxyde par addition d'oxygène sur le radical précédemment formé :

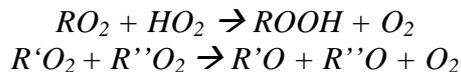


3^{ème} étape : réduction du radical peroxyde formé

soit par NO



soit par réaction avec le radical HO₂ ou un autre radical peroxyde

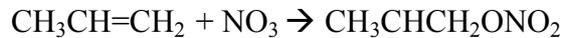


4^{ème} étape : le radical de type RO ainsi formé réagit avec l'oxygène moléculaire pour former des composés carbonylés et le radical HO₂.

Dans tous ces mécanismes, il se forme toujours un ou plusieurs radicaux HO₂ et RO₂ qui peuvent oxyder NO en NO₂ sans consommation d'ozone. Les molécules de dioxyde d'azote NO₂ ainsi formées peuvent se photolyser suivi d'une réaction de formation d'ozone. On explique ainsi les fortes concentrations d'ozone observées dans les atmosphères polluées dès que le rayonnement solaire est suffisamment intense. C'est le processus qui est susceptible de se dérouler dans les régions tropicales de combustion de biomasse où l'intensité lumineuse est régulièrement importante.

*** Oxydation initiée par le radical NO₃ :**

L'oxydation par le radical NO₃ peut être importante pour les hydrocarbures insaturés comme les alcènes et les terpènes. Le mécanisme primaire est une addition de NO₃ sur une liaison non saturée, dans le cas du propène, par exemple, on obtient :



Le radical formé réagit rapidement avec l'oxygène moléculaire pour former le radical nitroperoxy qui peut intervenir dans des chaînes d'oxydation, l'oxydation complète conduisant à des composés carbonylés ainsi qu'à des nitrates organiques.

*** Ozonolyse :**

Les alcènes et les polyènes peuvent réagir avec l'ozone à des vitesses comparables à celles de la réaction avec OH. Les biradicaux obtenus, nommés intermédiaire de Criegee peuvent soit réagir avec NO pour donner un aldéhyde, soit se réarranger pour donner un acide carboxylique. Cette réaction est d'ailleurs la seule voie connue de production d'acides carboxyliques en phase gazeuse dans la troposphère.

2.2.2) Chimie des composés carbonylés :

Il est important d'insister également sur les composés carbonylés, aldéhydes et cétones. Sans présenter tout le détail des réactions, rappelons qu'il s'agit non seulement de polluants primaires émis par différentes sources, notamment par la combustion de la biomasse, mais aussi de polluants secondaires produits lors de la photooxydation des COV. Ils jouent un rôle très important dans la troposphère car ils évoluent soit par photolyse, et peuvent alors, selon le mécanisme en jeu, constituer une source additionnelle de radicaux pour l'atmosphère, soit par réaction avec les radicaux OH le jour ou, à un moindre degré, avec le radical NO₃ la nuit, produisant alors des radicaux carbonyles. Après addition d'une molécule d'oxygène, ces radicaux carbonylés pourront réagir soit avec NO, soit avec NO₂.

Les composés carbonylés ont donc un rôle fondamental dans le cycle de l'ozone troposphérique: ils sont en effet une source importante de radicaux libres et leur oxydation conduit à la formation d'ozone et permet la dégradation progressive des COV. Ces COV peuvent alors produire finalement autant de fois 5 molécules d'ozone qu'ils possèdent de carbones réduits.

2.3) Ozone et combustion de la biomasse en régions tropicales :

On peut donc voir que les mécanismes chimiques qui s'établiront dans la troposphère dépendent étroitement de la concentration d'oxydes d'azote, et donc des émissions au sol, induisant une forte différenciation selon les régions étudiées. Ainsi dans les régions tropicales de combustion de biomasse, cette pratique conduisant à des émissions significatives de presque tous les précurseurs de l'ozone, une production importante d'ozone se met en place, avec une formation rapide à l'échelle locale et régionale à partir des hydrocarbures émis (quelques heures à 3 jours), puis à une formation progressive et décalée à l'échelle régionale de la ceinture tropicale à partir du CO (plusieurs jours à quelques semaines). L'Afrique constitue le continent où ces émissions prennent le plus d'importance, en raison de la diversité de pratiques, de l'étendue des surfaces considérées et de l'existence de saisons sèches différentes dans les deux hémisphères.

3) Le modèle LMDz-INCA :

3.1) Intérêt et caractéristiques :

Le modèle LMDz est un modèle de circulation générale (GCM) fondé sur les différentes lois qui régissent le comportement de l'atmosphère et ses interactions avec le milieu environnant, il est utilisé pour étudier le climat et son évolution. La version initiale du modèle LMDz a été établie par Sadourny et Laval (1984) puis révisée par Harzallah et Sadourny (1995). C'est un modèle en constante évolution : le transport de certaines espèces traces, notamment de l'ozone, a été introduit récemment dans le modèle.

Dans le cas du modèle LMDz-INCA, le calcul de la photochimie s'effectue en mode « on-line » puisque les modules simulant le transport des espèces chimiques, les processus chimiques et les processus d'échanges avec la surface sont directement et de façon interactive intégrés au modèle. A chaque pas en temps de la physique du modèle, il y a appel au module de chimie atmosphérique et émissions INCA qui contient les différents processus en cause dans la distribution atmosphérique d'un constituant : émissions des composés et de leur précurseurs, transport, phénomènes de dépôt, transformations photochimiques... La résolution du modèle standard est de 3.75° en longitude et 2.5° en latitude. Le modèle contient 96 niveaux de longitude, 72 niveaux de latitude et 19 niveaux verticaux. La résolution horizontale peut être facilement modifiée. Une version contenant 50 niveaux verticaux est actuellement en cours de réalisation.

Plusieurs versions du module INCA existent, correspondant à des degrés de développement des processus chimiques différents. Ainsi une première version est utilisée pour le transport des traceurs inertes et ne prend pas en compte les transformations chimiques. Une seconde version est conçue pour calculer le temps d'évolution de traceurs notamment celui des gaz à effet de serre et contient 22 traceurs et 39 réactions photochimiques. Le schéma d'oxydation du méthane a été introduit dans la version INCA_CH₄ afin de pouvoir calculer la distribution de l'ozone troposphérique et de l'hydroxyle OH. Les émissions et les réactions chimiques faisant intervenir CH₄, CO et NO_x y sont présentes (43 traceurs et environ 100 réactions photochimiques). La version la plus complète est la version INCA_NMHC. Elle prend en compte les hydrocarbures non méthaniques : les mécanismes d'oxydation de l'éthane, du propane, de l'éthène, du propène de l'éthyne, des isoprènes et des terpènes y sont développés. Toutes les espèces contenant plus de 4 atomes de carbone, sont représentées sous 6 espèces génériques : ALKANE, ALKENE, AROMATIC, C₂H₅OH, MEK et C₂H₂. La version standard contient 99 traceurs et 300 réactions photochimiques.

La version INCA_CH₄ sera utilisée pour calculer le bilan de l'ozone troposphérique pour les espèces actuellement prises en compte dans le modèle (CH₄, CO et NO_x). La version INCA_NMHC, en cours de réalisation, est celle qui sera utilisée à terme pour calculer le bilan de l'ozone troposphérique à partir d'une prise en compte détaillée des NMHC.

Les émissions de précurseurs à la surface sont préparées à partir de plusieurs inventaires : le pre-processeur INCAsflx collecte les émissions, et les interpole sur la grille horizontale du GCM, générant ainsi un fichier NetCDF contenant les moyennes mensuelles des émissions. Si les résolutions des inventaires utilisés sont différentes, le pre-processeur les « re étalonne ».

3.2) Détermination de l'ozone troposphérique et introduction de gaz traces :

Le module INCA_NMHC contient donc les mécanismes chimiques des hydrocarbures non méthaniques qui peuvent être émis, entre autre source, par le brûlage de la végétation. Dans le cadre de ce stage, il s'agit d'optimiser l'analyse de l'impact des émissions de polluants par le

brûlage de biomasse sur le bilan de l'ozone. Il faut donc fournir au modèle toutes les données les plus représentatives et complètes relatives à cette pratique, pour que le calcul de l'ozone prenne en compte les émissions d'espèces chimiques dont le rôle dans le cycle de l'ozone est prépondérant. Les émissions de NO_x , CO, et CH_4 d'origine naturelle, industrielle ou anthropique sont déjà incluses dans le pre-processeur. Les inventaires relatifs aux émissions de NMHC par combustion de biomasse, non pris en compte jusque là, devront donc être considérés. Le modèle LMDz-INCA pourra être utilisé pour le calcul des concentrations d'ozone troposphérique à partir des gaz déjà inclus et en utilisant les inventaire les plus représentatifs. Deux cas seront étudiés : avec et sans les émissions dues au brûlage de la végétation, permettant ainsi d'évaluer les conséquences des émissions des quelques polluants par la combustion de la biomasse sur le bilan de l'ozone troposphérique..

Chapitre 2

S'il paraît évident, par la description des processus chimiques reliant ozone troposphérique et émissions de gaz traces, que la pratique intensive de la combustion de la végétation est en mesure de perturber la distribution de l'ozone, il est important de pouvoir visualiser cette perturbation pour ainsi analyser à quel degré interviennent réellement ces modifications.

Les changements de concentrations d'ozone et de CO troposphérique, dus aux émissions de gaz traces par brûlage de la végétation, ont ainsi été calculés. Dans la version du modèle utilisée pour effectuer ces calculs, seules les émissions de CO, NO_x et CH₄ par combustion de biomasse sont pris en compte, les émissions de NMHC existant étant intégrées dans les émissions globales de CO (les NMHC se décomposent en effet rapidement en CO dans la troposphère, ce qui justifie cette approximation). Les inventaires de *Hao & Liu 1995* sont considérés pour les émissions par brûlage des forêts tropicales, boréales et des savanes et la base de données *EDGAR*, réalisée à partir des inventaires de *Seiler & Crutzen 1980* est considérée pour les émissions par brûlage des déchets agricoles et des combustibles domestiques d'origine naturelle (bio fuel).

Nous disposons ainsi de plusieurs cartes pour mener cette analyse :

- *variation des concentrations de CO à la surface
- *variation des concentrations d'ozone à la surface
- *colonne troposphérique d'ozone
- *moyenne zonale des changements de concentrations d'ozone
- *variation des durées de vie du méthane et des concentrations de OH.

Ces différentes cartes seront comparées à la distribution globale de CO calculée à partir des inventaires de *Hao & Liu* et *Edgar*, distribution qui conditionne directement le calcul du bilan de l'ozone troposphérique par le modèle.

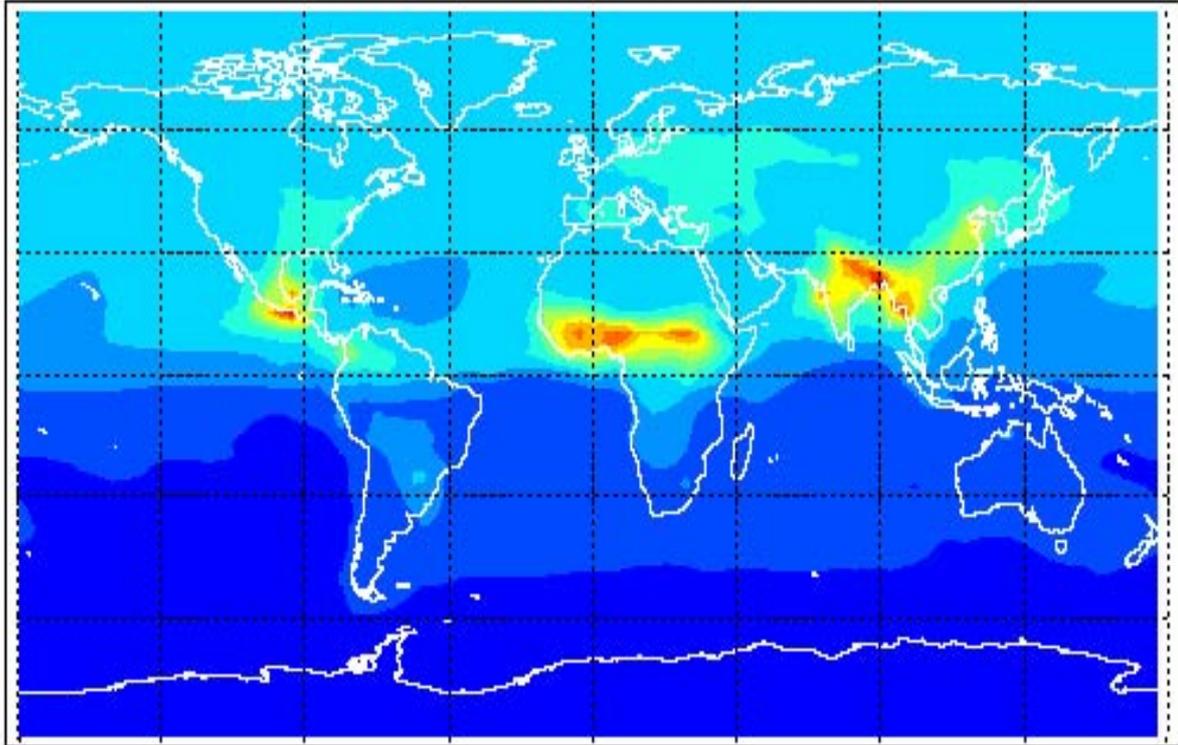
1) Variations des concentrations de CO et O₃ à la surface et inventaires :

Pour calculer les variations des concentrations, deux simulations sont effectuées : une sans émissions de CO par combustion de la végétation et une où l'on considère ces émissions. La différence entre les deux résultats obtenus permet de calculer la variation des concentrations.

Les deux cartes correspondantes sont données pour le mois d'Avril et d'Octobre *figure 1*. En Avril, on observe des variations de CO pouvant atteindre 300 ppbv dans les régions tropicales du Nord de l'Equateur, notamment en Indonésie où le brûlage de la végétation est alors fortement pratiqué. Des variations d'environ 120 à 200 sont également présentes dans les régions d'Afrique et d'Amérique Centrale. En Octobre, ce sont les régions tropicales situées au Sud de l'Equateur, où règne alors la saison sèche, qui sont concernées par de très fortes augmentations des concentrations de CO. Les surfaces concernées sont plus étendues : Brésil, Afrique du Sud-Ouest.

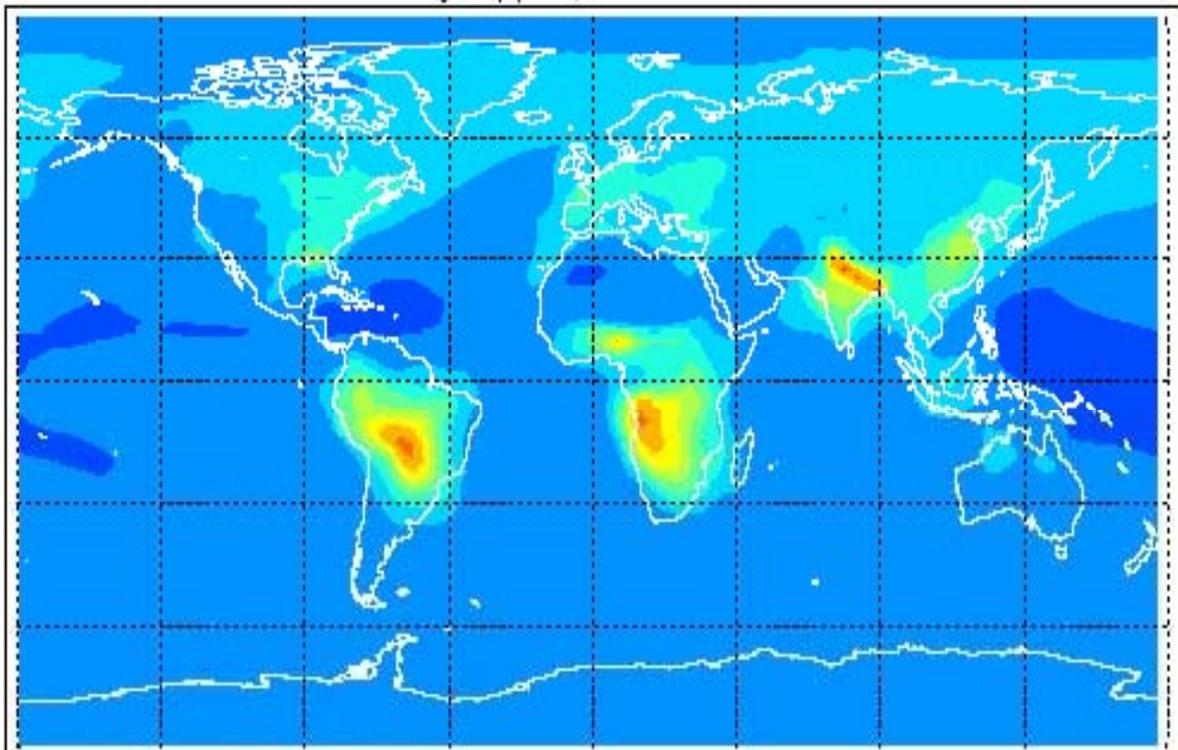
Les variations des concentrations d'ozone *figure 2* sont très fortement corrélées aux variations des concentrations de CO : elles sont marquées par la même distribution spatiale pour les deux mois considérés. En Avril, on note une augmentation des concentrations d'ozone de 18 ppbv : les surfaces concernées sont plus vastes que dans le cas du CO. En effet, un phénomène de transports des polluants étend la région de production d'ozone, qui n'est ainsi pas :localisée autour des seules sources d'émissions.

CO Change (ppbv) - Surface - April



Min = 1.86e+01 Max = 3.81e+02

CO Change (ppbv) - Surface - October



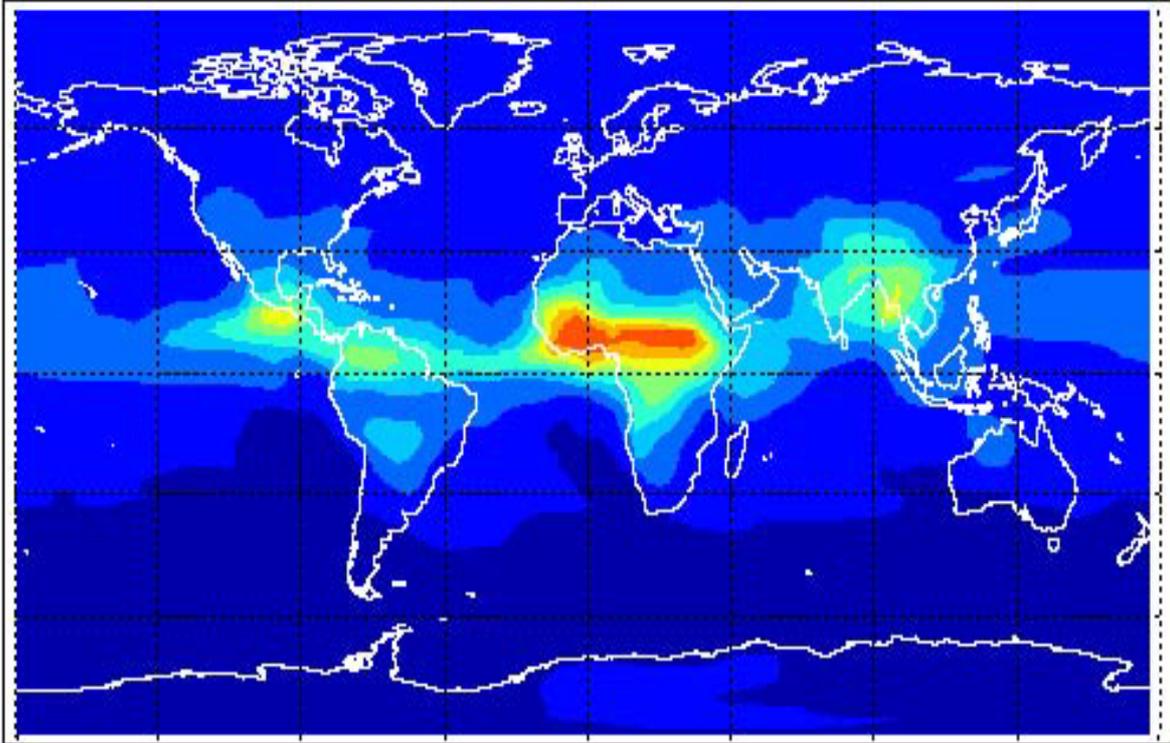
Min = 3.12e+01 Max = 2.48e+02



0 20 40 60 80 100 120 140 160 180 200 250 300

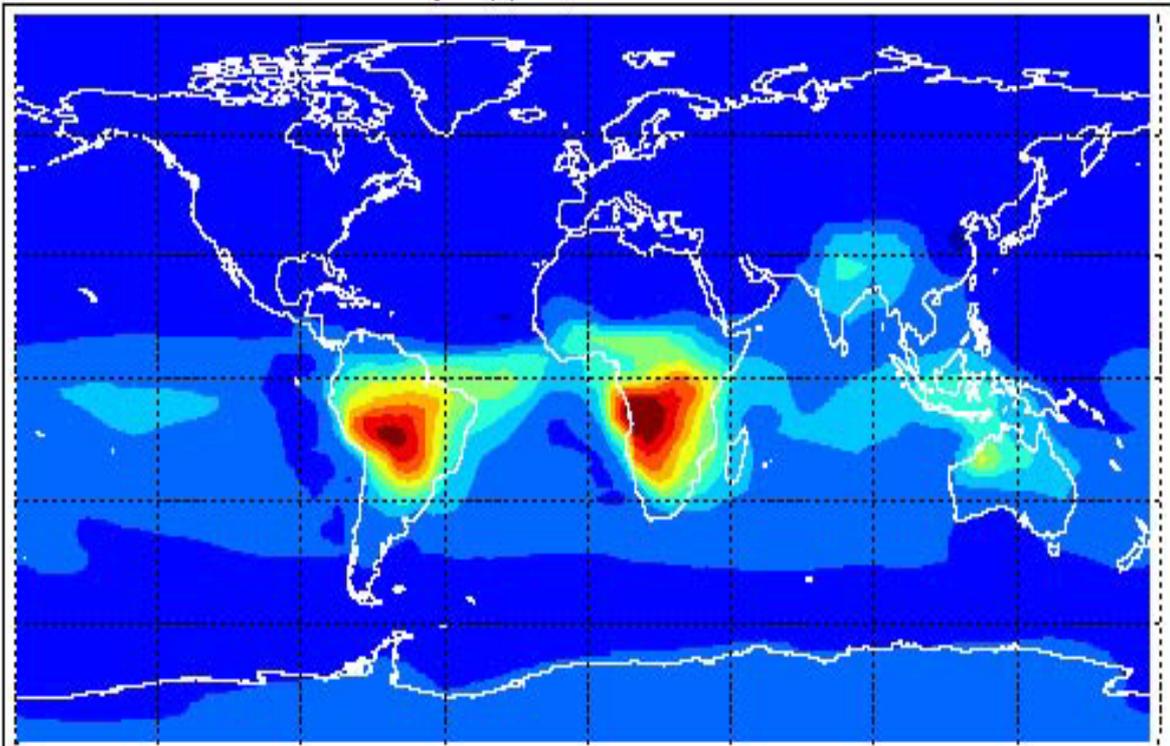
Figure 1

O3 Change (ppbv) - Surface - April



Min = 1.40e+00 Max = 1.81e+01

O3 Change (ppbv) - Surface - October



Min = 1.57e+00 Max = 2.41e+01



0.00 2.00 4.00 6.00 8.00 10.00 12.00 14.00 16.00 18.00 20.00

Figure 2

Au mois d'Octobre, l'augmentation de la concentration d'ozone est encore plus évidente. Elle dépasse d'ailleurs les variations observées en régions tropicales Nord puisqu'elle peut atteindre 22 ppbv dans le Sud-Ouest de l'Afrique et au Brésil. Une augmentation de la concentration d'ozone de 10 à 12 ppbv est notable sur la côte Nord-Ouest de l'Australie qui est également concernée par la pratique de brûlage de la végétation mais, on l'a vu précédemment, dans une moindre mesure.

Si l'on observe maintenant les émissions globales de CO par brûlage de la végétation calculées à partir des inventaires de *Hao & Liu 1995* et *EDGAR figure 3* on retrouve la même distribution spatiale que dans le cas des variations des concentrations de CO et d'ozone à la surface : En Avril, les émissions de CO par combustion de la biomasse sont fortes en Afrique et Amérique Centrale et en Indonésie, pouvant atteindre 3000 kg/km²/mois. En Octobre, ces émissions sont présentes dans les grandes terres du Brésil et de l'Afrique tropicale du Sud de l'Equateur. On note également de plus faibles émissions de CO entre 500 et 1000 kg/km²/mois en Australie.

On peut donc voir, à partir de ces cartes de variations de CO et d'ozone que l'influence sur les concentration en surface est très importante puisqu'elle peut atteindre une croissance des concentrations de 22 ppbv dans le cas de l'ozone et de 250 à 300 ppbv dans le cas du CO. On peut donc réaliser combien le choix des inventaires introduits dans le modèle est primordial puisqu'il conditionnera directement les estimations des variations des concentrations d'ozone. La plus grande attention doit être portée sur l'analyse des inventaires disponibles.

Notons aussi qu'en surface, les variations de concentrations d'ozone et de CO sont uniquement localisées autour des régions de brûlage. Il est important de savoir si, à l'échelle de la troposphère globale, seules ces régions sont concernées, ou si les régions de plus hautes latitudes peuvent être touchées par ces modifications de la chimie troposphérique et des concentrations d'ozone. Pour cela, nous disposons des cartes de colonne totale d'ozone, intégrée entre le sol et la tropopause ainsi que des moyennes zonales de concentrations d'ozone.

2) Variations de concentration d'ozone à l'échelle globale :

Les cartes de colonne d'ozone troposphérique et de moyenne zonale des variations des concentrations d'ozone sont présentées pour les mois de Janvier, Avril, Juillet et Octobre soit un mois caractéristique de chaque saison *figures 4 et 5*. Il est à noter à nouveau qu'il ne s'agit pas des concentrations d'ozone mais des variations de ces concentrations par la prise en compte des émissions de CO, NO_x et CH₄ par combustion de la biomasse.

On voit que les variations maximales d'ozone ne sont plus localisées autour des seules régions de combustion mais s'étendent à une plus large échelle, contaminant des zones où aucune pratique de brûlage n'existe *figure 4*. En Janvier, les plus fortes augmentations des concentrations d'ozone troposphérique sont localisées dans les régions tropicales de l'Afrique situées au Nord de l'Equateur. Mais ces zones s'étendent bien au-delà du continent puisqu'on note des augmentations de 5 à 10 DU en plein Océan Atlantique, et de 5 à 6 DU au Brésil alors qu'aucune émissions de CO (on peut le voir sur les cartes d'émissions de CO par combustion de végétation dans les inventaires de *Hao & Liu* et *EDGAR*) par brûlage n'intervient à cette époque de l'année. En Avril, considéré comme le mois de pic de combustion dans les inventaires utilisés ici, pour les régions tropicales Nord, les variations de concentrations d'ozone troposphérique sont notables à une échelle encore plus large : toute la bande tropicale du Nord de l'Equateur est marquée par une forte concentration d'ozone, dans des proportions plus ou moins grandes, cette influence étant la plus faible dans les régions diamétralement opposées à l'Afrique.

Combustion de la biomasse: Emissions de CO dans LMDz/INCA

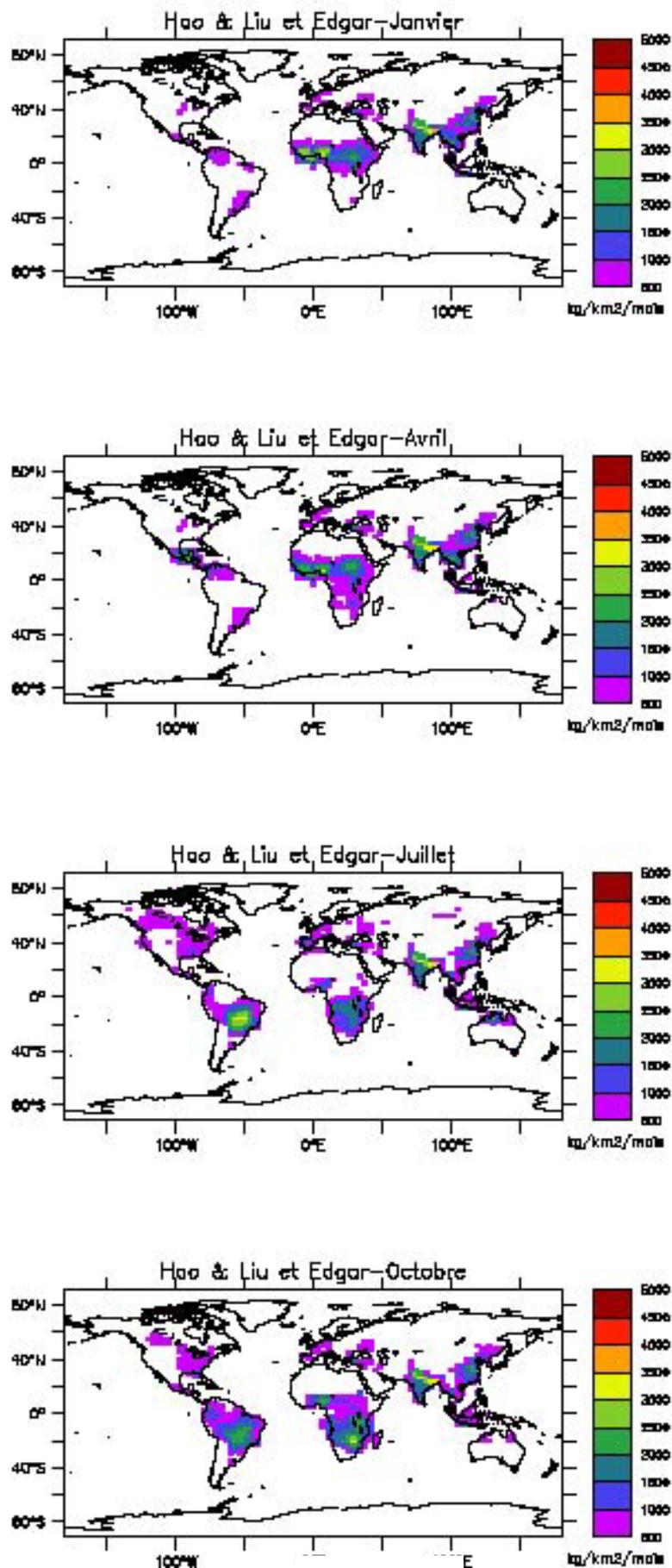


Figure 3

La zone de plus forte variation, supérieure à 10 DU s'est également très étendue : alors qu'en Janvier elle était située uniquement au-dessus du continent, elle s'étend maintenant sur plusieurs milliers de kilomètres, du milieu de l'Atlantique jusqu'en Afrique Centrale. En effet le CO, abondamment produit durant cette période, possède un temps de résidence assez long dans la basse troposphère : les mouvements d'advection et de convection très intenses vont donc le porter vers des régions éloignées des régions d'émissions.

On voit donc qu'à partir d'émissions de CO par brûlage localisées en Afrique tropicale Nord, en Indonésie et en Amérique Centrale principalement, on aboutit à une augmentation des concentrations d'ozone troposphériques sur toutes les régions tropicales du Nord de l'Equateur, touchant également les zones maritimes de l'Atlantique, du Pacifique ou de l'Océan Indien. En Juillet et Octobre, ces modifications se déplacent progressivement dans les régions tropicales du Sud de l'Equateur. En Juillet le brûlage est encore pratiqué en Indonésie mais de façon beaucoup moins intensive : les variations des concentrations d'ozone obtenues sont donc moins fortes qu'en Avril. Le brûlage n'est plus pratiqué à cette époque en Afrique tropicale Nord, les variations d'ozone sont beaucoup moins élevées que celles observées précédemment alors qu'au Brésil, c'est le début de la saison de brûlage : les variations des concentrations d'ozone évoluent de 4 DU à 8 DU. En Octobre, pic de combustion dans les régions tropicales Sud impliquant de fortes émissions de CO considérées dans les inventaires de *Hao & Liu* et *EDGAR*, les variations d'ozone sont très élevées comparativement aux situations précédentes et sur des régions plus vastes. Des variations maximales de 14 DU sont calculées. Les $\frac{3}{4}$ du continent australien sont également touchés par de fortes augmentations d'ozone allant jusqu'à 9 DU environ, alors que les émissions de CO par brûlage considérées dans les inventaires utilisés ici ne sont localisées que ponctuellement sur la côte Nord de l'Australie. Les variations des concentrations cumulées d'ozone troposphérique au-dessus de l'Océan Atlantique sont aussi très fortes atteignant le niveau de croissance observé à proximité des régions de combustion, en Afrique tropicale du Sud de l'Equateur.

On réalise donc combien l'influence des émissions de CO par brûlage de la biomasse est forte, atteignant toutes les régions tropicales. La surface n'est pas seule affectée puisque toute la colonne troposphérique répond aux perturbations appliquées en surface. Les cartes de concentration d'ozone, moyennée selon la longitude, permettent également de visualiser cette influence *figure 5*. On note bien la distribution saisonnière des plus fortes concentrations d'ozone : Avril et Juillet dans les régions tropicales de l'Hémisphère Nord et Janvier et Octobre pour les régions tropicales de l'Hémisphère Sud. L'influence aux régions de plus hautes latitudes apparaît également : on voit que les panaches de concentrations d'ozone de l'ordre de 7 ppbv dépassent les régions tropicales en Octobre et atteignent les régions de 50° de latitude Nord. En Juillet, les régions situées bien au-delà de 50) de latitude Nord sont également touchées par des concentrations d'ozone de plus de 9 ppbv. Toutes ces observations mettent bien en évidence le transport vigoureux existant dans les régions tropicales.

L'influence des émissions de CO, CH₄ et NO_x sur le bilan de l'ozone troposphérique est donc indéniable : les régions concernées en premier lieu à la surface sont directement corrélées à la distribution des émissions considérée dans les inventaires. Cette perturbation trouve son origine dans les différents mécanismes photochimiques qui s'établissent dans la troposphère, mettant en jeu les gaz précurseurs de l'ozone dont certains sont considérés dans les inventaires utilisés comme CO, CH₄ et NO_x. Outre l'importance de la validité des émissions de ces gaz par brûlage dans les inventaires, il est fondamental d'aboutir à une prise en compte plus complète des différents gaz émis par combustion de la biomasse. Ces gaz intervenant dans le cycle de l'ozone par les mécanismes chimiques vus précédemment, ils sont à même de modifier la distribution de l'ozone non seulement dans les régions tropicales mais aussi dans

les régions de plus hautes latitudes et ce dans toute la troposphère : même si les perturbations ont lieu en surface par l'intermédiaires des émissions de gaz traces par brûlage de végétation, c'est le cycle de l'ozone sur toute la hauteur de la troposphère qui est affecté. Les prochaines étapes consisteront donc à comparer les inventaires disponibles pour déterminer lesquels sont les plus représentatifs de la distribution spatiale et temporelle de la pratique de brûlage. Nous pourrons ensuite, à partir des inventaires choisis, introduire les émissions des gaz non pris en compte jusque là, permettant une détermination plus juste du bilan de l'ozone troposphérique.

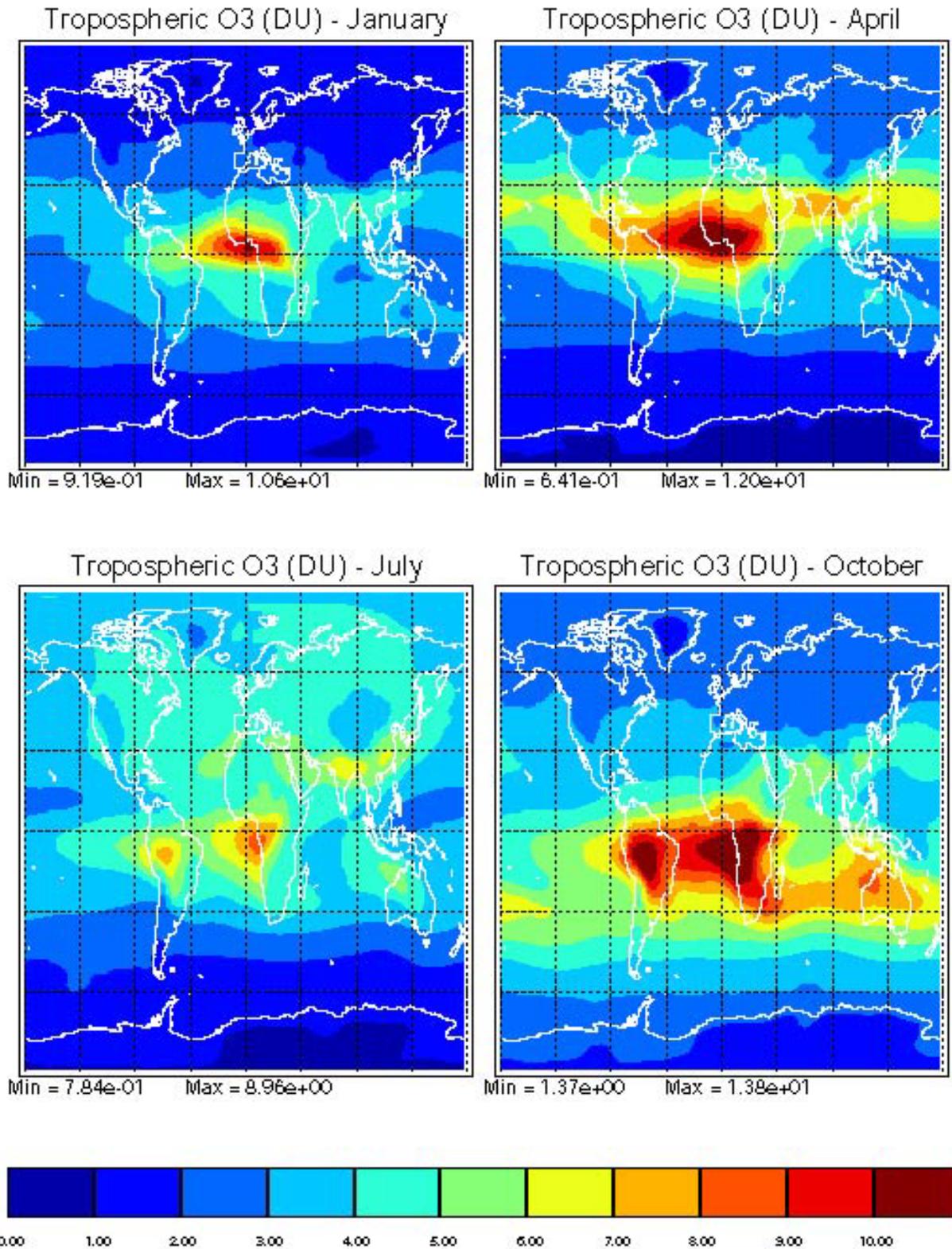


Figure 4

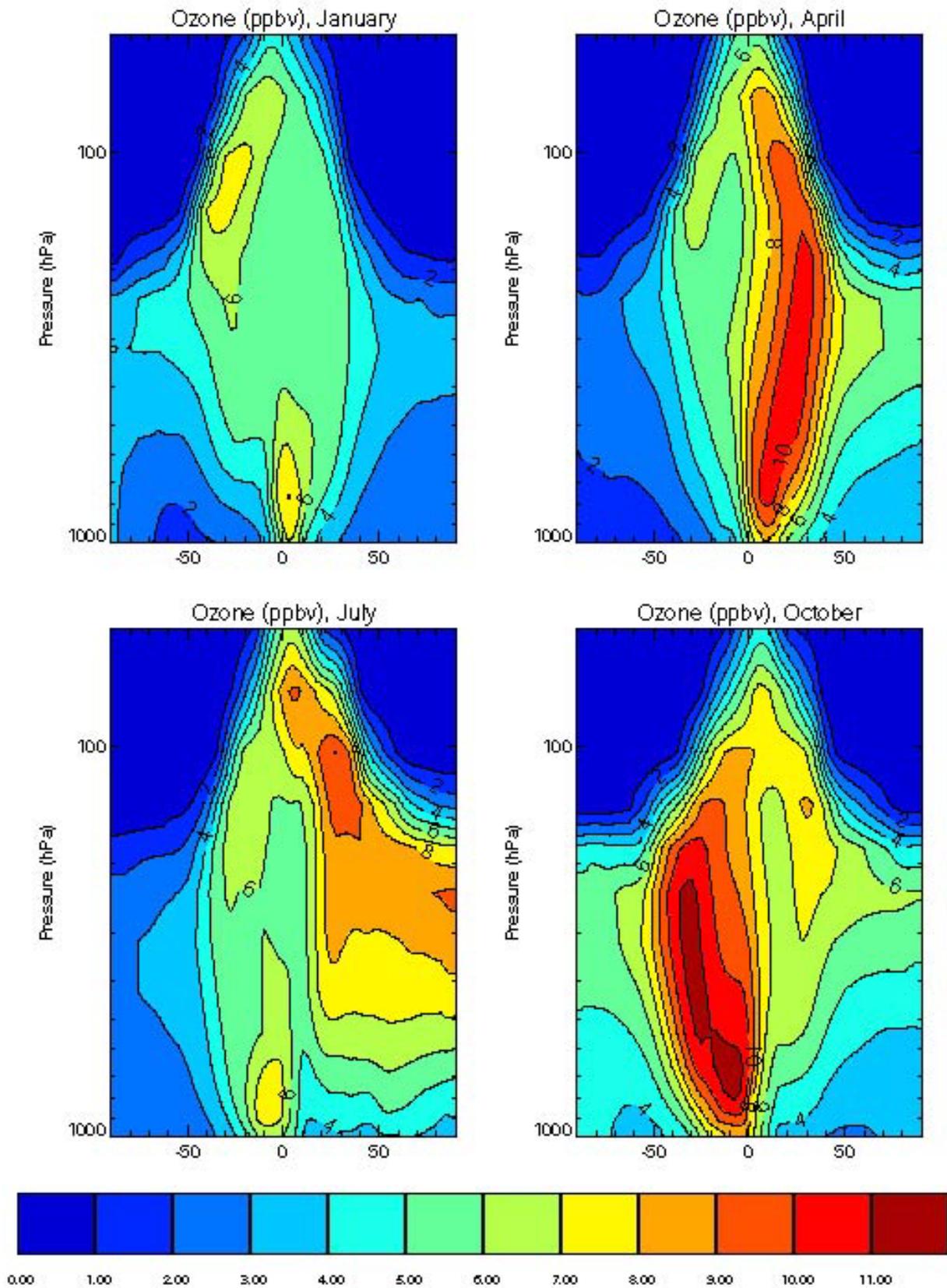


Figure 5

Chapitre 3

Une étape importante, dans le cadre de la prise en compte des différentes émissions dues au brûlage de la végétation, est l'analyse des inventaires disponibles. Du choix des inventaires utilisés dépendra en effet la détermination de l'ozone troposphérique et donc l'analyse de l'impact des émissions de polluants par combustion de biomasse sur le bilan de l'ozone troposphérique.

Dans un premier temps, nous comparerons les inventaires existant pour les différentes catégories de brûlage de la biomasse soient :

- *brûlage de la savane
- *brûlage des forêts tropicales
- *brûlage des forêts boréales
- *agriculture et brûlage des déchets agricoles
- *utilisation domestique de combustible d'origine naturelle.

Le brûlage de la biomasse s'accompagne, on l'a vu précédemment, de fortes émissions de gaz traces et en premier lieu de CO. Nous choisissons donc de mener cette étude à partir du constituant émis majoritairement, sachant qu'elle pourrait être étendue aux émissions des autres gaz. Nous comparerons les émissions globales annuelles ainsi que les variations saisonnières des émissions de monoxyde de carbone CO obtenues dans chacun des inventaires, nous permettant ainsi d'analyser le rythme saisonnier pris en compte. Les inventaires de *Lioussé & al.* permettant de calculer ces émissions essentiellement en régions tropicales, les émissions de monoxyde de carbone obtenues pour les différents inventaires disponibles seront comparées entre 37.5° de latitude Nord et 37.5° de latitude Sud, excepté dans le cas des forêts boréales où les émissions données correspondent aux émissions extra tropicales. Les émissions globales pour quelques espèces supplémentaires (CH₄, NO_x, BC et SO₂) obtenues à partir des inventaires de *Lioussé & al.* ou *Hao & Liu* seront également précisées.

Dans un second temps, nous évaluerons la localisation des feux donnée dans chaque inventaire : l'utilisation des données ATSR permettra de vérifier si la localisation des régions de combustion de la biomasse est juste. Le cas de l'Afrique sera utilisée plus spécialement pour effectuer cette analyse puisque c'est sur ce continent que la combustion de la biomasse est la plus importante.

1) Inventaires disponibles : caractéristiques et comparaisons :

Plusieurs groupes de recherche se sont intéressés au brûlage de la végétation et ont réalisé, à partir de séries de mesures et d'analyses statistiques, les inventaires des émissions de différentes espèces par la pratique du brûlage. La réalisation d'un nouvel inventaire nécessite bien sûr l'analyse des inventaires précédents et de leur fiabilité en fonction des mesures disponibles.

Les inventaires dont nous disposons ici sont ceux de *Lioussé & al. (1996)*, *Hao & Liu (1994)*, *EDGAR* et *Müller (1992)*, chaque inventaire pouvant être utilisé pour certaines catégories de brûlage de la biomasse. Les données de *Lavoué (2000)* sont également utilisées à titre indicatif même si aucun inventaire n'est encore disponible. Il est à noter également que les inventaires de *EDGAR* et *Müller* donnent directement les valeurs des émissions pour le composé étudié alors que ceux de *Lioussé & al.* et *Hao & Liu* contiennent les émissions de CO₂, les émissions de l'espèce considérée étant calculées dans le pré-processeur INCAsflx par l'intermédiaire du facteur d'émission de l'espèce (le facteur d'émission étant le rapport,

supposé constant entre les émissions de CO₂ et les émissions de l'espèce considérée). Enfin, la résolution temporelle des inventaires de *EDGAR* est de l'ordre de l'année : aucune variation saisonnière n'est donc prise en compte.

Nous utilisons ici les graphes de variations saisonnières (figures 7 à 11) et d'émissions globales de CO (figure 6).

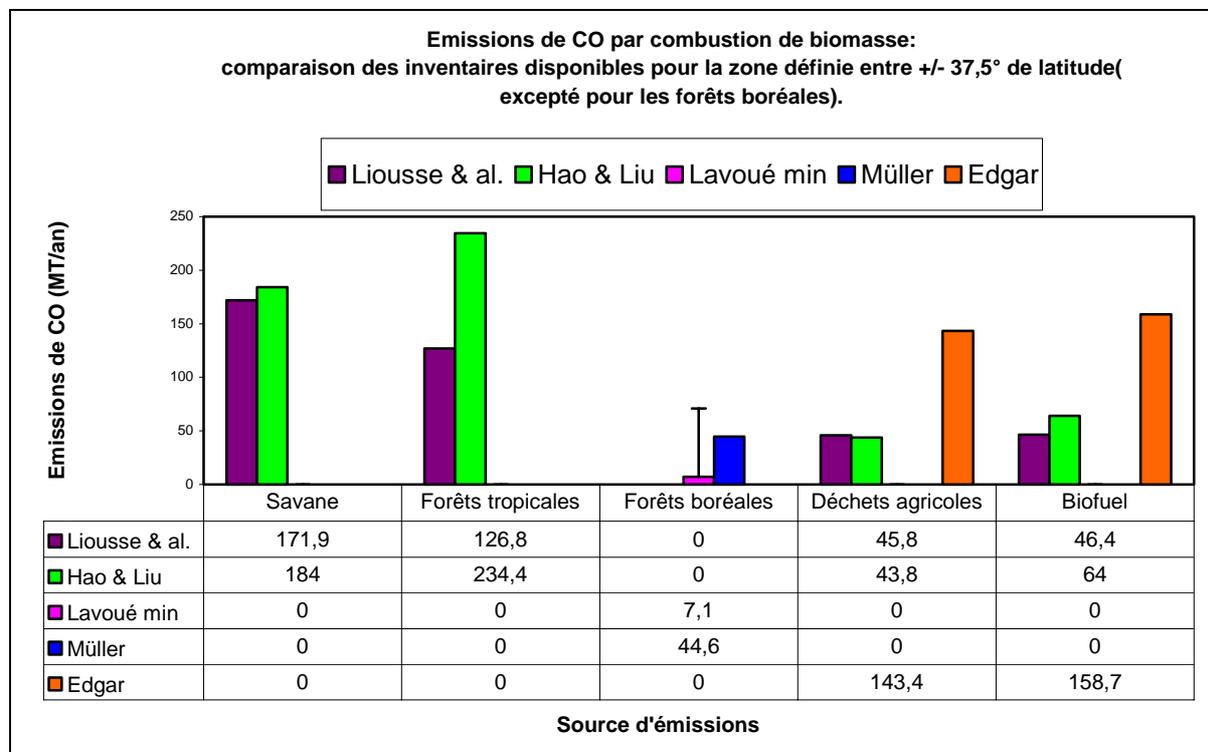


Figure 6

A titre indicatif, nous donnons également les émissions globales des espèces CO, CH₄, NO_x, BC, SO₂ et NMHC obtenues en utilisant indépendamment les inventaires de *Liousse & al.* ou *Hao & Liu* pour le brûlage en régions tropicales (+/-37.5° de latitude) associés aux inventaires de *Müller* pour le brûlage des forêts boréales.

Tableau 2 Emissions globales dans les inventaires de Liousse & al.(Hao & Liu) et de Müller.

	Savanes	Forêts tropicales	Forêts boréales	Déchets agricoles	Biofuel
CO MT de CO/an	171.9 (184)	126.8 (234.4)	44.6	45.8 (43.8)	46.4(64)
CH₄ MT de CH4/an	6.1 (6.5)	8.3 (15.3)	1.9	1.3 (1.3)	5.1 (5.0)
NO_x MT de N/an	4.8 (5.1)	0.91 (1.7)	0.58	0.58 (0.56)	0.17 (0.42)
BC MT de BC/an	1.3 (1.3)	0.8 (1.5)	0.25	0.34 (0.33)	0.18 (0.48)
SO₂ MT de S/an	0.46 (0.49)	0.35 (0.64)	0.21	9.9E-2 (9.5E-2)	3.9E-2 (0.11)
NMHC MT de C/an	14.7 (15.7)	13.1 (24.01)	5.1	4.9 (4.7)	4.1 (11.1)

1.1) Brûlage de la savane :

Les inventaires permettant la détermination des émissions de CO par le brûlage de la savane sont ceux de *Lioussse & al.* et *Hao & Liu*. Ceux de *Hao & Liu 1994* sont une correction des inventaires de *Hao & al. 1990* où la savane était considérée comme étant nettoyée chaque année, impliquant ainsi de très fortes émissions. Cette vision a été corrigée en 1994 par *Hao & Liu*, aboutissant aux inventaires pour la savane présentés ici. Les inventaires de *Lioussse & al.* sont une réévaluation des inventaires de *Penner & al. 1991*, eux-mêmes réalisés à partir des inventaires de *Hao & al. 1990*, et prennent également en compte de nouveaux résultats expérimentaux. Une attention particulière a été portée sur le brûlage en Afrique, considérant que 55% de la savane au lieu de 75% sont soumis au brûlage chaque année, estimation également présente dans les inventaires de *Hao & Liu. 1994*.

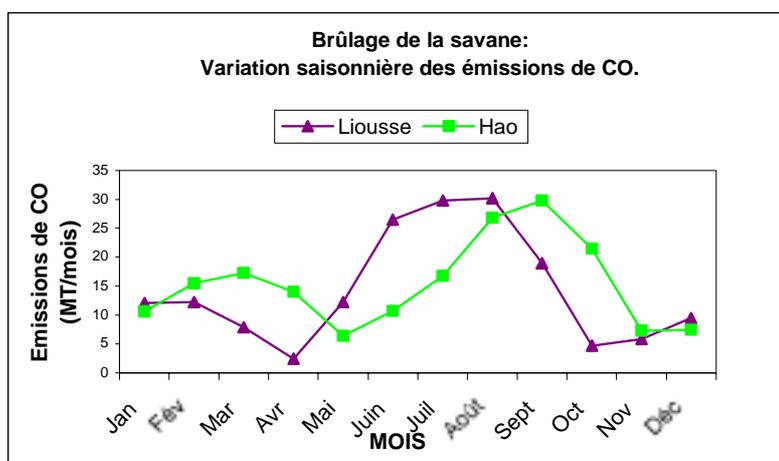


Figure 7

Concernant les émissions globales annuelles de CO présentées *figure 6*, la différence entre les deux inventaires est faible : ces émissions sont de 172 MT/an si l'on considère l'inventaire de *Lioussse & al.* et de 184 MT/an si l'on utilise l'inventaire de *Hao & Liu*. Un désaccord plus important apparaît dans l'analyse des variations saisonnières présentées *figure 7*, les pics d'émissions de CO apparaissant en Mars et Septembre dans le cas de *Hao & Liu* et en Janvier et Août dans le cas de *Lioussse & al.* L'amplitude des variations des émissions de CO au cours de l'année est très proche dans les deux cas. Dans le cas du brûlage de la savane, les inventaires disponibles s'accordent donc bien sur l'ampleur de ces émissions, la saisonnalité adoptée est par contre sensiblement différente.

1.2) Brûlage des forêts tropicales :

Ce sont les mêmes groupes de recherche que dans le cas précédent qui ont réalisé les inventaires disponibles. Les inventaires de *Hao & Liu 1994* concernant le brûlage des forêts tropicales sont basés sur les inventaires de *Hao & al. 1990* dont les émissions ont été augmentées fortement. Les inventaires de *Lioussse & al.* ont été construits à partir des inventaires de *Hao & al. 1990* qui n'ont quasiment pas été modifiés. La différence entre ces deux inventaires étudiés ici apparaît beaucoup plus nettement pour les émissions globales, *figure 6*, puisque les émissions de CO par brûlage des forêts tropicales atteignent 234 MT/an dans le cas de *Hao & Liu* et seulement 127 MT/an dans le cas de *Lioussse & al* soit une

différence considérable de 100%. Les émissions prévues par *Hao & Liu* restent donc très supérieures à celles de *Lioussé & al* et ce tout au long de l'année. Le décalage relevé précédemment dans les variations saisonnières est ici moins fort puisque les pics d'émissions visibles *figure 8* sont obtenus en Mars et Septembre pour *Hao & Liu* et en Février et Août pour *Lioussé & al*, soit un décalage d'un mois seulement. L'inventaire, plus récent, de *Lioussé & al* concernant le brûlage des forêts tropicales semble donc estimer ces émissions dans des proportions beaucoup faible qu'il ne l'a été fait précédemment.

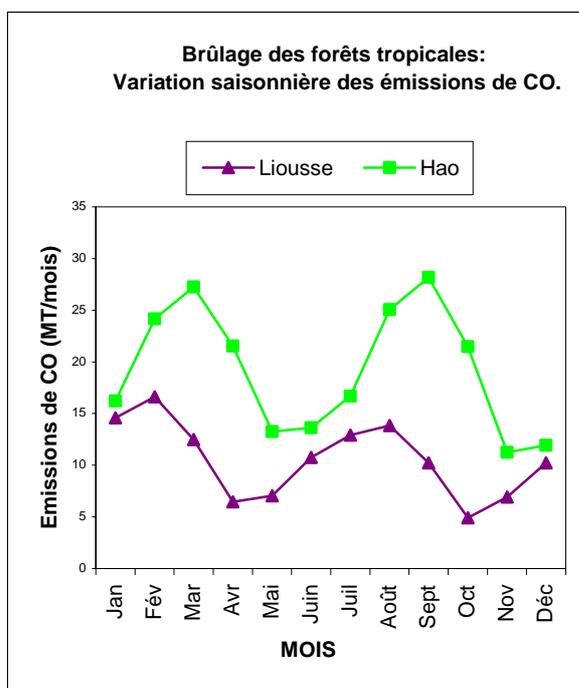


Figure 8

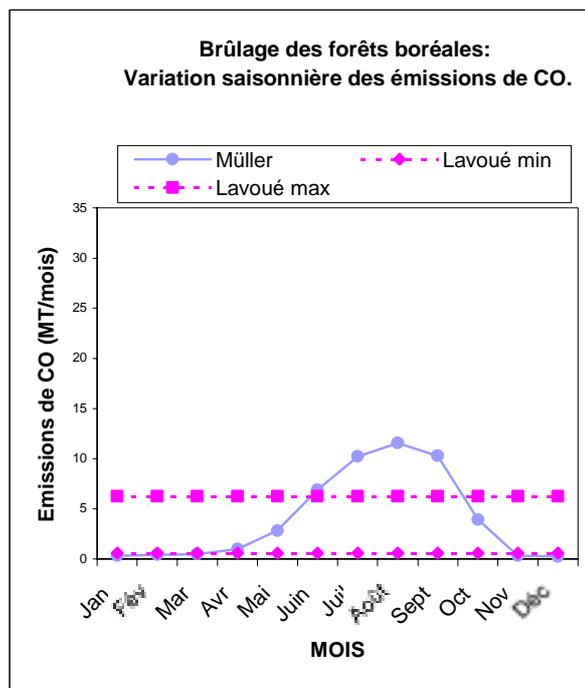


Figure 9

1.3) Brûlage des forêts boréales :

Seul l'inventaire réalisé par *Müller 1992* est disponible. L'étude menée par *Crutzen & al. 1989* a été utilisée pour réaliser cet inventaire, prenant en compte de nouvelles contributions au brûlage de la végétation. De nombreuses données statistiques ont permis de déterminer les surfaces de forêts brûlées notamment pour les pays de l'Europe de l'Est et de l'OECD (Organisation of Economic Cooperation and Development) comprenant les Etats-Unis, le Canada, l'Europe de l'Ouest, le Japon, l'Australie et la Nouvelle-Zélande. La valeur calculée pour *Lavoué* est donnée à titre indicatif elle a été déterminée à partir des estimations de quantités de biomasse brûlée données dans sa Thèse (*Lavoué, 3 Avril 2000*), valeurs situées entre 66 et 700 Tgdm (dry matter : matière sèche brûlée) correspondant à des émissions de CO entre 7 MT/an et 74 MT/an. Ces émissions sont marquées par une grande variabilité inter annuelle. Les émissions données dans l'inventaire de *Müller*, 45 MT/an, sont bien situées dans cet intervalle. Les variations saisonnières, *figure 9*, montrent pour l'inventaire disponible un pic de brûlage des forêts boréales en Août.

1.4) Brûlage des déchets agricoles :

Trois inventaires sont disponibles : ceux de *Lioussse & al.*, *Hao & Liu* et *EDGAR*. Concernant les émissions par brûlage des déchets agricoles, les seules données disponibles sont celles de la FAO (Food and Agriculture Organisation) donnant la production annuelle de déchets agricoles par pays, données à partir desquelles ont été réalisés les inventaires. Les inventaires *EDGAR 1996* sont également basés sur les estimations régionales des émissions de carbone réalisées par *Andreae 1991*, elles-mêmes inspirées des inventaires de *Seiler & Crutzen 1980*. Si les émissions globales de CO (*figure 6*) données par *Lioussse & al.* (46 MT/an) et *Hao & Liu* (44 MT/an) sont très proches, les valeurs données par la base de données *EDGAR* sont très différentes puisqu'elles atteignent 143 MT/an soit 3 fois supérieures aux deux autres inventaires. Une comparaison avec les inventaires de *Seiler & Crutzen 1980* (valeur globale annuelle : 184 MT/an) permet de retrouver le même écart. Seul l'inventaire de *Lioussse & al* présente des variations saisonnières des émissions de CO (*figure 10*), ce qui est un avantage certain, avec des pics de combustion donnés en Avril et Octobre.

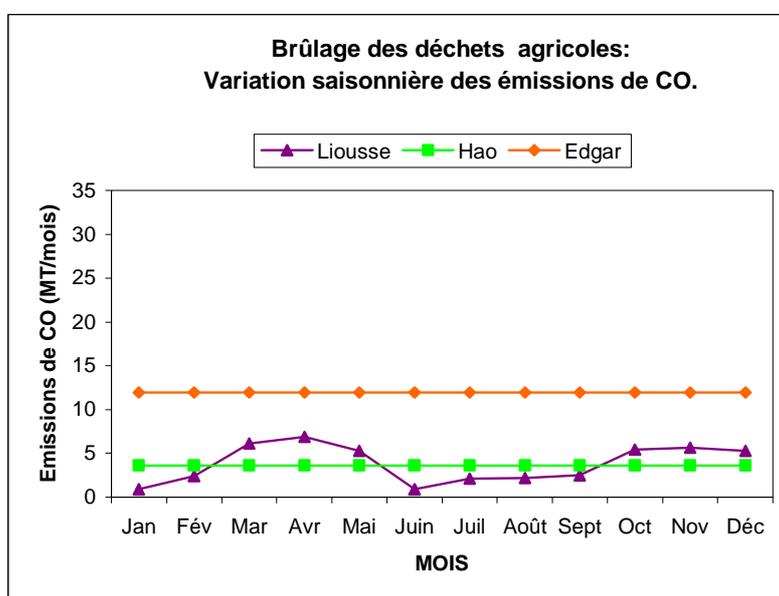


Figure 10

1.5) Brûlage domestique des combustibles naturels (bio fuel) :

Les inventaires disponibles sont également ceux de *Lioussse & al.*, *Hao & Liu* et *EDGAR*. Les inventaires de *Lioussse & al* sont une réévaluation des inventaires de *Hao & Liu 1994* : le bois a été considéré non seulement comme combustible mais aussi comme destiné à former du charbon de bois. Une nouvelle source d'émissions, non considérée jusque là, a également été introduite : le fumier dont l'utilisation est très forte particulièrement dans les pays en voie de développement comme l'Inde ou l'Ethiopie. Les inventaires de *Hao & Liu 1994* sont directement basés sur les données de *FAO Yearbook 1989* donnant la production annuelle de bio fuel à partir des différentes forêts. Les inventaires de *EDGAR* sont basés sur ceux de *Hall & al. 1994* et dans le cas où aucun inventaire n'était disponible pour un pays, les données d'un pays voisin avec le même type de végétation ont été utilisées. On retrouve *figure 6* une forte différence des valeurs globales des émissions données par *EDGAR* : elles atteignent 158 MT/an soit 3 fois plus que celles données par *Lioussse & al* (46 MT/an) ou par *Hao & Liu* (64 MT/an). Les caractéristiques saisonnières des émissions de CO dans les différents inventaires (*figure 11*) sont les mêmes que dans le cas du brûlage des déchets agricoles : prise en compte

d'une variation saisonnière dans le cas de *Lioussse & al.* uniquement, avec des maximum d'émissions de CO situés en Février et Octobre. On constate cependant que l'amplitude des variations saisonnières des émissions de CO dans le cas des inventaires de *Lioussse & al.* est très faible et ne dépasse pas une variation de +/-1MT/an environ par rapport à une valeur moyenne.

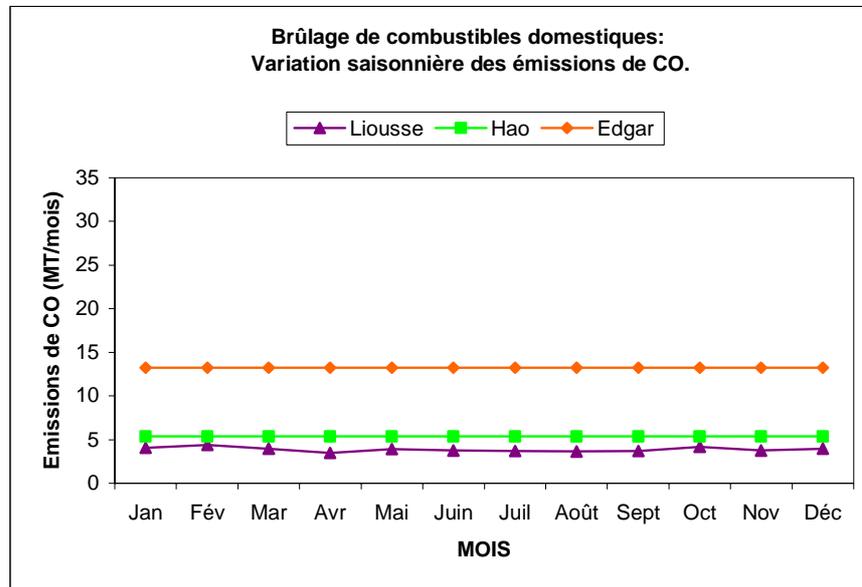


Figure 11

La description des différents inventaires disponibles semble donc montrer un bon accord des émissions globales annuelles de CO entre les inventaires de *Lioussse & al.* et *Hao & Liu* excepté dans le cas des forêts tropicales où la divergence atteint 100%. Les valeurs des émissions données par *EDGAR* sont toujours beaucoup plus fortes que celles données par les autres inventaires. L'avantage indéniable des inventaires de *Lioussse & al.* est d'offrir une variation saisonnière pour toutes les catégories de combustion de la biomasse, le cas du brûlage des forêts boréales présentant lui-aussi un caractère saisonnier dans l'inventaire de *Müller*. La prise en compte de ces variations saisonnières est prépondérante puisqu'elle conditionne directement le bilan de l'ozone troposphérique. Il existe cependant un décalage pour les pics de combustion pouvant atteindre 2 mois par rapport à ceux donnés dans les inventaires de *Hao & Liu*.

2) Localisation et intensité des émissions de CO dans les inventaires à l'échelle d'un continent : brûlage de la végétation en Afrique :

Une autre étape importante de l'évaluation des inventaires est l'analyse de la localisation de ces émissions tout au long de l'année. Nous choisissons ici le cas de la combustion de biomasse pratiquée en Afrique où, rappelons-le, près de la moitié de la biomasse totale est brûlée. Les cartes utilisées pour mener ces comparaisons sont celles des émissions totales de CO par la pratique de brûlage : elles comprennent donc les émissions par brûlage des forêts tropicales des savanes, des déchets agricoles et l'utilisation domestique de combustible d'origine naturelle. Les localisations de ces émissions seront comparées aux relevés de nuit effectués par ATSR, donnant la localisation, par mois, des feux. Rappelons que les feux d'origine autre que la brûlage de la végétation sont également relevés par cet

instrument. Cependant, ce sont les régions tropicales de l'Afrique qui nous intéressent dans le cas des émissions de CO par brûlage, régions non industrielles ou pétrolières donc ne présentant quasiment aucun autre feu que ceux dus à la combustion de la biomasse, excepté dans le cas de l'Afrique du Sud où l'industrialisation est plus développée. Ces relevés ATSR sont donnés pour les années 1997 à 2000 (excepté pour les mois de Septembre à Décembre : 1999 et 2000 puisque les relevés correspondant ne sont pas encore disponibles) afin d'avoir une localisation « moyenne » de ces feux, les émissions introduites dans le modèle n'étant pas caractéristiques d'une année particulière (et les résultats obtenus à partir d'un modèle de circulation générale sont ceux d'une année climatologique type). Les émissions données dans les inventaires de *Lioussé & al.*, *Hao & Liu* (pour toutes les catégories de brûlage) et *Hao & Liu* (pour le brûlage des savanes et des forêts) complétés de ceux de *EDGAR* (pour le brûlage des déchets agricoles et du bio fuel) seront utilisés. Les inventaires de *Hao & Liu* et *EDGAR* sont ceux pris en compte initialement dans le modèle. Face à l'écart entre les émissions données par *Hao & Liu* d'une part et par la base de données *EDGAR* d'autre part, il est apparu important de déterminer si une différence de si grande ampleur existait dans la localisation des régions concernées. Les inventaires de *Lioussé & al.*, les plus récents qui soient disponibles pour l'estimation des émissions à l'échelle globale, seront également utilisés.

Les cartes correspondantes sont présentées ci-après, pour les mois de Janvier, Avril, Mai et Novembre, figures 12 à 15. Les cartes des autres mois restant disponibles pour tout lecteur intéressé.

Il est tout d'abord important de noter que la distribution des feux relevés par ATSR ne varie pas de façon notable d'une année à l'autre, y compris pour l'année 1997 marquée par le phénomène El Nino. L'utilisation du modèle, dont le résultat est celui d'une année moyenne, est donc justifiée dans l'étude des émissions par brûlage de végétation.

De Janvier à Mars les relevés ATSR révèlent une décroissance du nombre de feux, indiquant une diminution de la pratique de brûlage de la végétation. Les émissions de CO relatives à cette pratique doivent donc diminuer également sur cette période. Or si l'on observe les émissions de CO données dans les inventaires de *Hao & Liu* et *Hao & Liu et EDGAR*, on remarque que, si les régions concernées sont globalement justes, l'intensité de ces émissions augmentent pour atteindre un maximum en Mars de plus de 4500 kg/m²/mois dans la région de la Côte d'Ivoire. Parallèlement, dans le cas des inventaires de *Lioussé & al.*, les régions concernées varient peu entre Janvier et Mars, de façon semblable aux données ATSR. Cependant, les émissions données diminuent bien à mesure que l'on approche du printemps. On peut enfin noter que quelques feux disparates observés de façon permanente sur cette période par ATSR en Afrique du Sud, dont l'origine n'est peut-être pas celle de la combustion de la biomasse, n'apparaissent que dans le cas des inventaires de *Hao & Liu et EDGAR*.

La période d'Avril à Juin est marquée par la disparition progressive des feux dans les régions tropicales du Nord de l'Equateur, et l'apparition de feux dans les régions tropicales Sud. Si l'évolution des régions tropicales Nord concernées sont assez bien représentées dans les inventaires de *Hao & Liu* et *Hao & Liu et EDGAR*, les émissions données semblent toutefois un peu trop fortes, principalement en Avril où de plus fortes émissions de CO d'environ 3000 kg/km²/mois sont visibles au niveau du Nigeria alors que les relevés ATSR n'indiquent que très peu de feux. Concernant les inventaires de *Lioussé & al.* les régions tropicales Nord concernées semblent sous-estimées. De même les feux apparaissent dans les régions tropicales Sud dès le mois d'Avril et de façon beaucoup plus franche en Mai et Juin : dans les inventaires de *Lioussé & al.* ces feux n'apparaissent que tardivement, au mois de Juin. Pour les deux autres inventaires, pratiquement aucune émission de CO n'est visible dans les régions tropicales Sud alors que les relevés ATSR indiquent un nombre de feux en Mai supérieur à celui relevé en Avril.

De Juillet à Août, les feux relevés par ATSR sont légèrement plus nombreux, les régions concernées n'étant pas modifiées de façon visibles. Cette évolution est bien représentée dans les inventaires de *Lioussé & al* et de *Hao & Liu*, les émissions de CO obtenues augmentant très légèrement dans les deux inventaires. L'utilisation des inventaires *EDGAR* pour le brûlage des déchets agricoles et du bio fuel introduit des émissions non relevés par ATSR dans la région du Nigeria, en Juillet comme en Août.

De Septembre à Décembre, on note une situation inverse à celle observée d'Avril à Juin : disparition des feux relevés dans les régions tropicales Sud et réapparition progressive de feux dans les régions tropicales Nord. Les feux sont également plus nombreux en Septembre qu'en Octobre au Sud et en Décembre qu'en Novembre au Nord. Cette évolution est bien représentée dans les inventaires de *Lioussé & al*. mais peut-être de façon un peu trop catégorique : les relevés ATSR n'indique pas une diminution si forte des feux relevés qu'il ne l'apparaît dans les émissions de CO calculées à partir des inventaires de *Lioussé & al*. entre Septembre et Octobre. Les proportions sont plus représentatives entre Novembre et Décembre et les régions concernées sont aussi assez bien prises en compte, quelques émissions disparates persistant dans les régions tropicales Sud en Novembre et Décembre n'étant cependant pas représentées. Inversement, les inventaires de *Hao & Liu* et *EDGAR* prévoient des émissions de CO par brûlage en Septembre et Octobre pour des régions où aucun feu n'a encore été détecté : c'est le cas des régions proches du Nigeria et de la Côte d'Ivoire en Septembre et des régions situées au Nord du Zaïre en Octobre. Par contre les feux détectés dans la région de l'Ethiopie et du Soudan ne sont pas représentés en Novembre. En Décembre, les trois inventaires conduisent à une estimation des émissions de CO très proches, aussi bien au niveau de la localisation que de l'intensité des émissions.

On peut donc voir combien l'analyse conjointe des variations saisonnières et des localisations spatiales des émissions de CO données dans les inventaires est prépondérante, permettant d'évaluer aussi bien la cohérence de la distribution de ces émissions à l'échelle d'un continent que l'évolution saisonnière. Si aucun inventaire présenté ici n'est totalement faux, il est important de déterminer lequel permettra d'estimer au mieux le bilan de l'ozone troposphérique. La prise en compte des inventaires *EDGAR* est une source trop forte d'erreur, aussi bien au niveau de l'intensité des émissions que de leur localisation. Les inventaires de *Hao & Liu* et de *Lioussé & al*. semblent complémentaires au niveau de la localisation des émissions en dehors de la saison de forte pratique du brûlage. Cependant, les inventaires de *Lioussé & al*. ont l'avantage indéniable d'introduire une variation saisonnière pour toutes les sources d'émissions. Les pics de combustion y apparaissent également à des périodes plus justes comparativement aux relevés ATSR.

L'objectif est maintenant de compléter les émissions dues au brûlage de la végétation prises en compte dans le modèle. La prochaine étape consiste donc à répertorier les différents gaz émis par combustion de la biomasse, notamment les NMHC, pour les introduire dans le module INCA_{sflx}. Les inventaires de *Lioussé & al* pourront être utilisés à terme pour calculer les émissions des gaz nouvellement considérés.

Emissions de CO par combustion de biomasse

Janvier

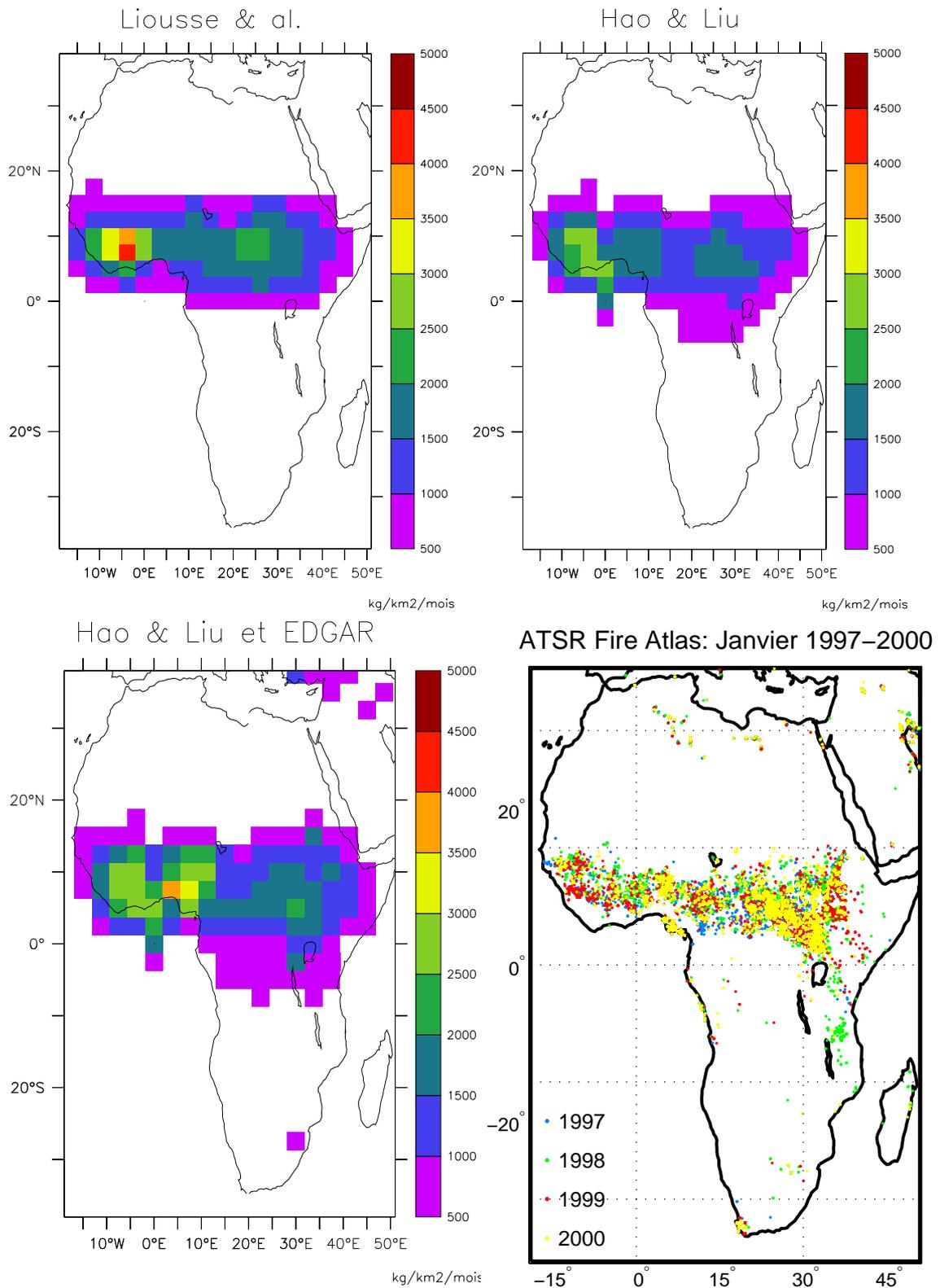


Figure 12

Emissions de CO par combustion de biomasse

Avril

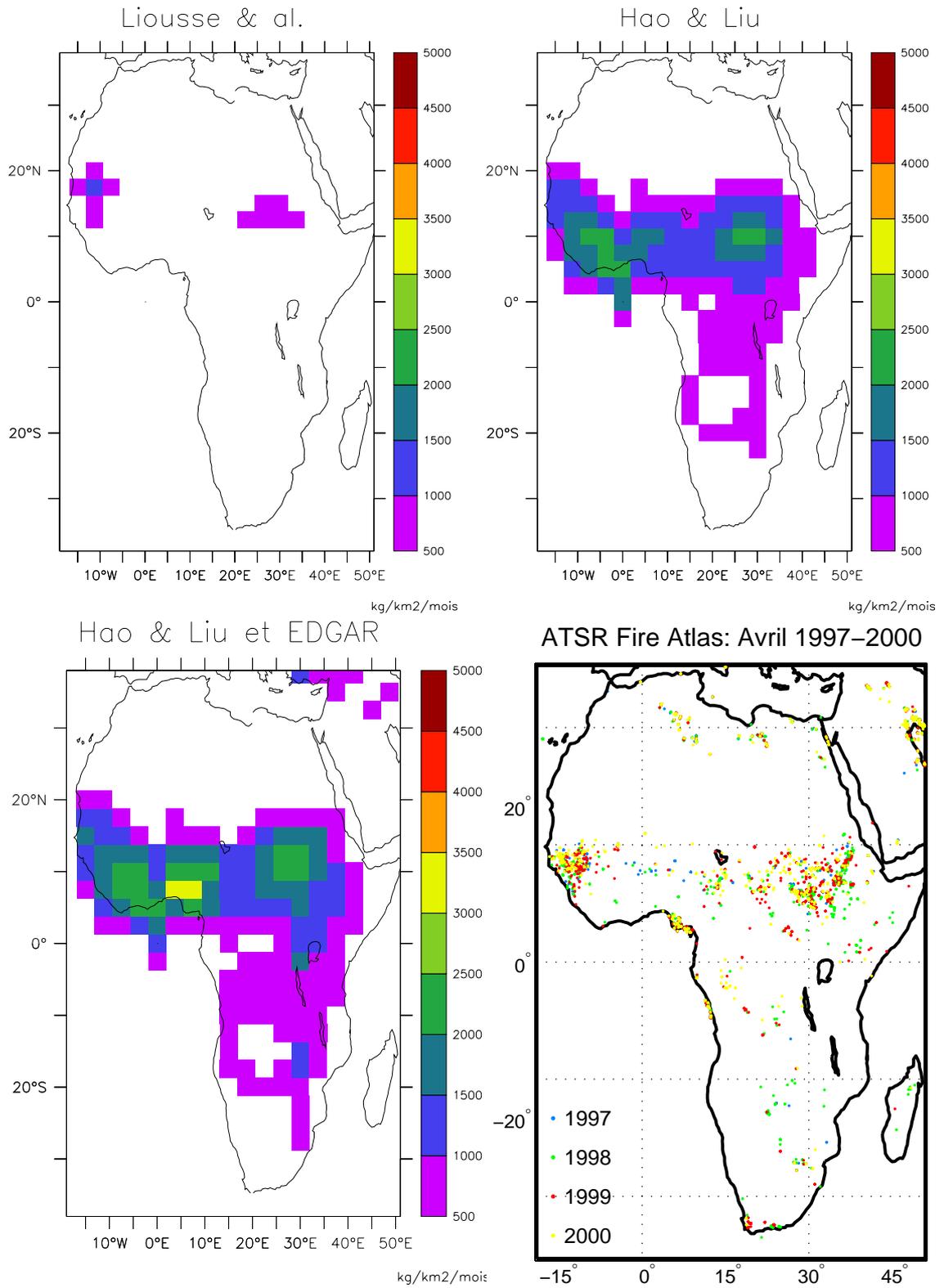


Figure 13

Emissions de CO par combustion de biomasse

Mai

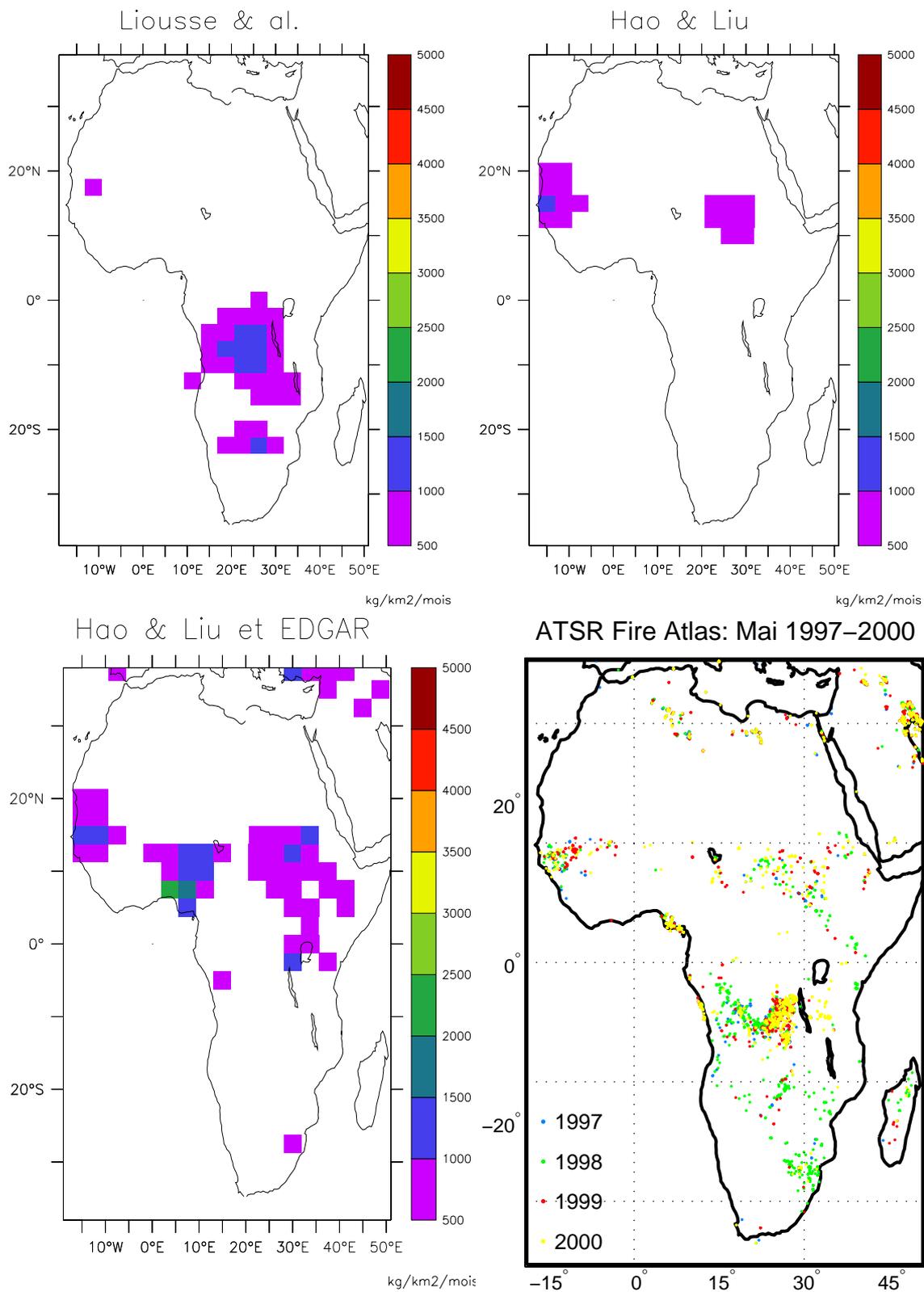


Figure 14

Emissions de CO par combustion de biomasse

Novembre

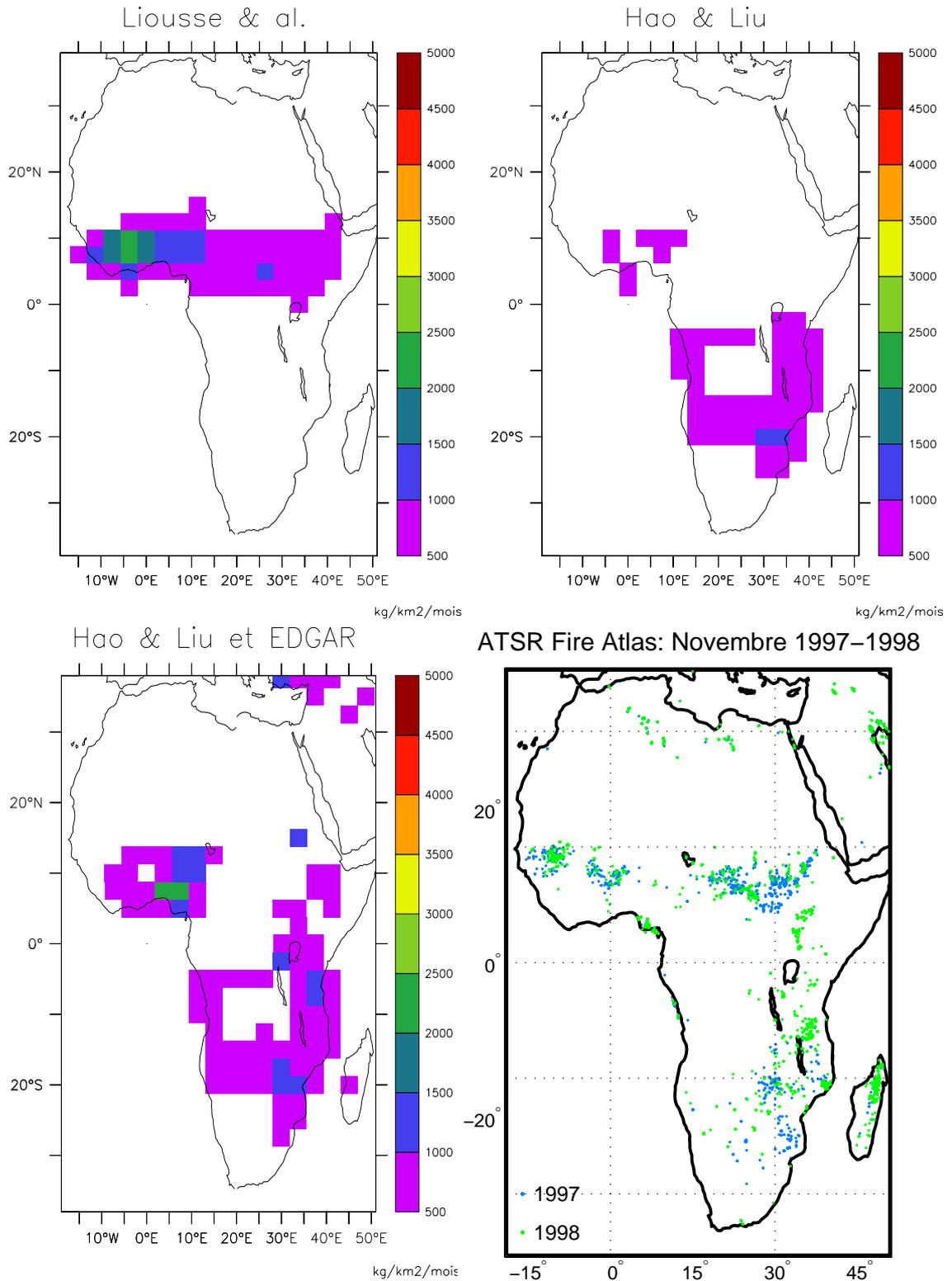


Figure 15

Chapitre 4

Afin d'assurer la prise en compte du plus grand nombre de gaz traces émis par brûlage de la végétation, cette prise en compte conditionnant directement le calcul des concentrations d'ozone troposphérique par le modèle LMDz-INCA, il est important de répertorier quels sont les gaz émis par cette pratique. L'étude récente menée par *Andreae & Merlet, 2000*, présente de façon extrêmement détaillée une liste des espèces émises pour chaque catégorie de combustion de la biomasse, soient le brûlage de la savane, le brûlage des forêts tropicales et boréales, l'utilisation domestique de combustible naturel, les émissions dues à la fabrication et au brûlage du charbon et le brûlage des déchets agricoles. Nous utiliserons cet article pour apporter une prise en compte plus détaillée des espèces dans le modèle LMDz-INCA, les inventaires réalisés par *Lioussé & al. 1996* étant choisis pour le calcul des émissions pour toutes les catégories de brûlage excepté pour le brûlage des forêts boréales, assuré par les inventaires de *Müller 1992*. Nous pourrions ainsi obtenir des informations précieuses notamment sur les émissions de NMHC par brûlage, non prises en compte auparavant.

L'article de *Andreae & Merlet, 2000* apporte, pour chaque espèce émise par combustion (CO₂, CO, CH₄, NO_x et de très nombreux NMHC) les facteurs d'émissions en gramme de l'espèce considérée par kilogramme de matière sèche brûlée. Les inventaires de *Lioussé & al. 1996* dont nous disposons donnent, pour chaque catégorie de brûlage présentée précédemment, la quantité M de surfaces brûlées en Tgdm. Le calcul de cette quantité M s'effectue à partir de la formule suivante, donnée notamment par *Seiler & Crutzen 1980* :

$$M=A * B * c * d$$

M=quantité totale de biomasse brûlée

A=surface totale de terre brûlée

B=densité de matière organique dans l'écosystème considéré

c=fraction de la biomasse totale située au-dessus du sol

d=efficacité du brûlage pour la biomasse située au-dessus du sol

Afin de pouvoir calculer à partir de ces inventaires les émissions pour les différentes catégories de brûlage pour toutes les espèces énumérées dans l'article d' *Andreae & Merlet*, nous allons utiliser le principe du facteur d'émission d'une espèce relatif aux émissions de CO₂ :

$$F= X(\text{g/kg de matière sèche brûlée})/\text{CO}_2(\text{g/kg de matière sèche brûlée})$$

F représente donc la quantité de l'espèce X émise par rapport à la quantité de CO₂.

Dans un premier temps, la notion de facteur d'émission a été utilisée pour calculer les émissions de CO₂ à partir des inventaires de *Lioussé & al. 1996* et dans un second temps, le facteur d'émission relatif au CO₂ a été calculé pour déterminer les émissions de toutes les espèces introduites.

Près de 70 espèces ont ainsi été réparties en 15 familles correspondant entre autre aux espèces génériques considérées dans le module INCA pour les composés de plus de 4 atomes de carbone. Les facteurs d'émissions relatif au CO₂ ont ainsi été calculés pour chaque famille et pour chaque catégorie de brûlage. Ce calcul est prépondérant puisqu'il permet l'exploitation des inventaires de CO₂ disponibles et le calcul des émissions des nouvelles espèces

considérées notamment des nombreux NMHC émis. En accord avec les variations saisonnières présentes dans les inventaires de *Lioussé & al.*, l'évolution mensuelle des émissions de toutes les espèces incluses pourra donc être obtenue.

Tableau 3 Nous présentons ici le tableau des émissions globales annuelles obtenues pour toutes les familles et pour toutes les catégories de brûlage à partir des inventaires inclus dans la version finale de INCAsflx :

**en régions tropicales, définies entre -37.5° et +37.5° de latitude, utilisation des inventaires de Lioussé & al. 1996 pour toutes les catégories de brûlage*

**en régions extra tropicales, utilisation des inventaires EDGAR pour les catégories « agriculture » et « biofuel », de Hao & Liu 1994 pour la catégorie « savane » et de Müller 1992 pour la catégorie « forêts boréales ».*

CO est donné en MT de CO/an, CH₄ en MT de CH₄/an, NO_x en MT de N/an, SO₂ en MT de S/an et les NMHCs en MT de C/an.

Espèces	Agriculture	Biofuel	For. Bor.	For. Trop	Savane	TOTAL
CO	110	57.8	44.6	126.8	171.8	511
CH ₄	6.7	6.	1.9	8.3	6.1	29
NO _x	1.3	0.3	0.58	0.91	4.8	7.88
SO ₂	0.1	6.4E-2	0.21	0.35	0.46	1.174
ALCOOLS	1.3	0.4	0.37	1.1	1.5	4.67
ETHANE	0.7	0.4	0.19	1.2	0.7	3.19
PROPANE	0.3	0.14	8.5E-2	0.15	0.19	0.865
ALKANS	0.66	0.14	0.13	0.21	0.39	1.53
ETHENE	1.1	0.63	0.40	2.1	1.8	6.03
PROPENE	0.67	0.27	0.21	0.57	0.58	2.3
ETHYNE	0.38	0.26	0.10	0.45	0.71	1.9
ALKENS	0.84	1.1	0.81	1.8	1.8	6.35
AROMAT.	2.5	1.7	0.49	0.88	1.1	6.67
METHANAL	0.32	4.8E-2	0.37	0.68	0.37	1.788
ALKANALS	0.5	0.13	0.28	0.72	0.99	2.62
ACETONE	0.21	2.4E-2	0.14	0.47	0.71	1.554
MEK	0.42	0.15	0.37	1.1	1.4	3.44
MVK	0.21	7.5E-2	0.19	0.51	0.68	1.665
ACIDES	0.71	0.47	0.95	1.4	1.8	5.33
TOTAL NMHC	10.82	5.397	5.085	13.34	14.72	49.902

Les variations saisonnières des émissions de CO considérées dans la version finale du pré-processeur INCAsflx. sont présentées pour toutes les catégories de brûlage (*figure 16*). Les valeurs données représentent les émissions en régions tropicales et extra tropicales cumulées.

On peut voir que le brûlage des forêts et des savanes impliquent les plus fortes émissions de CO et sont également caractérisées par une variation saisonnière très marquée. Avec des pics de combustion en Février et en Août. Le brûlage des déchets agricoles et des combustibles naturels est beaucoup plus régulier tout au long de l'année. On a vu en effet que les combustibles d'origine naturelle sont largement utilisés dans les pays en voie de développement pour la cuisine, pratique régulière.

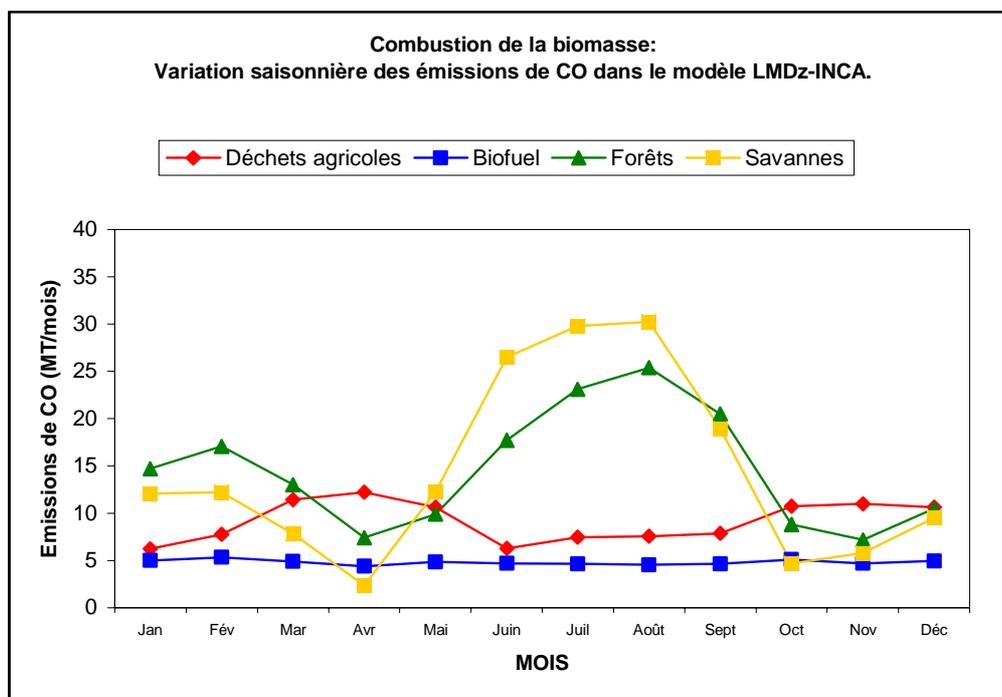


Figure 16

L'analyse des cartes d'émissions de CO mensuelles à l'échelle du monde (*figures 17 à 20*), permet également de bien visualiser les variations saisonnières d'un pays à l'autre au fil des mois. On peut ainsi remarquer le décalage progressif de la pratique de brûlage des régions tropicales du Nord de l'Equateur vers les régions tropicales du Sud de l'Equateur entre le Printemps (*figure 17*) et le début de l'automne (*figure 19*). De Juillet à Septembre (*figures 18 et 19*) on peut également noter des émissions de CO dans les forêts boréales du Canada, émissions introduites par les inventaires de Müller. Des émissions sont également présentes sur la côte Nord de l'Australie mais uniquement de Mai à Septembre. De plus on peut voir qu'en Amérique du Sud et plus spécifiquement dans la région du Brésil, les émissions de CO par brûlage sont également très fortes : elles dépassent d'ailleurs ponctuellement les émissions en Afrique mais s'étendent sur une plus courte période, de Mai à Septembre principalement alors que seuls les mois d'Avril et d'Octobre ne présentent pratiquement pas d'émissions en Afrique. La distribution des émissions d'un pays à l'autre possède donc des caractéristiques propres, aussi bien dans la variation saisonnière que dans l'intensité de ces émissions. Etendre l'analyse des inventaires à d'autres pays que l'Afrique, dont les émissions ont été analysées précédemment, peut donc être également prépondérant dans l'évaluation des inventaires. Le cas de l'Indonésie et de l'Amérique notamment pourraient être étudiés.

Combustion de la biomasse: Emissions de CO dans LMDz/INCA

Printemps

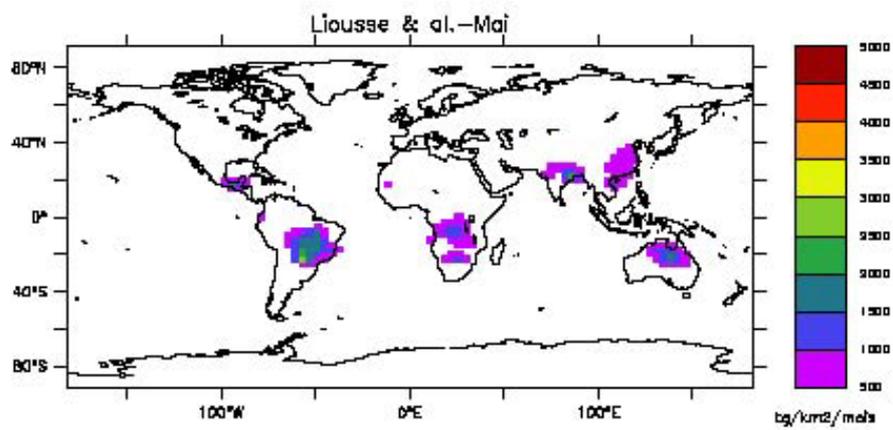
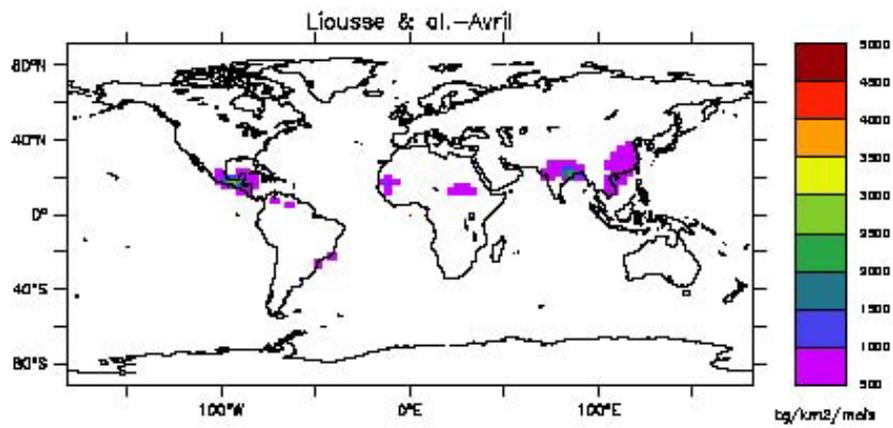
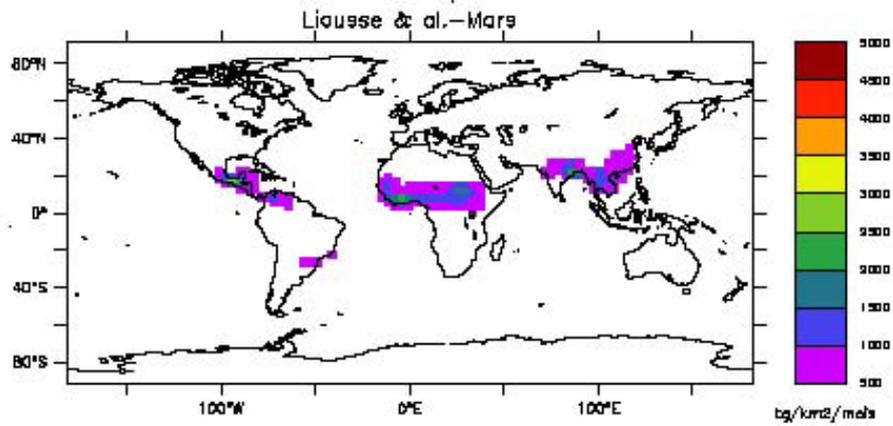


Figure 17

Combustion de la biomasse: Emissions de CO dans LMDz/INCA

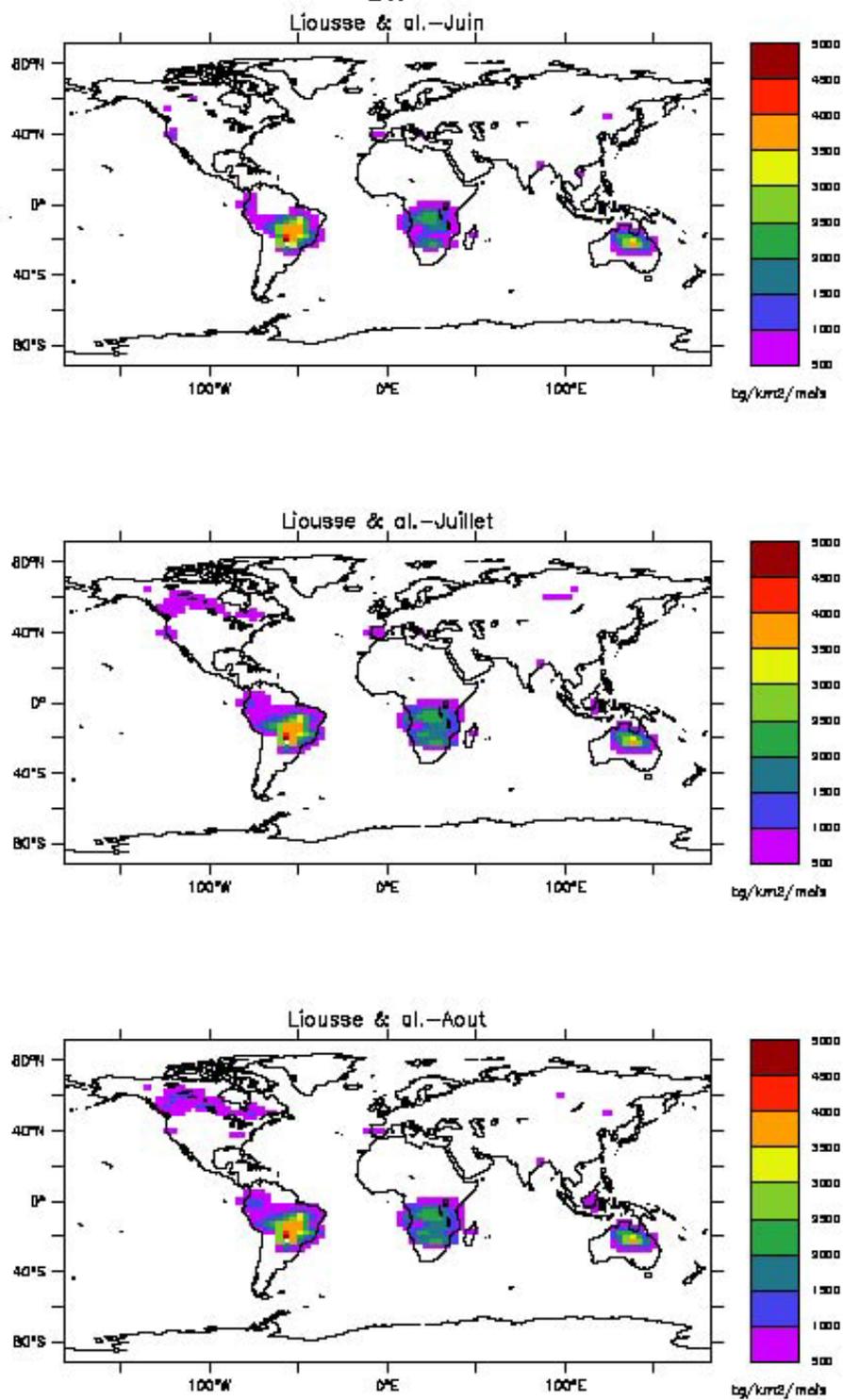


Figure 18

Combustion de la biomasse: Emissions de CO dans LMDz/INCA

Automne

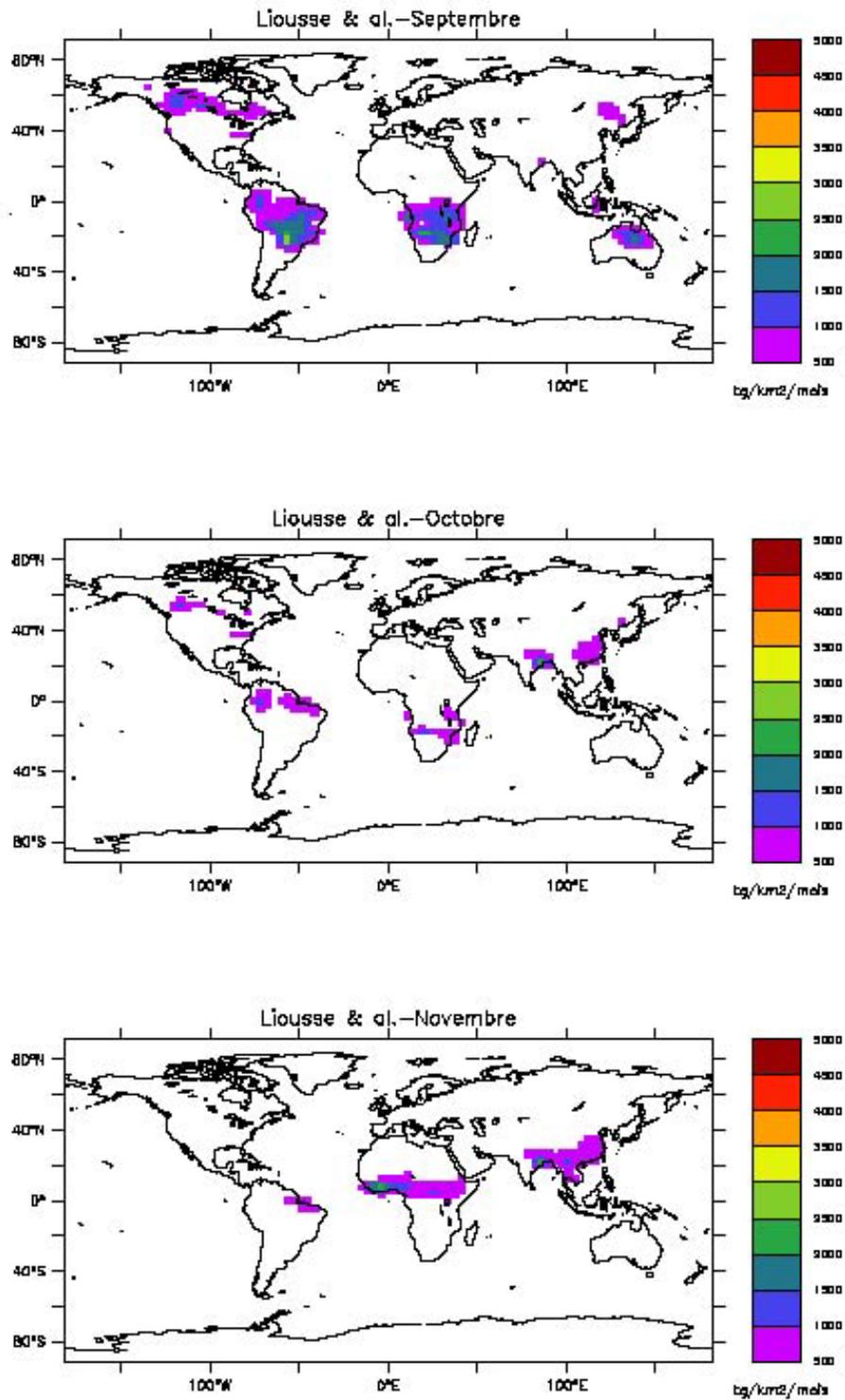


Figure 19

Combustion de la biomasse: Emissions de CO dans LMDz/INCA
Hiver

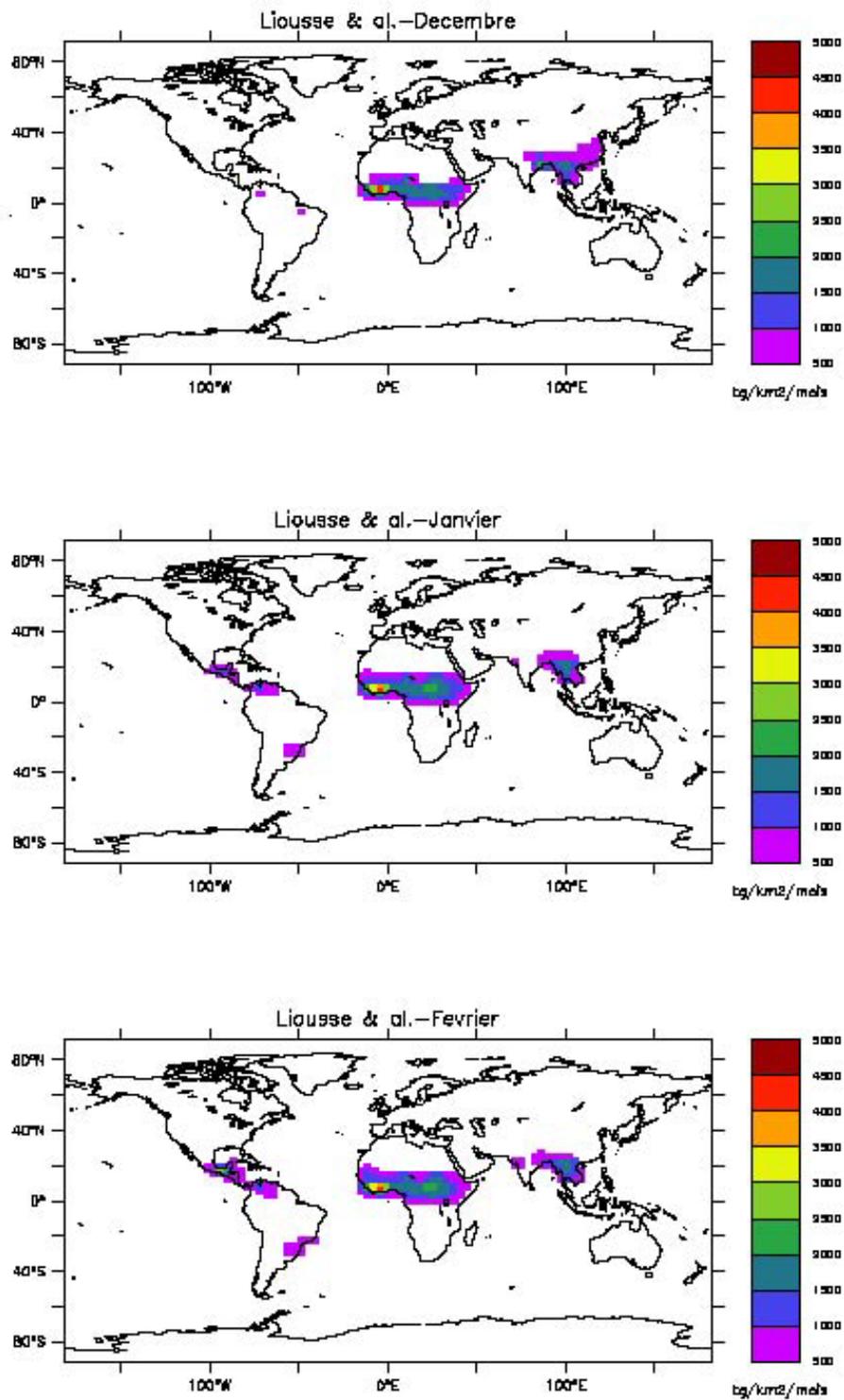


Figure 20

Conclusion

Plusieurs études ont déjà été menées, démontrant l'influence des émissions de CO, CH₄ et NO_x par brûlage de la végétation sur le cycle de l'ozone troposphérique : *Thompson & al. 1996, Roelofs & al. 1997, Galanter & al. 2000...* En utilisant les inventaires de *Hao & Liu et EDGAR*, initialement pris en compte dans les modèle LMDz-INCA pour le calcul des émissions, nous avons pu visualiser l'étroite corrélation entre les émissions de CO par brûlage et les perturbations de l'ozone et ce, non seulement dans les régions sources mais aussi dans toutes les régions tropicales et même dans des régions de plus hautes latitudes. De plus, cette influence n'est pas seulement visible en surface mais sur toute la hauteur de la troposphère qui est globalement affectée par des variations de concentration d'ozone. L'importance d'une prise en compte juste et détaillée des émissions par le brûlage de la végétation est donc de taille : il est fondamental non seulement de considérer, dans la plus grande globalité possible, toutes les espèces émises mais également de connaître avec une grande précision les variations et la localisation de ces émissions au cours de l'année.

L'étude menée par *Andreae & Merlet, 2000* nous a permis d'apporter une prise en compte supplémentaire de 70 NMHC dont le rôle dans le cycle de l'ozone troposphérique est fort. Les inventaires de *Lioussé & al.*, apportant une meilleure prise en compte des variations saisonnières de ces émissions et de leur localisation, ont ainsi été choisis pour calculer les émissions globales des NMHC pour les différentes catégories de brûlage. C'est donc une étape préparatoire importante qui a pu être accomplie. La prise en compte nouvelle de ces espèces et l'utilisation des inventaires les plus récents seront sans aucun doute conséquentes sur l'évaluation du bilan de l'ozone troposphérique par le modèle LMDz-INCA. La prochaine étape est donc d'utiliser le module INCAsflx dans sa nouvelle version et de calculer les concentrations d'ozone en surface et sur toute la troposphère : le bilan de l'ozone troposphérique ainsi obtenu pourra notamment être comparé à celui calculé à partir des inventaires de *Hao & Liu et EDGAR* initialement utilisés. Afin d'affiner l'évaluation des inventaires disponibles, il est aussi très important d'étendre l'étude effectuée dans le cas de l'Afrique à d'autres régions marquées par la pratique intensive du brûlage de la végétation, comme l'Indonésie, l'Amérique du Sud, l'Amérique Centrale et, dans une moindre mesure, l'Australie.

La prise en compte de nouveaux facteurs pourraient aussi permettre une évaluation plus juste des conséquences des émissions sur le bilan de l'ozone troposphérique. La notion de hauteur d'injection notamment devra être prise en compte. En effet, alors que le brûlage des déchets agricoles a lieu essentiellement en surface, l'émission de gaz par le brûlage des forêts peut s'effectuer à plusieurs dizaine de mètres de hauteur, la pratique du brûlage pouvant être également menée dans des régions de hautes altitudes, impliquant une émissions des précurseurs de l'ozone à différents niveaux de la troposphère.

De nouveaux algorithmes sont actuellement développés pour permettre le calcul des surfaces brûlées à partir des relevés satellites, impliquant de nouvelles estimations des émissions de gaz traces. Autant de pas franchis qui permettront d'améliorer sans cesse l'estimation du bilan de l'ozone troposphérique et des conséquences des émissions dues au brûlage de végétation sur la composition chimique de la troposphère.

Références bibliographiques

- *M.O Andreae Biomass burning: Its history, use and distribution and its impact on environmental quality and global quality, *Global Biomass Burning: Atmospheric, Climatic and Biospheric Implications*, 1991.
- * M.O Andreae et P. Merlet, Emission of trace gases and aerosols from biomass burning, *Global Biogeochemical Cycles*, 2001, *in press*.
- *O.Arino, J.M Melinotte, The Ionia “1km” net-browsner experience, *Earth Observation Quaterly*, 1995.
- * O.Arino, J.M Rosaz, P.Goloub, The ATSR World Fire Atlas: a synergy with Polder aerosols products, *Earth Observation Quaterly n°64, Décembre 1999*.
- *P.J. Crutzen, A.C. Delany, J. Greenberg, P.Haagenson, L.Heidt, R. Lueb, W. Pollock, W. Seiler, A. Wartburg, P. Zimmermen, Tropospheric chemical composition measurements in Brazil during the dry season, *Journal of atmospheric chemistry*, 1985.
- *P.J. Crutzen, M.O. Andreae, Biomass burning in the tropics: impact on atmospheric chemical and biogeochemical cycles, *Science* 1990.
- *Meredith Galanter, Hiram Levy II, Gregory R.Carmichael, Impacts of biomass burning on tropospheric CO, NO_x and O₃, *Journal of Geophysical Research*, 2000.
- * Thomas Graedel et Paul Crutzen, L'évolution de l'atmosphère, *Pour la Science*, Novembre 1989.
- *Claire Granier, Wei Min Hao, Guy Brasseur, Jean François Müller, Land-uses Practices and Biomass burning : Impact on the Chemical Composition of the Atmosphere, *Journal of Geophysical Research*, 1996.
- * Wei Min Hao, Mei-Huey Liu et P.J. Crutzen, Estimates of annual and regional releases of CO₂ and other trace gases to the atmosphere from fires in the tropics, based on the F.A.O Statistics for the period 1975-1980, *Fire in the tropical Biota*, 1990.
- * Wei Min Hao, Mei-Huey Liu, Spatial and temporal distribution of tropical biomass burning, *Global Biogeochemical Cycles*, Décembre 1994.
- * David Lavoué, Transport vers la région arctique de l'aérosol carbone émis par les feux de biomasse des régions boréales et tempérées, *Thèse soutenue le 3 Avril 2000, Université Paris VII*.
- * Catherine Liousse, Joyce E.Penner, John J.Walton, Harold Eddleman, Catherine Cheray, Hélène Cachier, Modeling biomass burning aerosols, *Journal of Geophysical Research*, 1996.

* Jean François Müller, Geographical distribution and seasonal variation of surface emissions and deposition velocities of atmospheric trace gases, *Journal of Geophysical Research*, 20 Mars 1992.

*Geert-Jan Roelofs, Jos Lelieveld, Herman G.J. Smit, Dieter Kley, Ozone production and transports in the tropical Atlantic region during the biomass burning season, *Journal of Geophysical Research*, Mai 1997.

*Wolfgang Seiler, P.J. Crutzen, Estimates of gross and net fluxes of carbon between the biosphere and the atmosphere from biomass burning, *Climatic change* 2, 1980.

* Anne M.Thompson, Jacquelyn C.Witte, Robert D.Hudson, Hua Guo, Jay R.Hermon, Mosatomo Fujiwama, Tropical Tropospheric ozone and biomass burning, *Science*, 16 Mars 2001.

*A.M Thompson, Ozone over Southern Africa during SAFARI-1992/TRACE, *Journal of Geophysical Research*, 1996.

* Chandra Venkataraman et G.Uma Maheswara Rao, Emission factors of carbon monoxide and size-resolved aerosols from bio fuel combustion, *Environmental Science and Technology*, Mars 2001.