

## Résumé du projet EQUATOR

La chimie troposphérique est fortement influencée par les interactions entre la surface terrestre et l'atmosphère. En raison de leur forte réactivité et de leur ubiquité, les composés organiques volatils (COV) ont un impact significatif sur l'oxydation atmosphérique, ainsi que sur la production d'ozone et de particules fines. Les COV réagissent facilement avec les radicaux hydroxyles (OH), qui constituent le principal agent nettoyant de l'atmosphère et jouent un rôle central dans la chimie atmosphérique. L'isoprène ( $C_5H_8$ ) est le composé organique volatil biogénique (COVB) le plus abondamment émis par la végétation terrestre. Le bilan global des COVB est dominé par les régions tropicales, principalement en raison de la productivité élevée des forêts équatoriales de feuillus et des conditions climatiques favorables. Malgré leur importance, les émissions d'isoprène restent très incertaines, en particulier dans les régions tropicales, en raison des interactions complexes entre biosphère et atmosphère, de la rareté des observations et de l'incertitude sur les concentrations de  $NO_x$  ( $= NO + NO_2$ ). En effet, les régions tropicales font partie des écosystèmes les moins étudiés et des plus mal compris. De faibles niveaux de  $NO_x$  prédominent dans la plupart des zones tropicales, entraînant des réactions d'oxydation des COV différentes de celles observées dans les régions tempérées, mieux étudiées. Les émissions naturelles de  $NO_x$  provenant des sols et de la foudre jouent un rôle clé dans les tropiques, mais leur estimation reste très incertaine. Comprendre et quantifier leur magnitude, les tendances et les impacts des COVB sur la chimie atmosphérique constitue un défi scientifique majeur nécessitant l'utilisation d'observations satellitaires à l'échelle globale, complétées par des mesures in situ au sol et des outils de modélisation atmosphérique de pointe. Le formaldéhyde (HCHO), produit clé de l'oxydation de l'isoprène détectable par satellite, peut fournir des informations précieuses sur les COV lorsqu'il est couplé à des modèles de chimie-transport atmosphériques et à des outils d'inversion, permettant ainsi d'optimiser l'évaluation des émissions.

Le projet EQUATOR (*Emission Quantification of Atmospheric tracers in the Tropics using Observations from satellites*) se concentre sur la détermination des émissions de gaz en trace, en particulier l'isoprène, les  $NO_x$  émis par sols et par la foudre, dans les régions tropicales. Le travail consiste à (i) étudier l'impact de la distribution de la couverture terrestre sur les émissions globales d'isoprène et leurs tendances, y compris l'identification des facteurs entraînant des incertitudes sur les CT dans l'estimation des émissions, (ii) caractériser les biais des produits satellitaires OMI HCHO par la comparaison avec des observations indépendantes prises au sol et lors de campagnes avion, (iii) estimer les émissions d'isoprène et de  $NO_x$  naturel à partir de l'inversion de deux espèces (HCHO et  $NO_2$ ) mesurées par satellite (TROPOMI) au-dessus de l'Afrique et de l'Amérique du Sud. Le projet combine des approches de modélisation bottom-up et top-down. La méthode bottom-up s'appuie sur le modèle d'émissions de COVB, MEGAN-MOHYCAN, tandis que l'approche top-down intègre un modèle de chimie-transport (chemistry-transport model ou CTM), et des techniques d'inversion. Nous utilisons le modèle de chimie

troposphérique MAGRITTEv1.1 développé à l'IASB, ainsi que son outil d'optimisation des émissions basé sur l'adjoint.

La première étude explore la distribution et les tendances du couvert arboré dans différents jeux de données de couverture terrestre. Des divergences substantielles ont été mises en évidence entre les jeux de données, les estimations de la surface mondiale de forêts allant de 30 à 50 millions de km<sup>2</sup>, et les tendances variant de -0,26 % à +0,03 % par an sur la période 2001–2016. En conséquence, les estimations annuelles d'émissions d'isoprène basées sur ces jeux de données varient de 350 à 520 Tg. Les changements dans la couverture terrestre réduisent de 0,04 % à 0,33 % par an la tendance positive des émissions globales d'isoprène, principalement due à l'augmentation de la température et du rayonnement solaire. Cette atténuation est largement attribuée à la perte de couvert forestier dans les régions tropicales. Cette étude a conduit au développement du jeu de données ALBERI: un inventaire « bottom-up » des émissions mensuelles mondiales d'isoprène à une résolution spatiale de 0,5°×0,5° pour la période 2001–2018, basé sur la distribution de la végétation GFWMOD issue des satellites. Le jeu de données associé (GFWMOD) représente les distributions annuelles du couvert arboré de 2001 à 2018 et est basé sur les données MODIS, ajustées pour correspondre aux estimations du *Global Forest Watch* à très haute résolution (30 m).

La caractérisation des produits OMI HCHO à l'aide de mesures par spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) et de campagnes aériennes révèle un biais systématique : OMI tend à sous-estimer les colonnes élevées de HCHO et à surestimer les faibles colonnes. Pour y remédier, des corrections basées sur des régressions linéaires ont été développées pour ajuster les colonnes OMI HCHO. L'application de ces corrections augmente les estimations top-down d'émissions d'isoprène d'environ 25 % par rapport aux données non corrigées, mettant ainsi en évidence l'impact significatif de cette correction. L'effet est particulièrement marqué en Asie du Sud (+43 %) et en Afrique (près de +30 %). Les nouvelles estimations sont également cohérentes avec les valeurs récentes obtenues à partir des colonnes d'isoprène issues du capteur CrIS. Ces résultats démontrent l'intérêt d'intégrer des observations satellitaires corrigées pour leurs biais dans les systèmes d'inversion afin d'obtenir des estimations plus précises des émissions de COV.

Un nouveau cadre d'inversion a été développé sur la base du modèle CTM MAGRITTEv1.1, permettant l'inversion simultanée de deux espèces, les COV et le NO<sub>x</sub>, à partir des observations satellitaires TROPOMI de HCHO et de NO<sub>2</sub>. En Afrique, les résultats de l'inversion montrent que les inventaires d'émissions bottom-up sous-estiment significativement les émissions : l'isoprène biogénique d'environ 30 %, le NO<sub>x</sub> des sols de 25 %, et le NO<sub>x</sub> de la foudre jusqu'à 300 %. L'évaluation à l'aide de concentrations de NO<sub>2</sub> mesurées en surface dans des zones rurales, ainsi que de données satellitaires du NO<sub>2</sub> dans la haute troposphère, utilisées comme proxy des émissions de NO dues à la foudre, conforte l'augmentation des émissions par les sols et les éclairs déduites de l'optimisation. Les émissions top-down issues de cette inversion à deux espèces montrent une amélioration notable dans la représentation des colonnes d'isoprène, tant en termes de magnitude que de distribution spatiale, lorsqu'elles sont comparées aux observations

indépendantes de CrIS au-dessus de l'Afrique. Notamment, les données CrIS confirment l'existence d'un nouveau *hotspot* d'émissions non identifié auparavant dans les inventaires bottom-up, localisé en Angola. Les performances accrues de cette inversion conjointe NO<sub>2</sub>-HCHO, par rapport aux inversions utilisant uniquement HCHO, démontrent l'intérêt d'intégrer les contraintes satellitaires sur les NO<sub>x</sub>. Cette étude a abouti à la production d'estimations mensuelles top-down à haute résolution (0,5°x0,5°) des émissions d'isoprène, de NO<sub>x</sub> des sols et de NO<sub>x</sub> de la foudre en Afrique pour l'année 2019.

Nous avons appliqué cette approche d'inversion jointe pour estimer les émissions top-down de COV et de NO<sub>x</sub> en Amérique du Sud, en utilisant les observations satellitaires des colonnes de HCHO et de NO<sub>2</sub>. L'optimisation a conduit à une augmentation de 60 % des émissions de NO<sub>x</sub> issues de la foudre et à une légère hausse des émissions de NO<sub>x</sub> des sols par rapport aux inventaires bottom-up. Comme en Afrique, l'évaluation des émissions de NO<sub>x</sub> des sols et de la foudre indique une sous-estimation persistante dans les inventaires top-down. Pour l'isoprène, les estimations top-down sont environ 20% inférieures aux valeurs bottom-up. L'inversion suggère des réductions substantielles (jusqu'à 80 %) dans les zones à fortes émissions de l'ouest et du sud de l'Amazonie, ce qui améliore l'accord avec les colonnes d'isoprène issues de CrIS, tant en valeur absolue qu'en distribution spatiale. Cependant, les mesures FTIR locales des colonnes d'isoprène à Porto Velho ne confirment pas les réductions marquées observées pendant la saison sèche, soulignant la nécessité d'études supplémentaires.

**Mots-clés:** isoprène, changements de couverture terrestre, NO<sub>x</sub>, sol, foudre, inversion, biais, TROPOMI.