

Composés organiques oxygénés dans l'atmosphère tropicale : variabilité et échanges atmosphère-biosphère (OCTAVE)

RESUME

Contexte

Les composés organiques volatiles oxygénés (COVOs) ont un impact significatif sur la capacité oxydante et le climat. Le méthanol, l'acétaldéhyde et l'acétone sont parmi les plus abondants COVOs, en particulier dans la troposphère marine où ils contribuent pour 37-63% du carbone total non-méthanique. Leurs sources incluent la végétation, les océans, l'oxydation des COVOs, la combustion de la biomasse et les émissions anthropiques. Cependant, de grandes divergences existent dans les estimations du bilan des COVOs, principalement en raison d'une représentation incomplète de leur production photochimique et des incertitudes concernant les émissions terrestres et les échanges océan/atmosphère des COVOs et de leurs précurseurs. La rareté des observations de COVOs dans les régions tropicales contribue fortement à ces incertitudes. Bien que les échanges océan/atmosphère de COVOs soient importants, leur ampleur et leur direction restent mal connues. Des sous-estimations très importantes, mais inexplicables, des concentrations observées d'acétaldéhyde par les modèles ont été signalées, en divers sites tropicaux reculés, qui semblent impliquer l'existence de sources jusqu'ici inconnues d'acétaldéhyde ou de ses précurseurs. Pour le méthanol, une grande source photochimique a été récemment identifiée, la réaction $\text{CH}_3\text{O}_2 + \text{OH}$. Bien que cette source puisse expliquer en partie les sous-estimations persistantes des modèles sur les océans tropicaux éloignés, son ampleur précise et ses implications pour les évaluations du bilan global restent floues. Pour l'acétone également, les modèles ne parviennent pas à prédire leur variabilité saisonnière observée. Une meilleure compréhension des sources et puits de COVOs est nécessaire pour quantifier leur impact sur les oxydants atmosphériques, sur la durée de vie du méthane et par conséquent sur le climat.

Objectifs

OCTAVE vise à fournir une meilleure évaluation du bilan et du rôle des COVOs dans les régions tropicales, en s'appuyant sur une approche intégrée combinant mesures in situ, récupérations satellitaires et modèles. Les objectifs spécifiques sont

- Générer une base de données sur 2 ans de mesures atmosphériques des COVOs (méthanol, acétaldéhyde et acétone) et des composés apparentés par spectrométrie de masse à réaction de transfert de protons (PTR-MS) et spectroscopie infrarouge de télédétection (FTIR) sur le site de haute altitude de l'observatoire du Maïdo (2155 m d'altitude) à La Réunion, dans l'océan Indien.
- Identifier et quantifier les sources de COVOs contribuant aux mesures à La Réunion, à l'aide d'analyses statistiques multi-variables, de calculs de rétro-trajectoires et de modélisation tridimensionnelle.
- Appliquer une méthodologie innovante basée sur les réseaux de neurones artificiels (ANNI) afin de générer des distributions globales améliorées et mieux caractérisées des abondances de méthanol

et d'autres COVOs en utilisant des données de télédétection pluriannuelles du capteur IASI sur le satellite MetOp.

- Réaliser une évaluation améliorée du bilan des COVOs, basée sur des données satellite (pour CH₃OH), et sur diverses mesures in situ, aéroportées et au sol, y compris celles obtenues à La Réunion. Ces dernières seront utilisées pour évaluer les sources et les puits de COVOs dans la région, à l'aide de modèles de chimie-transport à haute résolution, comme WRF-Chem.

Conclusions principales

- La formation photochimique d'acétone et d'acide formique dans les panaches de feux de végétation a été identifiée sur la base de données PTR-MS collectées à Maïdo et de calculs de rétro-trajectoires. La production d'acétone est en accord avec les rapports d'émission des précurseurs connus. Une source manquante substantielle d'acide formique par les feux est suggérée par l'analyse.
- Le réseau de neurones artificiels appliqué aux données IASI est opérationnel et assure la récupération de 8 COVOs tout au long de la série temporelle opérationnelle de IASI/Metop-A, -B et -C (c'est-à-dire depuis 2007). Il s'est avéré sensible, flexible et robuste pour la récupération d'absorbants infrarouges faibles. La récupération de l'acide acétique et de l'acétone va au-delà de ce qui était envisagé dans la proposition initiale d'OCTAVE. Au total, cette suite de produits IASI constitue un ensemble de données décennal unique concernant l'abondance globale des colonnes de COV(O)s à partir d'un seul sondeur satellite, qui est d'une grande valeur pour aborder les questions scientifiques liées à la composition atmosphérique.
- L'évaluation croisée des données IASI, FTIR et in situ aéroportés indique des biais importants entre les différents ensembles de données, pour des raisons encore obscures. IASI semble sous-estimer les colonnes hautes ; l'ampleur du biais est modérée par rapport aux données FTIR et beaucoup plus prononcée par rapport aux colonnes basées sur les mesures aéroportées.
- Le modèle à haute résolution WRF-Chem est approprié pour la simulation de composés à longue durée de vie au-dessus de l'île de la Réunion, même à basse résolution (12.5 km), mais ses résultats dépendent très fortement des conditions aux bords latéraux.
- La dérivation des émissions de méthanol par modélisation inverse basée sur les données IASI suggère des émissions accrues sur les zones semi-arides, en accord avec les travaux antérieurs. L'ampleur des changements des émissions déduites par l'inversion dépend fortement de la correction du biais appliquée aux données. Aucune optimisation ne réussit à reproduire simultanément toutes les techniques de mesure (satellite, avion, in situ).

Recommandations

- Malgré les résultats encourageants de la validation de données IASI de COVOs à l'aide de données FTIR, des efforts supplémentaires sont nécessaires pour réduire les sous-estimations IASI des colonnes élevées. Une colocalisation plus pointue des mesures IASI peut être nécessaire. La rareté

ou l'absence de données FTIR pour le PAN, l'acétone et l'acide acétique entrave une validation complète de ces produits IASI.

- L'évaluation des mesures IASI à l'aide de modèles et de données aéroportées a été tentée, mais ses conclusions sont peu claires. Pour le méthanol, l'incohérence entre les ensembles de données aéronautiques, FTIR et IASI souligne la nécessité de campagnes d'intercomparaison dédiées, qui pourraient être menées dans le cadre de l'infrastructure de recherche européenne ACTRIS.
- Afin d'améliorer les comparaisons avec des modèles et des mesures indépendantes, la génération d'*averaging kernels* par le système ANNI devrait être développée.
- La récupération d'autres COVOs identifiés récemment dans les spectres IASI (par exemple le glycolaldéhyde) doit être tentée.
- L'utilisation de modèles de chimie à méso-échelle (Meso-NH ou WRF-Chem) est conseillée pour exploiter davantage l'ensemble de données Maïdo généré dans OCTAVE. Ils permettraient une attribution détaillée des sources de COVOs mesurés au Maïdo et éventuellement d'identifier le rôle de l'océan.
- Des émissions anthropiques à haute résolution ($\sim 1 \times 1 \text{ km}^2$) sont nécessaires pour simuler les espèces réactives à La Réunion et plus précisément à l'observatoire du Maïdo. Pour répondre au manque de telles données d'émissions pour l'île de La Réunion, les rétro-trajectoires FLEXPART-AROME et les mesures du Maïdo peuvent être utilisées pour dériver les émissions de composés spécifiques (par exemple, le benzène). Pour cela, FLEXPART-AROME devrait être piloté par les données météorologiques de Meso-NH.

Mots clés

- Composés organiques volatiles oxygénés
- Échanges biosphère/atmosphère/océan
- Mesures de VOC par satellite
- Capacité oxydante
- Émissions
- Mesures in situ et télédétection depuis le sol

Référence

Trissevgeni STAVRAKOU, Bert VERREYKEN, Bruno FRANCO, Jean-François MÜLLER, Corinne VIGOUROUX, Jérôme BRIOUDE, Crist AMELYNCK, Lieven CLARISSE, Niels SCHOON, Pierre-François COHEUR. **Oxygenated volatile organic compounds in the Tropical Atmosphere: Variability and Exchanges (OCTAVE)**. Final Report. Brussels: Belgian Science Policy Office 2022 – 81 p. (BRAIN-be - Belgian Research Action through Interdisciplinary Networks). Royal Belgian Institute for Space Aeronomy. <https://doi.org/10.18758/71021078>

