



HAL
open science

Exploitation de mesures satellitaires pour l'estimation des flux de méthane à la surface du globe

Cindy Cressot

► **To cite this version:**

Cindy Cressot. Exploitation de mesures satellitaires pour l'estimation des flux de méthane à la surface du globe. Sciences de la Terre. Université de Versailles-Saint Quentin en Yvelines, 2015. Français. NNT : 2015VERS046V . tel-01412399

HAL Id: tel-01412399

<https://theses.hal.science/tel-01412399v1>

Submitted on 8 Dec 2016

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES DE L'ENVIRONNEMENT D'ÎLE DE FRANCE
MÉTÉOROLOGIE, OCÉANOGRAPHIE ET PHYSIQUE DE L'ENVIRONNEMENT

THÈSE

EN VUE DE L'OBTENTION DU GRADE DE

DOCTEUR

DE L'UNIVERSITÉ DE VERSAILLES SAINT-QUENTIN-EN-YVELINES
(arrêté ministériel du 7 août 2006)

PRÉSENTÉE PUBLIQUEMENT
LE 17 MARS 2015 PAR

CINDY CRESSOT

EXPLOITATION DE MESURES SATELLITAIRES POUR L'ESTIMATION DES FLUX DE MÉTHANE À LA SURFACE DU GLOBE

SOUTENUE DEVANT LE JURY COMPOSÉ DE:

Directeurs de thèse:	Frédéric Chevallier Peter Rayner	Chercheur (LSCE) Professeur (Univ. Melbourne)
Président du jury:	Philippe Bousquet	Professeur (UVSQ/LSCE)
Rapporteurs:	Virginie Marécal Catherine Liousse	Directrice de recherche (CNRM) Directrice de recherche (LA)
Examinatrice:	Carole Deniel	Responsable Atmosphère (CNES)

PRÉPARÉE AU SEIN DU
LABORATOIRE DES SCIENCES DU CLIMAT ET DE L'ENVIRONNEMENT

SOMMAIRE

1 Méthane	5
1.1 Effets du méthane sur le climat	6
1.2 Sources	6
1.2.1 Sources biogéniques	8
1.2.1.1 Processus	8
1.2.1.2 Zones marécageuses	8
1.2.1.3 Lacs de barrage	10
1.2.1.4 Végétation	10
1.2.1.5 Riziculture	10
1.2.1.6 Ruminants	11
1.2.1.7 Termites	11
1.2.1.8 Dépôts organiques	11
1.2.1.9 Pergélisol	12
1.2.1.10 Hydrates de méthane	12
1.2.2 Sources thermogéniques	13
1.2.2.1 Exploitation de combustibles fossiles	13
1.2.2.2 Sources géologiques	14
1.2.3 Sources pyrogéniques	14
1.2.3.1 Feux de biomasse	14
1.3 Puits	15
1.4 Concentrations	15
1.4.1 Observations	15
1.4.2 Tendances	16
2 Méthode	19
2.1 Problème inverse	20
2.1.1 Approche bayésienne	21
2.1.2 Résolution	24

2.1.3	Caractérisation des erreurs	26
2.1.4	Diagnostics	28
2.2	Application à la chimie atmosphérique	31
2.3	Modèle de chimie-transport	32
3	Sources d'information	37
3.1	Inventaires d'émissions	39
3.1.1	EDGAR	39
3.1.2	GFED	40
3.1.3	Zones humides	42
3.1.4	Termites	42
3.1.5	Océan	43
3.1.6	Absorption du sol	44
3.2	Observations	45
3.2.1	Stations de surface	45
3.2.2	Incertitudes des observations de surface	46
3.3	Satellites	47
3.3.1	SCIAMACHY et TANSO-FTS	50
3.3.1.1	Instruments	50
3.3.1.2	Méthodes	50
3.3.2	IASI	51
4	Application 1	57
4.1	Introduction	58
4.2	Inversions d'origine	58
4.3	Tests de sensibilité	61
4.3.1	Sensibilité aux erreurs de l'a priori	61
4.3.2	Sensibilité aux erreurs des observations	63
4.3.3	Sensibilité aux conditions initiales	64
4.3.4	Mise à jour des inversions	65
4.3.5	Sensibilité au filtrage des observations	66
4.4	Article ACP	67
4.4.1	Présentation	67
4.4.1.1	Inversions de base	67
4.4.1.2	Correction de biais des produits TANSO-FTS et SCIAMACHY	69
4.4.1.3	Réglage des statistiques d'erreurs	69
4.4.2	<i>Abstract</i>	71
4.4.3	<i>Introduction</i>	71
4.4.4	<i>Method</i>	73
4.4.4.1	<i>Inversion system</i>	73

4.4.4.2	<i>Bias correction</i>	74
4.4.4.3	<i>Tuning of error statistics</i>	75
4.4.4.4	<i>Chemistry-Transport Model : LMDz-SACS</i>	76
4.4.5	<i>Prior information and observations</i>	76
4.4.5.1	<i>Prior information</i>	76
4.4.5.2	<i>Surface measurements</i>	78
4.4.5.3	<i>Satellite observations</i>	79
4.4.6	<i>Results</i>	82
4.4.6.1	<i>Default configurations</i>	82
4.4.6.2	<i>Bias correction</i>	87
4.4.6.3	<i>Tuning of error statistics</i>	94
4.4.7	<i>Discussion</i>	96
4.4.8	<i>Conclusions</i>	98
4.4.9	Cas particulier : les erreurs de l'analyse	99
4.5	Conclusions	100
5	Application 2	101
5.1	Introduction	102
5.2	Méthodes	103
5.2.1	Relations avec des paramètres climatiques	103
5.2.2	Capacité de détection des anomalies de CH ₄	104
5.2.3	Résolutions spatio-temporelles	105
5.3	Corrélations	106
5.3.1	Corrélations des concentrations de CH ₄	106
5.3.2	Corrélations des flux de CH ₄	108
5.3.3	Corrélations des anomalies de CH ₄	110
5.4	Article GRL	112
5.4.1	Présentation	113
5.4.1.1	Capacité de détection des anomalies de CH ₄	114
5.4.1.2	Sensibilité des corrélations à la résolution spatio-temporelle	115
5.4.2	<i>Abstract</i>	118
5.4.3	<i>Introduction</i>	119
5.4.4	<i>Method</i>	120
5.4.4.1	<i>Inversion Framework</i>	120
5.4.4.2	<i>Data sets</i>	121
5.4.4.3	<i>Error statistics</i>	122
5.4.4.4	<i>Evaluation criteria</i>	122
5.4.5	<i>Results</i>	123
5.4.5.1	<i>Signal-to-noise ratio</i>	123
5.4.5.2	<i>Correlations with temperature and soil moisture</i>	124

5.4.6	<i>Discussion</i>	125
5.4.7	Corrélations non linéaires	127
5.5	Conclusions	128
6	Conclusions et perspectives	133
A	Acronymes	157

Liste des figures

1.1	Processus d'émissions et de pertes de CH ₄ dans les zones humides	9
1.2	Zone de stabilité des hydrates de méthane	13
1.3	Tendances récentes de la concentration et du taux de croissance du méthane	17
2.1	Système d'assimilation variationnelle	25
2.2	Schéma simplifié du principe de l'assimilation variationnelle où l'espace des émissions est représenté par Model Space, l'espace des concentrations par Observation Space et le lien entre les deux par l'opérateur d'observation H . La minimisation est réalisée de façon itérative jusqu'à trouver la solution optimale (\mathbf{x}_a) appartenant à l'espace des solutions (Null Space) tout en étant cohérent avec les erreurs de l'a priori (en jaune) et les erreurs associées aux observations (en bleu).	26
2.3	Représentation géométrique des diagnostics de variances d'erreurs	29
2.4	Schéma des vents dominants	32
2.5	Modèle de transport LMDz	33
2.6	Modèle de chimie SACS	34
3.1	Différentes sources d'information généralement disponibles pour la modélisation de la composition atmosphérique (d'après [Delmas et al., 2005]).	38
3.2	Émissions anthropiques de méthane (2005)	40
3.3	Distribution spatiale des principaux types de feux	41
3.4	Émissions des zones humides (2002)	42
3.5	Carte du puits de méthane par les sols	45
3.6	Distribution spatiale des stations de surface observant les concentrations atmosphériques de CH ₄ et de MCF	46
3.7	Illustration de l'orbite du satellite GOSAT (source : JAXA).	48
3.8	Sensibilité des sondages satellitaires de CO ₂ à la verticale	49
3.9	Observations des colonnes totales de méthane par SCIAMACHY	53
3.10	Observations des colonnes totales de méthane par TANSO-FTS	54
3.11	Observations de colonnes partielles de méthane par IASI	55

3.12	Spectre détaillant la sensibilité de différents paramètres à la longueur d'onde pour IASI	56
4.1	Émissions régionales de méthane pour les inversions d'origine .	60
4.2	Surface network observing methane and methylchloroform . .	78
4.3	Satellite "super-observations"	81
4.4	Global methane emissions and losses for default configurations	84
4.5	Regional methane emissions for default configurations	86
4.6	Increments of initial conditions	88
4.7	Increments of initial conditions (2)	89
4.8	Fit at surface sites	90
4.9	Fit at surface sites (2)	91
4.10	Linear regression for airmass factor correction	92
4.11	Global methane emissions and losses for final configurations .	97
5.1	Régions de référence	105
5.2	Carte des principaux bassins du monde (sources : Programme des Nations Unies pour l'environnement, World Conservation Monitoring Centre, World Resources Institute, American Association for the Advancement of Science).	107
5.3	Carte des feux observés par MODIS entre le 11 et le 20 février 2010 (source : Jacques Descloîtres- NASA).	107
5.4	Corrélations des concentrations de SCIAMACHY aux paramètres climatiques	108
5.5	Corrélations des concentrations de GOSAT aux paramètres climatiques	109
5.6	Corrélations de IASI aux paramètres climatiques	109
5.7	Corrélations des flux de méthane aux paramètres climatique pour l'inversion SURF	110
5.8	Corrélations des flux de méthane aux paramètres climatique pour l'inversion COMB	111
5.9	Corrélations des flux de méthane aux paramètres climatique pour l'inversion TANSO	112
5.10	Corrélations des anomalies de méthane aux paramètres climatique pour l'inversion SURF	112
5.11	Corrélations des anomalies de méthane aux paramètres climatique pour l'inversion COMB	113
5.12	Corrélations des anomalies de méthane aux paramètres climatique pour l'inversion TANSO	113
5.13	Capacité de détection des anomalies de CH ₄ par le réseau de surface.	115

5.14	Capacité de détection des anomalies de CH ₄ par IASI.	116
5.15	Capacité de détection des anomalies de CH ₄ par TANSO-FTS.	117
5.16	Corrélations linéaires des anomalies de méthane aux paramètres climatiques pour l'inversion SURF	118
5.17	Corrélations non linéaires des anomalies de méthane aux paramètres climatiques pour l'inversion SURF	127
5.18	Événements El Nino et La Nina survenus entre 1982 et 2014 (D'après Bob Tisdale).	130
5.19	Anomalies de CH ₄ pour SURF (2000-2012).	131

Liste des tables

1.1	Présentation synthétique des estimations des sources et puits du CH ₄	7
1.2	Mise à jour de la composante anthropique des émissions de CH ₄ . Les émissions connues sont les valeurs moyennes de l'approche "top-down" entre 2000 et 2009 (voir table 1.1). Les sources provenant, respectivement des gaz de schiste et des véhicules au gaz naturel sont des estimations régionales (respectivement pour les USA et la Chine).	8
2.1	Sensibilité des OH	21
3.1	Inventaires a priori des émissions de méthane pour l'année 2008.	39
3.2	Facteurs d'émissions des principaux types de feux	41
3.3	Émissions de méthane provenant de la production des termites	43
3.4	Puits de méthane par les sols	44
4.1	Inventaires a priori des émissions de méthane pour l'année 1995 (PRIOR _{init}).	59
4.2	Bilans a posteriori des émissions et des incertitudes mondiales et annuelles de CH ₄ des inversions d'origine.	60
4.3	Inventaires a priori des émissions de méthane pour l'année 2005 (PRIOR _{inter}).	62
4.4	Influence d'une corrélation temporelle (de 2 ou 3 semaines) sur les émissions mondiales de méthane.	62
4.5	Ajout d'une erreur de modèle valant 10% de la mesure (soit $\simeq 180$ ppb).	63
4.6	Ajout d'une erreur de modèle valant 1% de la mesure (soit environ $\simeq 18$ ppb).	64
4.7	Ajustement des conditions initiales de l'a priori	65
4.8	Bilans annuels pour les inversions sur la période étendue (juin 2009 - décembre 2010)	66
4.9	Filtrage des observations au-delà de 2σ de la pdf.	66
4.10	Global annual prior methane emissions used in the inversions.	77

4.11	Uncertainty reduction (%) on methane emissions for the default configurations.	83
4.12	Global emissions, chemical losses, growth rates of methane and absolute mean-bias to surface measurements	85
4.13	Ratios of observation, prior and full variances inferred from the diagnostics	95
4.14	Résultats des diagnostics	99

REMERCIEMENTS



En tout premier lieu, je tiens à remercier mes deux directeurs de thèse pour leur complémentarité. Je remercie Frédéric Chevallier pour sa disponibilité, son soutien, sa rigueur et ses bons conseils qui m'ont permis de mener à bien ces travaux de recherche. Je remercie également Peter Rayner pour avoir su se rendre disponible notamment pendant la deuxième partie de la thèse pour nos réunions téléphoniques hebdomadaires et ce depuis l'Australie, et également pour ses idées qui ont éclairé cette thèse d'un autre angle grâce à son expertise sur le méthane.

Je remercie également Virginie Marécal et Catherine Liousse pour leurs relectures attentives en tant que rapporteurs du mémoire. Je remercie Carole Deniel, responsable de la collaboration avec le CNES pour avoir suivi mes travaux de recherche tout au long de la thèse. Je remercie également Philippe Bousquet, le président du jury, pour son implication notamment lors de la soumission des deux articles présentés aux chapitres 4 et 5.

Je voudrais remercier également tous les autres doctorants du laboratoire et en particulier Rihab, Audrey, Lisbeth et Robin pour nos échanges dans le cadre de nos activités de recherche mais aussi pour leur soutien et leur amitié.

Enfin, je tiens à remercier tout particulièrement ma maman qui me soutient depuis toujours et à qui je dois cette réussite et Charles, mon fiancé, pour ses encouragements et sa compréhension dans les moments de doute qui ont été pour moi un soutien précieux.



INTRODUCTION

Situé au cœur des problématiques liées au réchauffement climatique, le méthane (CH_4) est le deuxième gaz à effet de serre d'origine anthropique derrière le dioxyde de carbone (CO_2). Sa concentration, actuellement de l'ordre de 1800 ppb (parties par milliards), a augmenté de plus de 150% depuis le début de l'ère industrielle. Cette augmentation est directement associée aux émissions industrielles et agricoles qui représentent environ 70% des émissions de CH_4 dans l'atmosphère [Ciais et al., 2013]. De plus, [Lassey et al., 2007] estiment à partir de mesures de la composition isotopique du méthane $^{14}\text{C}-\text{CH}_4$ que 30% des émissions totales de méthane proviennent des énergies fossiles entre 1986 et 2000.

Des mesures effectuées sur des carottes de glace montrent une concentration de CH_4 relativement stable à environ 700 ppb au cours du dernier millénaire. Pourtant, historiquement, sa concentration a pu atteindre 12 000 ppb [Beerling et al., 2009] et on estime à 1670 GtC la quantité de méthane stockée actuellement dans les deux premiers mètres de glace du pergélisol. De ce fait, la fonte du pergélisol pourrait provoquer un relargage important de méthane dans l'atmosphère entraînant une accélération du réchauffement climatique. Selon [Jolivel and Allard, 2013], 21% du pergélisol existant en 1957 avait disparu en 2009 au nord du Canada. Cette fonte a d'ailleurs entraîné la formation de nombreux lacs et a considérablement modifié l'ensemble des écosystèmes dans ces régions. De plus, les eaux du plateau arctique de la Sibérie orientale sont sursaturées en méthane par rapport à l'atmosphère ambiante. De ce fait, elles aussi peuvent relâcher du méthane vers l'atmosphère [Shakhova et al., 2010].

Un autre type de source est également étudié pour son effet probable sur le réchauffement climatique. En effet, depuis 2006, les USA développent

l'exploitation de gaz de schiste par fracturation hydraulique. À partir de mesures de surface réalisées à Denver et dans le Colorado, les études de [Tollefson, 2012, Tollefson, 2013, Pétron et al., 2013] estiment que les fuites de méthane représentent entre 4 et 8% de la production. Ces taux de fuite sont encore largement débattus. Toutefois, si ces estimations sont correctes, la production de gaz de schistes provoquerait un impact écologique supérieur à celui du charbon.

La surveillance de la concentration atmosphérique du méthane est assurée en premier lieu par un réseau international de stations de surface, développé initialement pour l'étude du dioxyde de carbone, qui fournit également des mesures directes de la concentration atmosphérique du CH_4 depuis 1983, notamment à la station de Mauna Loa (Hawaï, USA). Ces mesures traditionnelles de surface sont utilisées dans des systèmes d'inversion afin d'en déduire une information sur les flux de surface du méthane.

L'observation de la concentration atmosphérique du CH_4 s'est diversifiée depuis 2002 avec l'observation satellitaire. Les produits satellitaires utilisés pour l'inversion des flux de méthane fournissent des observations de la concentration atmosphérique de CH_4 moyennées sur les colonnes du milieu sondé. Toutefois, afin d'obtenir une estimation de ces concentrations, les mesures de luminances effectuées par les instruments satellitaires sont traitées au travers de modèles de spectroscopie et de transfert radiatif. Par construction, ces sondages satellitaires peuvent être affectés notamment par la diffusion des aérosols, la présence de nuages ou encore un faible rapport signal à bruit de l'albédo (par exemple au-dessus des océans ou des forêts de conifères).

L'objectif de ma thèse repose sur l'exploitation de ces nouvelles mesures satellitaires pour l'estimation de flux de surface du méthane ainsi que sur l'évaluation des produits satellitaires avec les mesures traditionnelles de surface. Ainsi, ma thèse s'articule en trois parties distinctes suivies d'une conclusion (chapitre 6).

La première partie introduit le contexte dans lequel s'inscrit ma thèse. Dans le premier chapitre, on réalise un inventaire des principaux puits et sources du méthane en décrivant également succinctement les processus impliqués. Puis, on présente les différentes hypothèses proposées pour expliquer la tendance récente de la concentration atmosphérique du CH_4 , toujours débattue. Les chapitres 2 et 3 sont respectivement consacrés à la présentation de la méthode et du matériel utilisé, c'est-à-dire respectivement le principe de notre système d'inversion et les différentes sources d'information exploitées

tout au long du manuscrit (inventaires d'émissions, mesures de surface et observations satellitaires).

La deuxième partie (chapitre 4) présente la comparaison de trois systèmes d'observation satellitaire (TANSO-FTS, SCIAMACHY et IASI) et du réseau de surface en termes de bilans annuels (régionaux et mondiaux). Pour ce faire, nous assimilons indépendamment les observations de chaque système dans un système d'inversion bayésien variationnel. On présente des tests de sensibilité préliminaires permettant d'appréhender les différences majeures entre les produits satellitaires. Puis, on met en œuvre une méthode objective de diagnostics et de réglage des statistiques d'erreurs d'entrée afin d'améliorer la cohérence statistique entre ces quatre systèmes d'observation.

La troisième partie (chapitre 5) présente l'évaluation de la capacité de détection des anomalies de flux de méthane par deux instruments satellitaires (TANSO-FTS et IASI) et par le réseau de surface. De plus, comme la variabilité interannuelle des émissions de méthane est dominée par les émissions provenant des zones humides, on cherche également à relier ces anomalies de flux aux anomalies de deux paramètres climatiques (température et humidité du sol).

MÉTHANE

Sommaire

1.1	Effets du méthane sur le climat	6
1.2	Sources	6
1.2.1	Sources biogéniques	8
1.2.2	Sources thermogéniques	13
1.2.3	Sources pyrogéniques	14
1.3	Puits	15
1.4	Concentrations	15
1.4.1	Observations	15
1.4.2	Tendances	16

1.1 Effets du méthane sur le climat

Le méthane et les autres gaz à effet de serre participent à l'effet de serre naturel qui a permis, lors de la formation de la Terre, d'amener la température du sol à 15°C, rendant possible l'existence de l'eau sous ses trois états ainsi que la vie sur Terre [Delmas et al., 2005]. Toutefois, les activités anthropiques génèrent un effet de serre additionnel perturbant le cycle naturel ainsi que la couche d'ozone. Dans le cadre du protocole de Kyoto, il a été convenu de limiter les émissions anthropiques en particulier du CO₂, du CH₄, de l'oxyde nitreux (N₂O) et de trois substituts des hydrofluorocarbures (HFC).

Le CH₄ est responsable de plus de 20% du forçage radiatif causé par les activités anthropiques. [Shindell et al., 2005] ont quantifié le forçage radiatif du méthane et des précurseurs d'ozone en se basant sur une approche par les émissions permettant de séparer les contributions des différents gaz à effet de serre depuis l'ère préindustrielle. Ils ont mis en évidence que les précurseurs d'ozone ont permis de limiter l'augmentation du CH₄ dans l'atmosphère, impliquant qu'une élimination des émissions anthropiques du CH₄ aurait le plus grand impact pour enrayer le réchauffement climatique, soit l'équivalent de 54% du forçage causé par le CO₂.

La limitation des effets du CH₄ sur le réchauffement climatique passe d'abord par une bonne compréhension des processus sous-jacents, puis par l'élaboration et la mise en place de nouvelles techniques à l'échelle mondiale qui permettraient de réduire ses émissions.

1.2 Sources

Le méthane est émis dans l'atmosphère par différents processus (voir table 1.1) qui peuvent être regroupés en trois catégories : les sources biogéniques, thermogéniques et pyrogéniques. Si les différentes sources du méthane sont relativement bien connues, leur étendue spatiale et leur variabilité le sont beaucoup moins, surtout en ce qui concerne les sources à dominante biogénique. Toutefois, depuis peu, quelques études tentent de quantifier de nouvelles sources anthropiques de CH₄ jugées de plus en plus préoccupantes (voir table 1.2).

Table 1 | CH₄ budget for the past three decades.

	Tg CH ₄ yr ⁻¹					
	1980-1989		1990-1999		2000-2009	
	Top-down	Bottom-up	Top-down	Bottom-up	Top-down	Bottom-up
Natural sources	203 [150-267]	355 [244-466]	182 [167-197]	336 [230-465]	218 [179-273]	347 [238-484]
Natural wetlands	167 [115-231] ^{19,21,76}	225 [183-266] ^{40,41}	150 [144-160] ^{21,74,77}	206 [169-265] ⁴⁰⁻⁴²	175 [142-208] ^{46,53,73,75,77,86}	217 [177-284] ⁴⁰⁻⁴²
Other sources	36 [35-36] ^{19,21,76}	130 [61-200]	32 [23-37] ^{21,74,77}	130 [61-200]	43 [37-65] ^{46,53,73,75,77}	130 [61-200]
Fresh water (lakes and rivers)		40 [8-73] ^{31,32}		40 [8-73] ^{31,32}		40 [8-73] ^{31,32}
Wild animals		15 [15-15] ¹⁶		15 [15-15] ¹⁶		15 [15-15] ¹⁶
Wildfires		3 [1-3] ^{16,47,55,88,89}		3 [1-5] ^{16,47,55,88,89}		3 [1-5] ^{16,47,55,88,89}
Termites		11 [2-11] ^{16,48,55,91}		11 [2-22] ^{16,37,87,91}		11 [2-22] ^{16,37,87,91}
Geological (incl. oceans)		54 [33-75] ^{35,55,90}		54 [33-75] ^{35,55,90}		54 [33-75] ^{35,55,90}
Hydrates		6 [2-9] ^{16,36,87}		6 [2-9] ^{16,36,87}		6 [2-9] ^{16,36,87}
Permafrost (excl. lakes and wetland)		1 [0-1] ⁵⁵		1 [0-1] ⁵⁵		1 [0-1] ⁵⁵
Anthropogenic sources	348 [305-383]	308 [292-323]	372 [290-453]	313 [281-347]	335 [273-409]	331 [304-368]
Agriculture and waste	208 [187-220] ^{19,21,76}	185 [172-197] ⁵⁶	239 [180-301] ^{21,74,77}	188 [177-196] ^{55,56,81}	209 [180-241] ^{46,53,73,75,77}	200 [187-224] ^{55,56,81}
Biomass burning (incl. biofuels)	46 [43-55] ^{19,21,76}	34 [31-37] ^{78,80}	38 [26-45] ^{21,74,77}	42 [38-45] ^{78,80}	30 [24-45] ^{47,53,72,73,75,77}	35 [32-39] ^{47,78,80,89}
Fossil fuels	94 [75-108] ^{19,21,76}	89 [89-89] ⁵⁶	95 [84-107] ^{21,74,77}	84 [66-96] ^{55,56,81}	96 [77-123] ^{46,53,73,75,77}	96 [85-105] ^{55,56,81}
Sinks						
Soils	21 [10-27] ^{19,21,76}	28 [9-47] ^{27,42}	27 [27-27] ²¹	28 [9-47] ^{27,42,89}	32 [26-42] ^{46,53,73,75,86}	28 [9-47] ^{27,42,89}
Total chemical loss	490 [450-533] ^{19,21,76}	539 [411-671] ^{21,29,38,83}	525 [491-554] ^{21,83}	571 [521-621] ^{21,29,38,83}	518 [510-538] ^{46,53,73,75,77}	604 [483-738] ^{21,29,38,83}
Tropospheric OH		468 [382-567] ^{30,38}		479 [457-501] ^{30,38}		528 [454-617] ^{30,38}
Stratospheric loss		46 [16-67] ^{22,38,83}		67 [51-83] ^{21,38,83}		51 [16-84] ^{21,38,83}
Tropospheric Cl		25 [13-37] ²⁹		25 [13-37] ²⁹		25 [13-37] ²⁹
TOTALS						
Sum of sources	551 [500-592]	663 [536-789]	554 [529-596]	649 [511-812]	548 [526-569]	678 [542-852]
Sum of sinks	511 [460-559]	539 [420-718]	542 [518-579]	596 [530-668]	540 [514-560]	632 [592-785]
Imbalance (sources-sinks)	30 [16-40]		12 [7-17]		8 [-4-19]	
Atmospheric growth rate	34		17		6	

Top-down and bottom-up estimates are listed separately for the different categories in Fig. 1. For top-down inversions, the 1980s decade starts in 1984. Numbers in square brackets represent minimum and maximum values. A balance with the atmospheric annual increase and the sum of the sources has been assumed for inversions not reporting their global sink. Stratospheric loss for bottom-up is the sum of the loss by radicals, a 10 Tg yr⁻¹ loss due to O(D) radicals²² and a 20-35% contribution due to Cl radicals²⁹. Ranges of total chemical loss are about half the reported ranges (for example, [509-619] for the 2000s) when removing one outlier.

TABLE 1.1 – Présentation synthétique des estimations décennales des sources et des puits du méthane à partir de nombreuses études en distinguant les approches montante ("bottom-up") et descendante ("top-down") (d'après [Kirschke et al., 2013]).

Émissions	Tg/an	%	Source
Agriculture-dépôts	209	47	[Kirschke et al., 2013]
Feux de biomasse	30	7	[Kirschke et al., 2013]
Énergies fossiles	96	22	[Kirschke et al., 2013]
Lacs de barrage	104	24	[Lima et al., 2008]
Gaz de schiste	2,3	1	[Allen et al., 2013]
Véhicules Gaz naturel	0,037	0	[Pan et al.,2014]
Total	441,3		

TABLE 1.2 – Mise à jour de la composante anthropique des émissions de CH_4 . Les émissions connues sont les valeurs moyennes de l'approche "top-down" entre 2000 et 2009 (voir table 1.1). Les sources provenant, respectivement des gaz de schiste et des véhicules au gaz naturel sont des estimations régionales (respectivement pour les USA et la Chine).

1.2.1 Sources biogéniques

1.2.1.1 Processus

Dans les zones humides, deux types de bactéries sont responsables de la formation du méthane : les bactéries anaérobies et les méthanogènes. Les bactéries anaérobies agissent en profondeur dans des conditions de faible teneur en oxygène (voir figure 1.1). Elles sont responsables de la fermentation de sucres ou d'acides aminés pour former des substrats utilisables par les bactéries méthanogènes pour produire du méthane. Dans les couches moins profondes, un troisième type de bactéries est responsable de la dégradation aérobie du méthane, ce sont les méthanotrophes (voir figure 1.1). C'est le bilan de l'activité de ces trois bactéries qui détermine le flux net de méthane réellement émis vers l'atmosphère. Par ailleurs, comme les bactéries méthanogènes sont plus sensibles aux variations de température que les bactéries méthanotrophes, une augmentation de la température entraîne généralement une augmentation des émissions de méthane sous l'hypothèse que les autres paramètres physico-chimiques du milieu restent stables. Toutefois, dans certains cas, le sol peut également se comporter comme un puits de méthane.

1.2.1.2 Zones marécageuses

Les zones marécageuses représentent la principale source naturelle du méthane ([Fung et al., 1991]) avec des émissions estimées entre 100 et 231 Tg/an [Denman et al., 2007]. Elles sont principalement localisées dans les Tropiques mais des études récentes ont mis en évidence une contribution

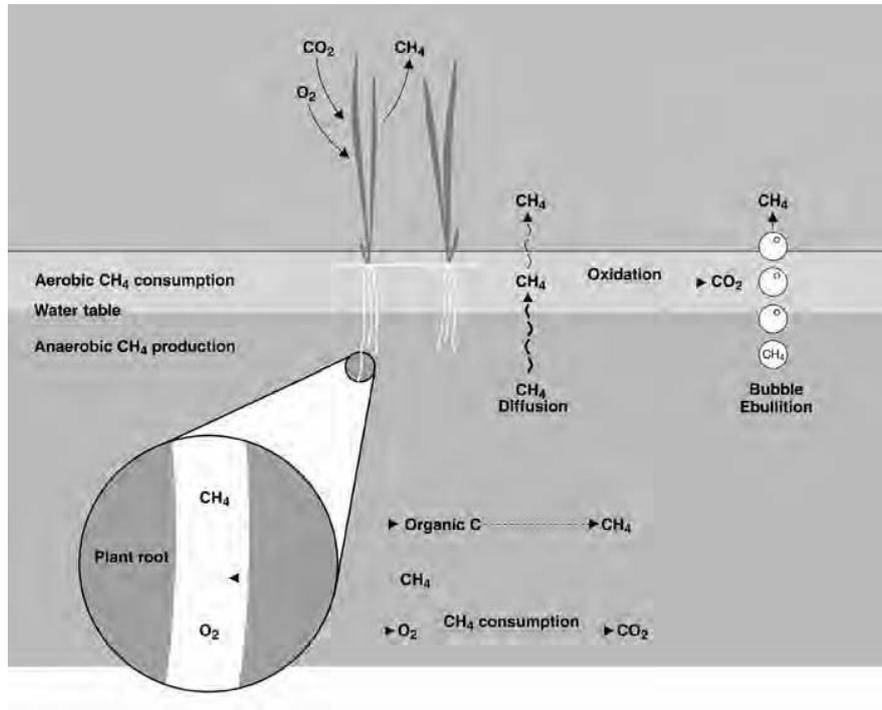


FIGURE 1.1 – Processus d'émissions et de pertes de méthane dans les zones humides (d'après [Christensen, 2010]). Le méthane est tout d'abord produit dans la couche dépourvue d'oxygène et une partie du méthane est consommée par la partie inondée riche en oxygène. Le méthane est émis dans l'atmosphère par transfert par les plantes, par diffusion ou par dégazement sous forme de bulles de gaz.

de l'ordre de 30% provenant des zones marécageuses de la région arctique [Bousquet et al., 2006]. Ces émissions sont difficiles à quantifier car leur étendue spatiale est assez mal connue. De plus, leur variabilité interannuelle peut être assez importante car elle dépend de nombreux paramètres physico-chimiques. En effet, les émissions de zones marécageuses sont connues pour être sensibles aux variations de température [Christensen et al., 2003], aux variations de profondeur de la couche d'eau [MacDonald et al., 1998] ainsi qu'à la disponibilité en substrats [Christensen et al., 2003]. Pour les zones marécageuses des hautes latitudes nord, la variabilité de la température du sol explique 84% de la variabilité des émissions de CH_4 [Christensen et al., 2003]. Ainsi, la réponse des zones marécageuses au réchauffement climatique est importante. Une étude théorique a quantifié une augmentation de 78% des émissions de CH_4 en réponse à une augmentation de 50% de la concentration du CO_2 . De plus, cette rétroaction sur le climat amplifierait le forçage radiatif

anthropique de 3,5 à 5 % [Gedney et al., 2004].

1.2.1.3 Lacs de barrage

Les lacs de barrage servent à réguler l'écoulement des rivières, à constituer une réserve en eau potable, à irriguer les terres pour l'agriculture et également à produire de l'énergie hydroélectrique. Des mécanismes d'effervescence et de diffusion naturels similaires à ceux des zones marécageuses (voir figure 1.1) sont responsables d'émissions de CH_4 dans ces lacs. Toutefois, il se produit également un dégazage important de CH_4 par effet de pression lors du passage de l'eau saturée en CH_4 dans les turbines du barrage. Ce processus accentue les émissions de CH_4 qui s'élèvent à 104 Tg/an [Lima et al., 2008] dans les lacs de barrage à travers le monde.

1.2.1.4 Végétation

Les plantes peuvent émettre du méthane en présence d'oxygène. Ces émissions proviennent de pectine présente dans les feuilles et dépendent de l'exposition ultra-violet [Vigano et al., 2008] mais aussi de la température. De nombreuses expériences ont été menées en laboratoire à partir de feuilles détachées et de plantations sous différentes conditions de température et d'éclairement [Keppler et al., 2006, Bruhn et al., 2009, McLeod et al., 2008]. Toutefois, les plantes peuvent également transmettre du méthane produit en profondeur vers l'atmosphère, ce qui complique l'estimation des émissions effectivement produites par la végétation en entraînant une surestimation de ces émissions. S'étant affranchis de la composante des émissions transmise par les plantes, [Kirschbaum et al., 2007] évaluent les émissions provenant de la végétation à 15-60 Tg/an dont la moitié provient des régions tropicales, ce qui coïncide avec l'étude de [Butenhoff and Khalil, 2007] (20-69 Tg/an).

1.2.1.5 Riziculture

Les sols saturés en eau tels que les rizières possèdent des conditions propices à la méthanogenèse (absence oxygène, richesse en carbone). La majorité des rizières (90%) sont localisées en Asie, dans des régions où la mousson est importante. La plupart des rizières sont immergées un tiers du temps et les pratiques de culture varient beaucoup sur tout le globe. Les rizières continuellement irriguées sont responsables de taux d'émissions très importants alors que celles qui sont irriguées de façon naturelle suivant le cycle des pluies émettent très peu voire pas du tout. Par ailleurs, 80 % du méthane produit dans le sol par les bactéries méthanogènes peut être oxydé avant son entrée dans l'atmosphère [Sass et al., 1991, Tyler et al., 1997]. Cependant,

l'utilisation d'engrais chimiques enrichis en matière organique inhibe cette oxydation et seul 50% du méthane produit est oxydé, ce qui a pour conséquence d'augmenter les émissions.

1.2.1.6 Ruminants

Les ruminants émettent également du CH_4 car leur estomac possède des propriétés physico-chimiques semblables à celles rencontrées dans les zones humides. Dans la catégorie des ruminants, on compte les bovins, les moutons, les chèvres et les chevreuils. Ceux-ci disposent d'un estomac à quatre compartiments dont trois sont des pré-estomacs et un constitue l'estomac au sens strict. Le rumen, le plus volumineux des quatre, est une chambre où fermentent les aliments par deux fois avant d'être digérés. Environ 80% du méthane émis par les ruminants est produit dans le rumen [Immig, 1996]. Les conditions y sont idéales à sa formation car la température avoisine les 40° et l'environnement y est humide et dépourvu d'oxygène. On estime les émissions de CH_4 provenant de cette source à 70 Tg/an.

1.2.1.7 Termites

De la même façon que pour les ruminants, du méthane est produit dans la panse des termites. Celle-ci contient une microflore bactérienne abondante dont des méthanogènes. La quantité de méthane produit par les termites dépend de leur famille ainsi que de la taille de la colonie [Watt, 1997]. De nombreuses études ont été menées en laboratoire sur différentes familles de termites afin d'estimer leur impact mondial sur les émissions de méthane. Si les termites sont restées longtemps une source surestimée et mal comprise, on considère aujourd'hui qu'elles constituent une source mineure de méthane. [Sugimoto et al., 1998] estiment entre 1,47 et 7,41 Tg/an les émissions de méthane dues aux termites.

1.2.1.8 Dépôts organiques

Les décharges sont des environnements très riches en substrats et soumis à des conditions de faible teneur en oxygène. De ce fait, elles présentent des conditions propices à la production de méthane. Toutefois, l'estimation des émissions provenant de ces sources est difficile car les décharges sont des sites ponctuels peu étendus mais très dispersés. Différentes études de sites ont été menées et ont révélé localement à la fois des flux positifs et des flux négatifs de méthane [Bogner et al., 1997, Scheutz et al., 2009]. Ces sources et puits locaux reflètent l'hétérogénéité de la couche, des échanges aux interfaces, des

caractéristiques des infiltrations ou encore la formation de macropores. Une approche géostatistique est utilisée à partir de l'observation de chambres à petite échelle pour en déduire des flux nets à plus grande échelle, nationale par exemple. Le Groupe d'Experts Intergouvernemental sur l'évolution du Climat (GIEC) recense les émissions nationales pour les pays membres et on estime à 70 Tg/an les émissions mondiales dues aux dépôts organiques domestiques [Bingemer and Crutzen, 1987] alors que les dépôts d'origine agricole sont à l'origine d'une source de 14 à 25 Tg/an.

1.2.1.9 Pergélisol

Une zone est qualifiée de pergélisol lorsque le sol y est gelé pendant au moins deux années consécutives. Lors de la fonte des glaces, le méthane qui y a été emprisonné est susceptible d'être relâché dans l'atmosphère. Le réchauffement climatique accélère la fonte du pergélisol arctique. On estime à 1024 Pg la quantité de carbone enfouie dans les 3 premiers mètres de glace [Tarnocai et al., 2009]. Sa fonte aurait donc un impact considérable sur le climat. Une étude de [Lawrence and Slater, 2005] avait d'ailleurs prédit une fonte de 50 à 90% du pergélisol polaire nord d'ici 2100. Cette fonte est déjà engagée puisque [Jolivel and Allard, 2013] mettent en évidence la disparition de 21% du pergélisol au nord du Canada entre 1957 et 2009.

1.2.1.10 Hydrates de méthane

Les hydrates de méthane sont semblables à de la glace et sont formés de méthane et d'eau sous des conditions de haute pression et de température proche du point de congélation. Ils se forment lorsque le méthane entre dans la zone de stabilité des hydrates (voir figure 1.2). Ceux-ci possèdent une capacité de stockage de méthane très importante puisqu'un seul mètre cube d'hydrates de méthane est capable de stocker 170 à 180 mètres cubes standards de méthane [Kvenvolden et al., 1993, Sloan, 2003]. Ces hydrates sont stockés principalement dans les océans et en plus faible proportion dans les couches continentales. Des études sur les hydrates de méthane estiment la quantité stockée dans les océans à $1, 10^7$ Tg [Kvenvolden and Lorenson, 2001], $2, 10^6$ Tg [Milkov, 2004] et $7, 4.10^7$ [Klauda and Sandler, 2005]. Toutefois, les émissions provenant des hydrates de méthane restent encore marginales et elles sont estimées entre 2 et 9 Tg [Kirschke et al., 2013].

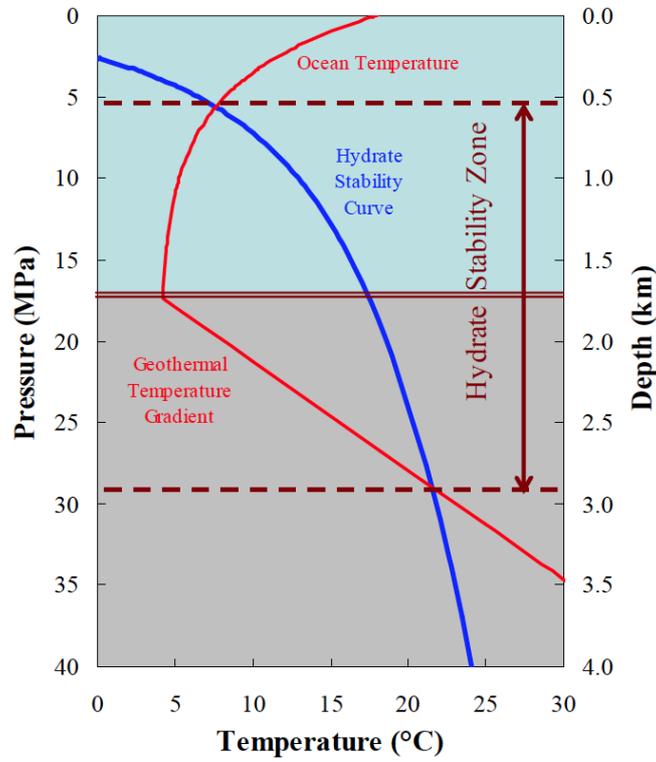


FIGURE 1.2 – Zone de stabilité des hydrates en fonction des conditions de température et de pression (d’après [EPA, 2010]).

1.2.2 Sources thermogéniques

1.2.2.1 Exploitation de combustibles fossiles

Les énergies fossiles constituent une source importante du méthane avec environ 75 Tg/an émis dans l’atmosphère lors de l’extraction, du stockage, du traitement et du transport des combustibles. Du méthane peut également être émis lors de combustion incomplète. Historiquement, la source anthropique de CH_4 la plus importante était l’exploitation du charbon, formé lors de processus géologiques très longs. Lorsque sa concentration atteint 5 à 15%, le CH_4 est facilement inflammable. Pour pallier ce risque, les mines sont généralement ventilées. Cependant, ces ouvertures entraînent des échappements continus de méthane et contribuent à augmenter les émissions provenant des énergies fossiles. Par ailleurs, des études récentes ont mis en évidence le fait que l’exploitation de gaz de schiste aurait un impact écologique encore plus important que le charbon [Tollefson, 2012, Tollefson, 2013]. Par exemple, selon une étude de [Allen et al., 2013], la production de gaz de schiste aux

États-Unis émettait 2,3 Tg/an de méthane au début de la décennie. De plus, l'utilisation de véhicules fonctionnant au gaz naturel contribuerait également à augmenter les émissions de CH_4 . En effet, l'utilisation de tels véhicules a été multipliée par 44 en Chine entre 2002 et 2012 et on estime ces émissions à 0.037 Gg/an en 2010 à partir de campagnes de terrains [Pan et al.,2014]. Par ailleurs, cette étude estime également ces émissions à 207 Gg/an à l'horizon 2020. , l'importance relative de ces émissions est passée de 2 à 28% du budget mondial de méthane [Pan et al.,2014].

1.2.2.2 Sources géologiques

Le méthane géologique est la source naturelle du méthane fossile. Il constitue la deuxième source naturelle la plus importante après les zones humides. D'une part, il est produit par une activité géologique ancienne dans les roches sédimentaires peu profondes et sous des conditions de faible température. D'autre part, il est produit par des processus thermogéniques dans des roches plus profondes et sous des conditions de haute température. Il est relâché dans l'atmosphère par des failles actives et des roches fracturées après migration menée par des gradients de pression ou de densité. Cette remontée d'eau et de gaz forme en surface des cônes sédimentaires et est responsable de 5 à 10 Tg/an d'émissions mondiales de méthane [Etiopie and Milkov, 2004]. On estime les émissions mondiales provenant de l'ensemble des sources géologiques entre 33 et 75 Tg/an [Kirschke et al., 2013].

1.2.3 Sources pyrogéniques

Les feux de biomasse englobent les feux initiés par l'action de l'homme mais également ceux initiés par le rayonnement solaire en cas de forte sécheresse. Ces derniers ne représentent toutefois que 10% des feux mondiaux.

1.2.3.1 Feux de biomasse

Les feux de biomasse sont responsables de 25 à 45 Tg/an des émissions de méthane [Kirschke et al., 2013]. Celles-ci proviennent de la combustion incomplète des forêts, de tourbes, de savanes et de déchets agricoles. En effet, la combustion de tourbes et de déchets agricoles produit des émissions assez importantes de méthane à cause de la teneur en eau du sol et de la faible disponibilité en oxygène. La différenciation entre feux de biomasse naturels et ceux initiés par l'homme est très complexe car ils coïncident souvent en temps et localisation spatiale, ce qui rend la séparation des signaux atmosphériques compliquée. Ces feux sont majoritairement localisés dans les Tropiques mais

une faible pluviosité permet également des feux dans les régions boréales. Par ailleurs, les feux domestiques constituent également une source de méthane non négligeable puisqu'ils seraient responsables de 20% du carbone relâché dans l'atmosphère lors de feux de biomasse [Koppmann et al., 2005].

1.3 Puits

Le méthane est produit par différentes sources mais il est également détruit par les sols et par réaction chimique dans l'atmosphère. La perte de CH_4 par oxydation dans les sols avec les bactéries méthanotrophes est estimée à 30 Tg/an. Cependant, le méthane reste majoritairement détruit dans l'atmosphère notamment par réaction chimique avec le radical hydroxyle (OH). Par ailleurs, l'oxydation du méthane limite en elle-même la capacité oxydante de l'atmosphère. La perte de méthane par réaction avec OH dans la troposphère est estimée entre 429 et 507 Tg/an à laquelle s'ajoute une perte de l'ordre de 40 Tg/an par réaction avec OH dans la stratosphère. On compte également des puits mineurs du méthane par réaction avec les ions chlorure et oxygène dans la stratosphère ainsi que par réaction avec les ions chlorure dans la couche limite marine.

1.4 Concentration atmosphérique du méthane

1.4.1 Observations

La concentration atmosphérique du CH_4 reflète le bilan entre les sources et les puits. Elle est aujourd'hui observée à partir de divers systèmes d'observation. D'une part, elle est mesurée de façon directe par des stations de surface, des avions, des ballons. D'autre part, on peut également retrouver la concentration atmosphérique du CH_4 à partir de carottes de glaces et à partir d'observations satellitaires depuis 2002.

Des estimations de la fraction molaire du CH_4 réalisées à partir de carottes de glace ont mis en évidence une augmentation exponentielle du CH_4 entre 1850 et 1970 [Petit et al., 1999]. Depuis 1970, sa fraction molaire est mesurée directement et précisément (0,2%) par les stations de surface. Celle-ci a atteint 1794 ± 2 ppb en 2010, soit une augmentation de +150% depuis le début de l'ère industrielle [Dlugokencky et al., 2011].

1.4.2 Tendances

Le taux de croissance du CH_4 dans l'atmosphère est obtenu en dérivant la concentration du CH_4 par rapport au temps (voir figure 1.3). À l'échelle du globe, il présente une forte variabilité interannuelle dominée principalement par les émissions des zones humides et la variabilité du puits par OH dans les Tropiques [Dlugokencky et al., 2009]. Il a connu d'importantes variations depuis 1980 qui ont fait l'objet de plusieurs hypothèses parfois conflictuelles.

L'observation d'une diminution du taux de croissance du CH_4 jusqu'en 1999, notamment dans l'hémisphère nord, suggère un ralentissement des émissions de CH_4 dans ces régions. L'étude de [Kai et al., 2011] explique ce ralentissement par une diminution des émissions liées à l'utilisation massive d'engrais chimiques pour la riziculture. Cependant, d'autres études exploitant des mesures d'éthane [Aydin et al., 2011, Simpson et al., 2012] ou de la composition isotopique du méthane $\delta^{13}\text{C}-\text{CH}_4$ contredisent cette hypothèse et expliquent ce ralentissement par une diminution des émissions des énergies fossiles.

Ce ralentissement est suivi d'une période de stabilité entre 2000 et 2006. Selon [Bousquet et al., 2006], cette stabilité n'est qu'apparente et masque une compensation entre une diminution des émissions des zones humides en raison d'un climat plus sec après 1999 et une augmentation des émissions provenant des énergies fossiles.

On observe également une nouvelle augmentation du taux de croissance du CH_4 depuis 2007. Cette augmentation serait due selon [Rigby et al., 2008, Dlugokencky et al., 2009, Dlugokencky et al., 2011] à une augmentation des émissions en énergies fossiles. Cependant, [Aydin et al., 2011] contredisent cette hypothèse avec l'observation de la diminution de la concentration d'éthane, une autre molécule liée aux émissions provenant des énergies fossiles. Par ailleurs, [Rigby et al., 2008] mettent en évidence le fait que la concentration d'OH a diminué en 2006-2007 et pourrait également avoir contribué à l'augmentation de la concentration du CH_4 . Toutefois, cette contribution reste relativement marginale.

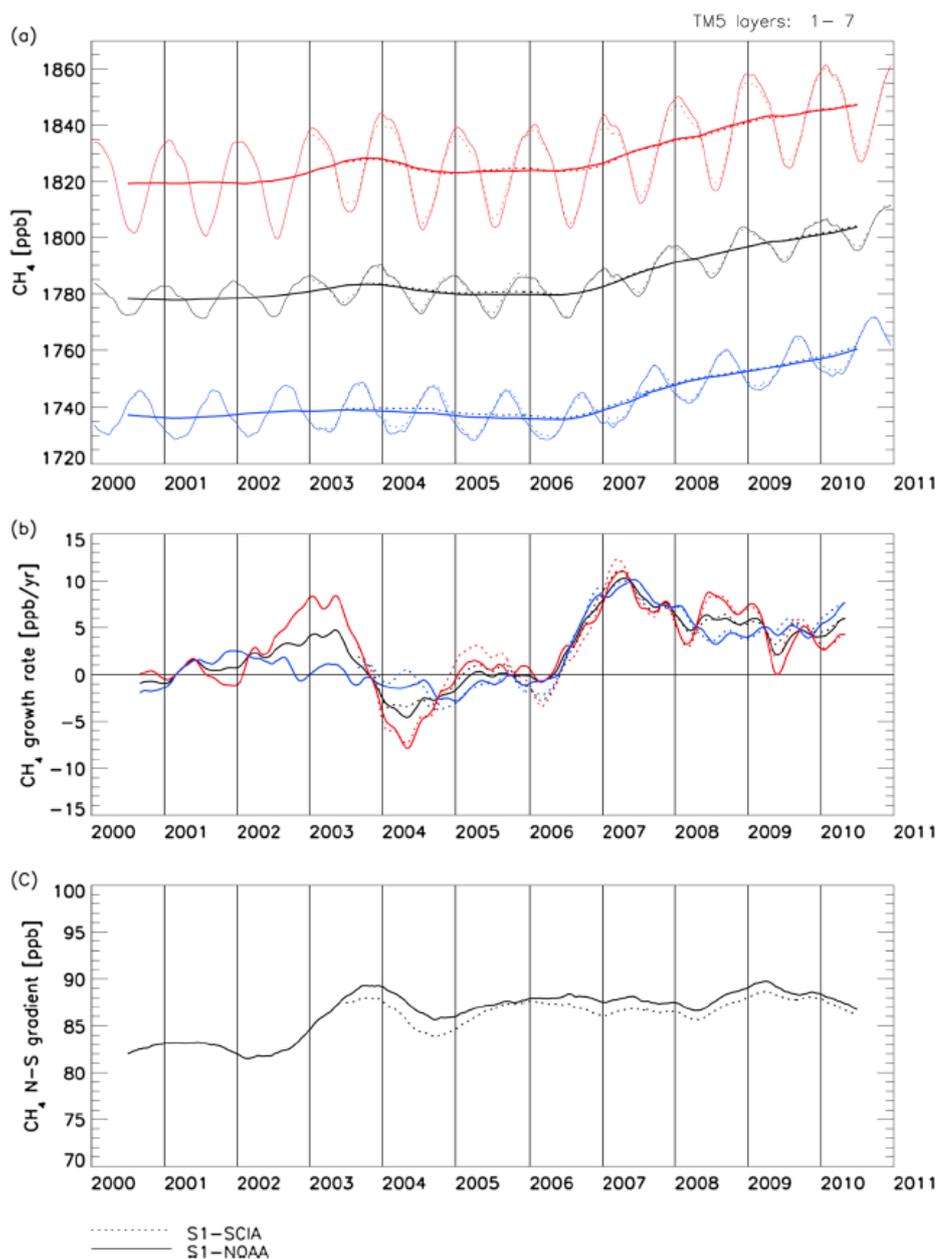


FIGURE 1.3 – Tendances récentes des concentrations (a) et du taux de croissance (b) moyennés pour le globe (en noir) et pour chaque hémisphère (HN en rouge et HS en bleu). Les courbes lisses correspondent à une moyenne glissante sur 12 mois. (c) représente le gradient interhémisphérique du CH_4 (d'après [Bergamaschi et al., 2013].)

MÉTHODE

Sommaire

2.1	Problème inverse	20
2.1.1	Approche bayésienne	21
2.1.2	Résolution	24
2.1.3	Caractérisation des erreurs	26
2.1.4	Diagnostics	28
2.2	Application à la chimie atmosphérique	31
2.3	Modèle de chimie-transport	32

Si les processus et les émissions de CH_4 sont de mieux en mieux connus, les incertitudes associées à ces émissions demeurent importantes. La mise en place d'un problème inverse où sont assimilées les observations (de surface ou satellitaires) sur une grande fenêtre temporelle couplé à un modèle de chimie-transport permet de réduire ces incertitudes et de ce fait de mieux caractériser les émissions de CH_4 .

2.1 Problème inverse

Le méthane est émis dans l'atmosphère à partir de sources diverses relativement bien connues (voir chapitre 1). Il est ensuite transporté et mélangé par les vents dans les différentes couches de l'atmosphère.

En se mélangeant dans l'atmosphère, le méthane se retrouve au contact de d'autres molécules avec lesquelles il peut interagir. On définit le temps de vie d'une molécule comme son temps de résidence dans l'atmosphère jusqu'à ce qu'elle soit finalement détruite par réaction chimique. [Stevenson et al., 2006] estiment la durée de vie du méthane à $8,67 \pm 1,32$ ans à partir de l'inter-comparaison de 26 modèles de chimie-transport représentatifs de l'état de l'art.

La durée de vie d'une molécule est représentative de l'efficacité de ses puits. Pour le cas du méthane, sa durée de vie est directement liée à la capacité oxydante de l'atmosphère puisque OH est responsable de près de 90% de sa destruction dans la troposphère. En tant que principal puits du CH_4 , la modélisation d'OH est importante. Toutefois, celle-ci est rendue complexe non seulement à cause de la non linéarité de la photochimie atmosphérique mais aussi à cause de la forte variabilité d'OH.

D'une part, OH est formé de façon primaire sous l'action des rayons UV et de façon secondaire en tant que produit de réactions chimiques notamment celles impliquées dans le cycle de l'ozone (O_3). Pour la formation secondaire, on parle alors de recyclage d'OH. Dans ce cas, les concentrations et les distributions d'oxyde nitrique (NO_x), d'eau (H_2O) de monoxyde de carbone (CO) d' O_3 et de CH_4 favorisent ou non ce recyclage [Montzka, 2011]. [Lelieveld et al., 2004] ont discuté la sensibilité d'OH à divers paramètres, ce qui est résumé sur la table 2.1. Ils suggèrent qu'une augmentation de la concentration de CH_4 peut soit favoriser le recyclage d'OH sans impact sur la durée de vie du CH_4 (dans un environnement enrichi en NO_x), soit diminuer la disponibilité en OH dans l'atmosphère entraînant ainsi une augmentation de la durée de vie du CH_4 (dans un environnement appauvri en NO_x).

Forcing	Mechanism	Response
CH ₄ ↑	CH ₄ +OH→products	OH↓
CO↑	CO+OH→products	OH↓
NO _x ↑	O ₃ formation, OH recycling	OH↑
NMHCs↑	NMHC oxidation→products	OH ?
Aerosols↑	Sunlight extinction; heterogeneous chemistry	OH ?
Clouds↑	Sunlight extinction; multiphase chemistry	OH ?
Rain rate↑	H ₂ O ₂ deposition↑	OH↓
H ₂ O↑	H ₂ O+O(¹ D)→2OH	OH↑
CFCs↑	stratospheric O ₃ ↓, tropospheric UV↑	OH↑

TABLE 2.1 – Sensibilité d’OH aux variations de divers paramètres (d’après [Lelieveld et al., 2004]).

OH possède une forte variabilité du fait de sa faible durée de vie (1s). De ce fait, des mesures directes ne fournissent qu’une vision très locale de sa concentration atmosphérique. On cherche donc à estimer un champ tridimensionnel moyen d’OH, plus représentatif de la capacité oxydante de l’atmosphère, pour estimer le puits du CH₄. Pour ce faire, on utilise la concentration atmosphérique d’une molécule témoin des concentrations d’OH. Dans notre cas, on utilise le méthyle chloroforme (MCF), qui possède une durée de vie de 5,3 ans et ne réagit qu’avec OH.

Les émissions de surface de méthane couplées au puits de méthane dans la troposphère par réaction avec OH modifient à chaque instant la concentration atmosphérique du CH₄. De ce fait, l’exploitation des mesures de concentration pour retrouver les flux de surface de CH₄ repose sur une bonne connaissance des processus dynamiques et chimiques sous-jacents.

2.1.1 Approche bayésienne

La modélisation de l’atmosphère et de sa composition est un problème déterministe basé sur des équations de l’écoulement atmosphérique (Navier-Stokes). Prenant en compte à la fois la dynamique et la chimie de l’atmosphère, ces équations sont complétées par des équations de conservation de la masse et des vitesses de réactions chimiques et de dépôts. L’ensemble des équations constituent le lien (noté H) entre l’espace des émissions rassemblées dans le vecteur \mathbf{x} et l’espace des observations rassemblées dans le vecteur \mathbf{y} . Il est

appelé modèle direct et s'écrit :

$$\mathbf{y}^\circ = H(\mathbf{x}) + \epsilon \quad (2.1)$$

où ϵ représente l'erreur de H .

On cherche à estimer les flux de surface de méthane ainsi que le puits atmosphérique à la surface du globe à partir de mesures de concentrations atmosphériques (du méthane et d'autres molécules réactives impliquées dans la chaîne d'oxydation du méthane) à une résolution du point de grille. Toutefois, l'information disponible pour résoudre notre problème est lacunaire.

D'une part, les observations de concentrations atmosphériques sont éparées. En effet, les stations de surface sont réparties de façon hétérogène sur le globe et on en compte très peu dans les Tropiques. Si les satellites fournissent une meilleure densité d'information que les stations de surface, la distribution spatiale des mesures satellitaires de colonnes atmosphériques varie en fonction de l'ensoleillement ou de la couverture nuageuse. De ce fait, ces observations ne suffisent pas pour résoudre l'ensemble des champs du méthane qui varient beaucoup dans l'espace et dans le temps. Le problème à résoudre ici est donc sous-déterminé, c'est-à-dire il possède une infinité de solutions.

D'autre part, la modélisation de la théorie physique et les observations sont incertaines. La théorie physique reflète non seulement notre compréhension du problème physique mais aussi son implémentation dont la complexité et la précision dépendent des moyens de calculs existants. Les observations sont également entachées d'erreurs expérimentales dues à la précision de la mesure et à la nature de la mesure elle-même. Les stations de surface renseignent sur la concentration atmosphérique dans les basses couches de l'atmosphère à une précision de l'ordre de 0,2% tandis que les satellites fournissent une mesure de la colonne totale (ou partielle suivant la sensibilité de l'instrument, voir les détails au chapitre 3) de concentration atmosphérique de CH_4 avec une précision en général de 1-2% de la mesure.

Dans un tel contexte, la formulation du problème peut se baser sur une approche statistique où les différentes sources d'information sont des variables aléatoires mises sous la forme de fonctions densité de probabilité (pdf). On utilise ici le théorème de Bayes comme paradigme. Le théorème de Bayes, sous sa forme continue, s'écrit de la manière suivante :

$$p(\mathbf{x}|\mathbf{y}^\circ) = \frac{p(\mathbf{y}^\circ|\mathbf{x})p(\mathbf{x})}{p(\mathbf{y}^\circ)} \quad (2.2)$$

$p(\mathbf{x})$ représente la pdf a priori, qui est la meilleure représentation des paramètres du modèle avant inversion. $p(\mathbf{y}^\circ)$ représente la pdf des observations. $p(\mathbf{y}^\circ|\mathbf{x})$ est la probabilité conditionnelle des observations étant donné l'état du modèle et $p(\mathbf{x}|\mathbf{y}^\circ)$ représente la probabilité conditionnelle de l'état du modèle étant donné les observations, c'est-à-dire la pdf a posteriori.

Notre objectif est d'exploiter l'information des observations afin d'améliorer notre connaissance sur les paramètres du modèle (ici des flux de surface de méthane). $p(\mathbf{y}^\circ)$ est une constante par rapport à \mathbf{x} , ce qui entraîne :

$$p(\mathbf{x}|\mathbf{y}^\circ) \propto p(\mathbf{y}^\circ|\mathbf{x})p(\mathbf{x}) \quad (2.3)$$

On se place sous hypothèse gaussienne. De ce fait, les pdf du problème s'écrivent :

$$p(\mathbf{x}) \propto \exp\left(-\frac{1}{2}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b)^T \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b)\right) \quad (2.4)$$

$$p(\mathbf{y}^\circ|\mathbf{x}) \propto \exp\left(-\frac{1}{2}(\mathbf{y}^\circ - H(\mathbf{x}))^T \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{y}^\circ - H(\mathbf{x}))\right) \quad (2.5)$$

avec les matrices de covariances \mathbf{B} et \mathbf{R} représentant respectivement les erreurs associées à \mathbf{x}^b et \mathbf{y}° .

Sous hypothèse gaussienne et à condition que le problème soit linéaire (ou faiblement non linéaire), la pdf a posteriori est également décrite par une gaussienne :

$$p(\mathbf{x}|\mathbf{y}^\circ) \propto \exp(-J(\mathbf{x})) \quad (2.6)$$

où J est la fonction de coût et s'écrit :

$$J(\mathbf{x}) = \frac{1}{2}(\mathbf{y}^\circ - \mathbf{H}\mathbf{x})^T \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{y}^\circ - \mathbf{H}\mathbf{x}) + \frac{1}{2}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b)^T \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b) \quad (2.7)$$

avec \mathbf{H} la version linéarisée de l'opérateur d'observation H .

Le gradient de J s'écrit :

$$\nabla J(\mathbf{x}) = \mathbf{H}^T \mathbf{R}^{-1}(\mathbf{y}^\circ - \mathbf{H}\mathbf{x}) + \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b) \quad (2.8)$$

Le principe de l'approche bayésienne est de trouver la solution statistiquement optimale étant donné l'information disponible des observations et de l'a priori pondérée par leurs incertitudes respectives. Une telle approche revient à chercher le maximum de la pdf a posteriori, aussi appelé le maximum de vraisemblance, et est équivalent à rechercher le minimum de la fonction de coût J de l'équation 2.7.

2.1.2 Résolution

Afin de résoudre un tel problème, l'approche bayésienne dispose de trois formulations.

La formulation analytique est la plus précise des trois puisqu'elle prévoit le calcul numérique de la solution exacte du problème. Cette solution est l'estimateur \mathbf{x}^a :

$$\mathbf{x}^a = \mathbf{x}^b - (\mathbf{B}^{-1} + \mathbf{H}^T \mathbf{R}^{-1} \mathbf{H})^{-1} \mathbf{H}^T \mathbf{R}^{-1} (\mathbf{H} \mathbf{x}^b - \mathbf{y}) \quad (2.9)$$

L'incertitude associée à la solution \mathbf{x}^a , c'est-à-dire la matrice de covariance \mathbf{A} , est déduite de la théorie et des incertitudes de l'a priori, des observations et du modèle de transport.

$$\mathbf{A} = (\mathbf{B}^{-1} + \mathbf{H}^T \mathbf{R}^{-1} \mathbf{H})^{-1} \quad (2.10)$$

Cette formulation est particulièrement adaptée lorsque la dimension du problème est faible. Elle est notamment utilisée pour l'inversion des flux de surface de CH_4 sur de grandes régions par [Bousquet et al., 2011] (10 régions sur terre et 1 pour les océans décrivent le globe).

La formulation variationnelle [Talagrand and Courtier, 1987] donne une estimation approchée de la solution analytique de l'équation 2.9. Elle minimise de façon itérative la fonction de coût J à l'aide d'un minimiseur (gradient conjugué, algorithme de Newton...). Cette méthode présente l'avantage de pouvoir traiter des problèmes de très grandes dimensions mais ne permet pas d'accéder directement aux incertitudes associées à la solution optimale. Cette formulation a été implémentée par [Chevallier et al., 2005] pour estimer les flux de dioxyde de carbone (CO_2).

La formulation ensembliste [Evensen, 1994] est basée sur l'échantillonnage des variables aléatoires afin de décrire les pdf. En théorie, quand le nombre d'échantillons tend vers l'infini, ces échantillons décrivent la pdf exacte. De ce fait, le nombre d'échantillon (taille de l'ensemble) est limitant lors de l'implémentation de cette technique. On utilise en général de 100 à 200 membres [Peters et al., 2005].

La modélisation à haute résolution (point de grille) couplée à l'assimilation de données satellitaires (3 millions d'observations par jour pour l'instrument IASI) augmente considérablement la dimension du problème. En raison de la complexité cubique du problème inverse (complexité en $O(n^3)$ où n est la dimension du problème), la solution analytique n'est pas directement calculable.

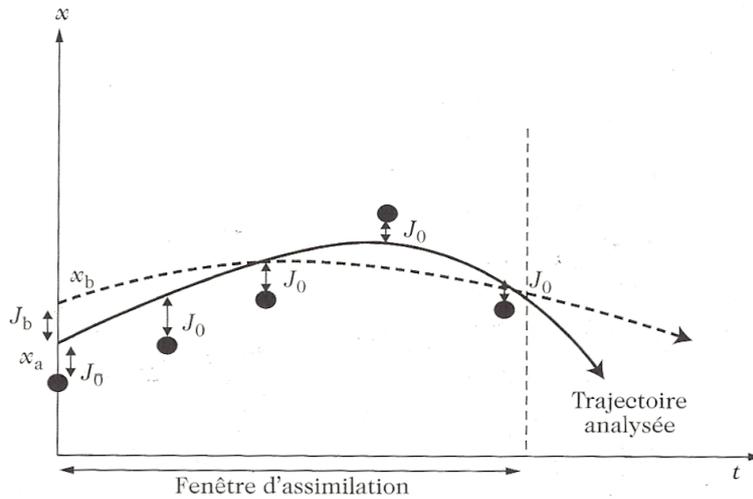


FIGURE 2.1 – Principe de la technique variationnelle 4D-Var. Cette technique permet de prendre en compte l'ensemble des observations au sein d'une fenêtre temporelle, prises chacune à l'instant de la mesure. La minimisation de la fonction de coût permet de minimiser l'écart entre la simulation et l'ensemble des observations de la fenêtre d'assimilation tout en conservant une cohérence avec la précision de l'information a priori (d'après [Delmas et al., 2005]).

De plus, la formulation ensembliste est très coûteuse à mettre en œuvre en termes de temps de calculs et un nombre de membres élevés garantissant la précision sur la solution optimale n'est pas envisageable pour notre problème.

De ce fait, on choisit ici d'utiliser un système d'assimilation variationnel (voir figure 2.1) qui permet d'une part d'assimiler toutes les observations en une fois et conserve donc la cohérence temporelle sur toute la période d'inversion et d'autre part de traiter des problèmes de très grandes dimensions. Le problème est résolu de façon itérative à l'aide du minimiseur M1QN3 développé par [Gilbert and Lemaréchal, 1989]. À chaque itération, le système utilise les codes du tangent linéaire ($\mathbf{H}\cdot$) et de l'adjoint ($\mathbf{H}^T\cdot$) du modèle de chimie-transport de la section 4.4.4.4. Comme la minimisation peut être assez coûteuse en termes de temps de calculs, on ajoute au minimiseur un préconditionnement afin d'en accélérer la convergence [Chevallier et al., 2007].

De plus en plus, on cherche à combiner l'approche variationnelle et l'approche ensembliste afin de créer un système hybride [Hamill and Snyder, 2000], la première pour l'estimation de la solution optimale et la seconde pour estimer la pdf a posteriori.

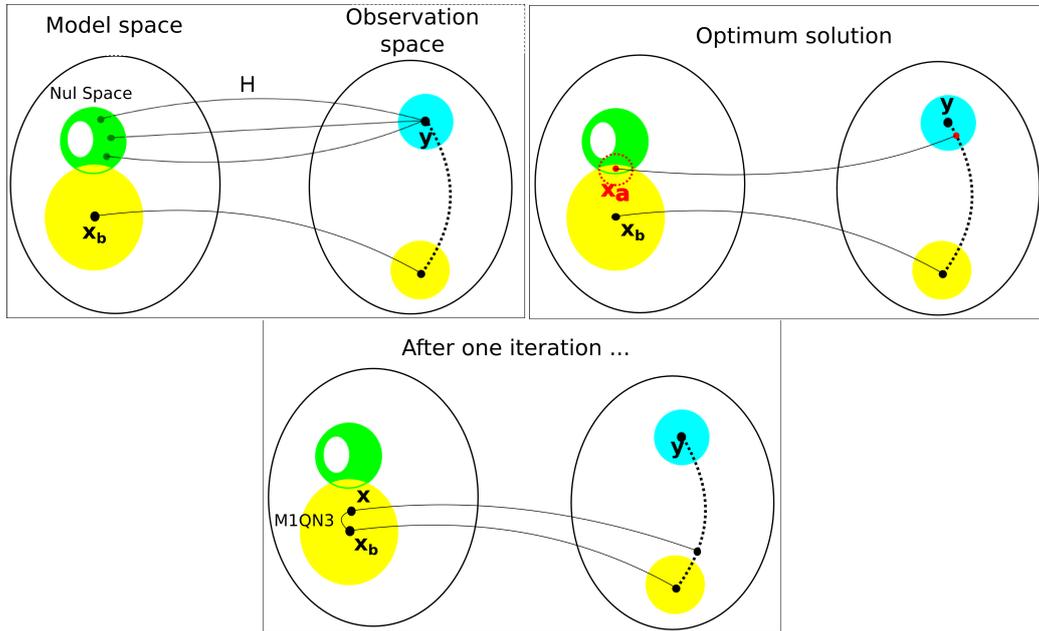


FIGURE 2.2 – Schéma simplifié du principe de l’assimilation variationnelle où l’espace des émissions est représenté par Model Space, l’espace des concentrations par Observation Space et le lien entre les deux par l’opérateur d’observation \mathbf{H} . La minimisation est réalisée de façon itérative jusqu’à trouver la solution optimale (\mathbf{x}_a) appartenant à l’espace des solutions (Null Space) tout en étant cohérent avec les erreurs de l’a priori (en jaune) et les erreurs associées aux observations (en bleu).

On utilise d’ailleurs les méthodes d’ensemble de Monte-Carlo afin de décrire la distribution des erreurs a posteriori \mathbf{A} , comme introduit par [Chevallier, 2007]. Cette méthode consiste à réaliser un ensemble d’inversions synthétiques avec l’a priori et les observations perturbés à partir des statistiques décrites par \mathbf{B} et \mathbf{R} respectivement. L’ensemble d’analyses résultant est cohérent avec la statistique des erreurs de la distribution a posteriori sous la condition d’un nombre de membres suffisant.

2.1.3 Caractérisation des erreurs

Par définition, la solution optimale \mathbf{x}^a et la matrice de sa distribution a posteriori \mathbf{A} (en rouge sur la figure 2.2) dépendent des matrices de covariances des erreurs prescrites en entrée \mathbf{R} et \mathbf{B} . De plus, la forme de ces matrices doit

être suffisamment simple pour les calculs tout en conservant un bon degré de réalisme.

La matrice de covariance des observations \mathbf{R} contient trois types d'erreurs différents : les erreurs instrumentales, les erreurs du modèle et les erreurs de représentativité. Les erreurs instrumentales sont dues à la précision de la mesure elle-même et sont le plus souvent fournies avec les observations. Les erreurs du modèle sont dues à l'imprécision du modèle sur le transport et la chimie. Les erreurs de représentativité désignent l'inadéquation entre les observations ponctuelles et les valeurs simulées moyennées sur la grille du modèle.

Dans notre cas, la matrice \mathbf{R} prend en compte les erreurs instrumentales et les erreurs du modèle de chimie-transport mais on néglige les erreurs de représentativité. Cette erreur est supposée relativement faible car les observations de concentrations atmosphériques sont moyennées sur la grille du modèle avant l'inversion. De plus, \mathbf{R} est diagonale, ce qui signifie que les corrélations entre les erreurs des observations ne sont pas directement prises en compte. Cependant, selon [Chevallier et al., 2010], il est possible de prendre en compte l'effet moyen de ces corrélations en gonflant artificiellement les variances.

La construction de la matrice \mathbf{B} est plus complexe puisque les incertitudes ne sont pas fournies avec les inventaires a priori. Différents inventaires réalisés pour chaque type de source (voir chapitre 1) sont combinés afin de réaliser l'inventaire a priori des émissions mondiales de méthane toutes sources confondues. Il en résulte une réalisation unique de l'a priori pour une année donnée à partir de laquelle il est difficile de déduire des statistiques.

C'est pourquoi la construction de la matrice \mathbf{B} se fait en général par jugement expert sous des contraintes physiques et numériques bien définies. En effet, \mathbf{B} doit être une matrice inversible (pour notre système, la base de vecteurs propres issue de sa diagonalisation doit être stockée en mémoire) et réaliste (on confronte nos bilans d'erreurs à l'état de l'art [Houweling et al., 1999, Bousquet et al., 2011, Kirschke et al., 2013]).

Les éléments de la matrice \mathbf{B} sont évalués comme valant un pourcentage des émissions a priori de CH_4 (par défaut 100%). À partir d'un schéma qui utilise le maximum des émissions a priori entre un pixel et ses huit plus proches voisins, on prend en compte indirectement l'incertitude sur la localisation des émissions de CH_4 . Ce schéma est particulièrement adapté pour les émissions des zones humides car leur distribution et leur étendue spatiale est incertaine. En revanche, il l'est moins pour des sources ponctuelles comme les

feux par exemple. Notre construction de \mathbf{B} prend également en compte des corrélations temporelle et spatiale de l'erreur homogènes et indépendantes l'une de l'autre. Ceci implique que les émissions de CH_4 sont corrélées d'une semaine sur l'autre mais aussi que les émissions de chaque pixel sont corrélées aux pixels voisins avec un rayon d'influence de 500 km sur terre et 1000 km pour les océans.

Par ailleurs, les éléments de la matrice \mathbf{B} sont évalués comme valant 1% des émissions a priori de MCF car on considère que ces émissions sont bien connues. Pour ces émissions, on utilise un schéma qui prend en compte le maximum des émissions rencontrées au cours du mois.

2.1.4 Diagnostics

Dans un contexte statistique, la caractérisation des erreurs est une problématique récurrente. En effet, une mauvaise représentation des erreurs peut conduire le système à converger vers une solution n'appartenant pas à l'ensemble des solutions (voir figure 2.2). Cependant, l'information disponible pour la construction des matrices de covariances \mathbf{B} et \mathbf{R} est relativement faible et repose le plus souvent sur un jugement expert, c'est-à-dire déduite de tests de sensibilité et de la littérature.

Toutefois, des diagnostics ont été développés par [Desroziers et al., 2005] afin d'extraire de l'information relative aux statistiques des erreurs à partir du vecteur d'innovation \mathbf{d}_b^o :

$$\mathbf{d}_b^o = \mathbf{y} - H(\mathbf{x}^b) \quad (2.11)$$

L'explicitation géométrique des quatre équations traduisant les diagnostics de [Desroziers et al., 2005] est représentée sur la figure 2.3. On exprime ainsi les distances entre les observations, l'a priori, l'analyse et la vérité à l'aide de triangles rectangles. Un angle droit permet de représenter une absence de corrélation, comme c'est le cas entre ϵ^o et ϵ^b par exemple. Avec cette représentation, les formules peuvent être retrouvées simplement à l'aide des théorèmes de Pythagore et d'Euclide.

L'établissement des quatre équations repose sur trois hypothèses simplificatrices. Dans ce qui suit, on explicite l'établissement de l'équation basée sur l'étude des variances du vecteur d'innovation ainsi que de l'équation décrivant les erreurs des observations. Les deux autres équations explicitant les erreurs de l'a priori et de l'analyse peuvent être obtenues de façon analogue.

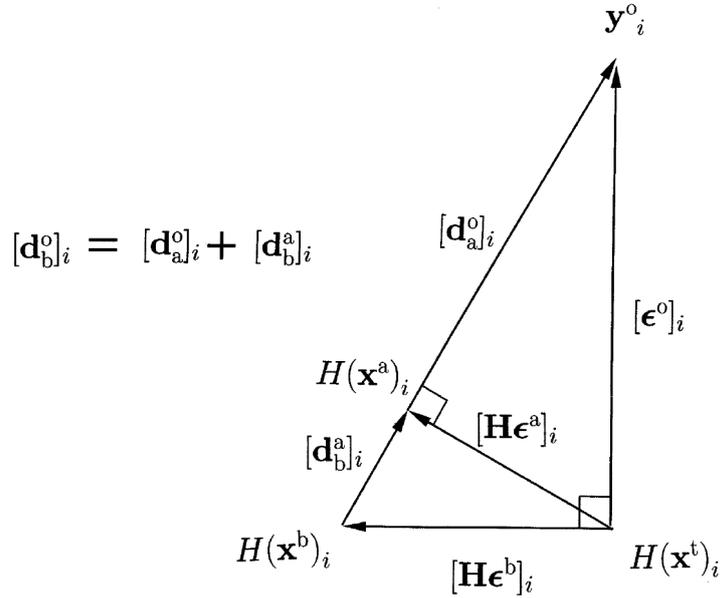


FIGURE 2.3 – Représentation géométrique des diagnostics (d’après [Desroziers et al., 2005]).

Premièrement, on suppose que l’opérateur d’observation H est linéaire ou peut être linéarisé. De ce fait, en introduisant la valeur vraie de \mathbf{x} appelée \mathbf{x}^t , le vecteur d’innovation s’écrit :

$$\begin{aligned}
 \mathbf{d}_b^o &= \mathbf{y} - H(\mathbf{x}^t) + H(\mathbf{x}^t) - H(\mathbf{x}^b) \\
 &\simeq \mathbf{y} - H(\mathbf{x}^t) + \mathbf{H}(\mathbf{x}^t - \mathbf{x}^b) \\
 &\simeq \boldsymbol{\epsilon}^o + \mathbf{H}\boldsymbol{\epsilon}^b
 \end{aligned} \tag{2.12}$$

où $\boldsymbol{\epsilon}^o$ représente les erreurs du vecteur des observations \mathbf{y} ($E(\boldsymbol{\epsilon}^o \boldsymbol{\epsilon}^{oT}) = \mathbf{R}$) et $\boldsymbol{\epsilon}^b$ les erreurs du vecteur a priori \mathbf{x}^b ($E(\boldsymbol{\epsilon}^b \boldsymbol{\epsilon}^{bT}) = \mathbf{B}$).

Deuxièmement, on suppose que le vecteur d’innovation est non biaisé, c’est-à-dire de moyenne nulle ($\mu_b^o = 0$). Sa variance se met ainsi sous la forme :

$$\begin{aligned}
 \text{Var}(\mathbf{d}_b^o) &= E(\mathbf{d}_b^o \mathbf{d}_b^{oT}) - (\mu_b^o)^2 \\
 &= E(\mathbf{d}_b^o \mathbf{d}_b^{oT})
 \end{aligned} \tag{2.13}$$

où E représente l’espérance mathématique.

Troisièmement, on suppose qu’il n’existe aucune corrélation entre les erreurs des observations et celles de l’a priori, c’est-à-dire que $E(\boldsymbol{\epsilon}^o \boldsymbol{\epsilon}^{bT}) = 0$.

De plus, comme l'opérateur E est linéaire :

$$\begin{aligned}
E(\mathbf{d}_b^o \mathbf{d}_b^{oT}) &= E((\epsilon^o + \mathbf{H}\epsilon^b)(\epsilon^o + \mathbf{H}\epsilon^b)^T) \\
&= E(\epsilon^o \epsilon^{oT}) + \mathbf{H}E(\epsilon^b \epsilon^{bT})\mathbf{H}^T \\
&= \mathbf{R} + \mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T
\end{aligned} \tag{2.14}$$

Ce résultat est la première équation des diagnostics et reflète la cohérence globale du système.

Une deuxième équation diagnostiquant les erreurs des observations se base également sur un calcul de variance à partir de la différence entre les observations et l'analyse ainsi que du vecteur d'innovation.

$$\mathbf{d}_a^o = \mathbf{y} - H(\mathbf{x}^a) \tag{2.15}$$

À partir de l'équation 2.9, on exprime \mathbf{d}_a^o en fonction du vecteur d'innovation :

$$\begin{aligned}
\mathbf{d}_a^o &= \mathbf{y} - H(\mathbf{x}^b + \mathbf{K}\mathbf{d}_b^o) \\
&\simeq \mathbf{y} - \mathbf{H}\mathbf{x}^b - \mathbf{H}\mathbf{K}\mathbf{d}_b^o \\
&\simeq (\mathbf{I} - \mathbf{H}\mathbf{K})\mathbf{d}_b^o \\
&\simeq \mathbf{R}(\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T + \mathbf{R})^{-1}\mathbf{d}_b^o
\end{aligned} \tag{2.16}$$

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

De même dimension que la variance de \mathbf{d}_b^o , on exprime l'espérance du produit croisé entre \mathbf{d}_a^o et \mathbf{d}_b^o :

$$\begin{aligned}
E(\mathbf{d}_a^o \mathbf{d}_b^{oT}) &= \mathbf{R}(\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T + \mathbf{R})^{-1}E(\mathbf{d}_b^o \mathbf{d}_b^{oT}) \\
&= \mathbf{R}(\mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T + \mathbf{R})^{-1}\mathbf{R} + \mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T \\
&= \mathbf{R}
\end{aligned} \tag{2.17}$$

Ce résultat est la deuxième équation des diagnostics relative aux erreurs des observations.

De même, on peut montrer que :

$$E(\mathbf{d}_b^a \mathbf{d}_b^{oT}) = \mathbf{H}\mathbf{B}\mathbf{H}^T \tag{2.18}$$

$$E(\mathbf{d}_b^a \mathbf{d}_a^{oT}) = \mathbf{H}\mathbf{A}\mathbf{H}^T \tag{2.19}$$

Cette méthode permet également de régler la cohérence du système inverse en ajustant les variances des erreurs d'entrée.

Dans le cas idéal, les variances prescrites dans le système (termes de droite des équations 2.14, 2.17, 2.18 et 2.19) et les variances diagnostiquées (termes de gauche des équations 2.14, 2.17, 2.18 et 2.19) sont égales et le système est statistiquement cohérent. En pratique, les deux termes ne sont en général pas égaux mais on peut essayer de tendre vers un système statistiquement cohérent au regard de ces critères en procédant à un réglage des erreurs par itérations.

Les espérances (termes de gauche) sont définies à basse résolution alors que les termes de droite peuvent avoir la dimension du nombre d'observations. De ce fait, cette méthode nécessite de définir des sous-ensembles des observations sur lesquels on calcule les variances. Le choix des sous-ensembles est donc subjectif. On peut choisir par exemple de rassembler les observations sur de larges régions ou bien dans le temps sur un pixel donné. Pour notre étude, les calculs des diagnostics sont effectués à très basse résolution, c'est-à-dire qu'une seule variance est diagnostiquée pour tout le globe. Cette méthode reste assez coûteuse en termes de temps de calculs pour notre problème. Pour évaluer les variances a priori et a posteriori, on utilise la méthode de Monte-Carlo. De ce fait, chaque itération au sens des diagnostics de [Desroziers et al., 2005] nécessite plusieurs milliers d'heures de calculs (1 inversion + 10 inversions avec statistiques perturbées).

2.2 Application à la chimie atmosphérique

L'assimilation variationnelle 4D-Var est couramment utilisée en météorologie pour faire de la prévision. [Fisher and Lary, 1995] ont démontré le potentiel de cette technique dans le domaine de la chimie stratosphérique. Puis, [Elbern et al., 1997] a démontré la faisabilité de calculs 4D-Var pour la chimie troposphérique et [Elbern and Schmidt, 1999] ont développé la première application de 4D-Var couplée à un modèle de chimie-transport.

La méthode 4D-Var consiste à utiliser un modèle pronostic qui relie tous les pas de temps du vecteur d'état du modèle à l'état initial supposé bien connu. Le modèle pronostic est alors décomposé en opérateurs élémentaires d'interpolation ou de conversion afin de le linéariser et d'en calculer son adjoint. Notre méthode est inspirée de la méthode 4D-Var dans le sens où la cohérence temporelle est vérifiée sur toute la période d'inversion, c'est-à-dire que la fenêtre d'assimilation coïncide avec la période d'inversion. Ceci implique que les flux de chaque pas de temps ne sont pas reliés entre eux par un modèle pronostic. De plus, notre vecteur d'état représente 4 pas de temps

par mois alors que la résolution du modèle de chimie-transport est plus fine.

2.3 Modèle de chimie-transport

LMDz-4 est un modèle de circulation générale atmosphérique développé par le Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMD). Il s'appuie sur les équations de la physique et de la dynamique des fluides. Les équations de la dynamique sont discrétisées sur une grille sphérique alors que les équations de la physique sont modélisées par des juxtapositions de colonnes atmosphériques, c'est à dire à une seule dimension avec un pas de temps de 3 minutes. Le réalisme du modèle dépend de la représentation aussi bien du transport à grande échelle (voir figure 2.4) que de la représentation locale de processus turbulents, convectifs et nuageux.

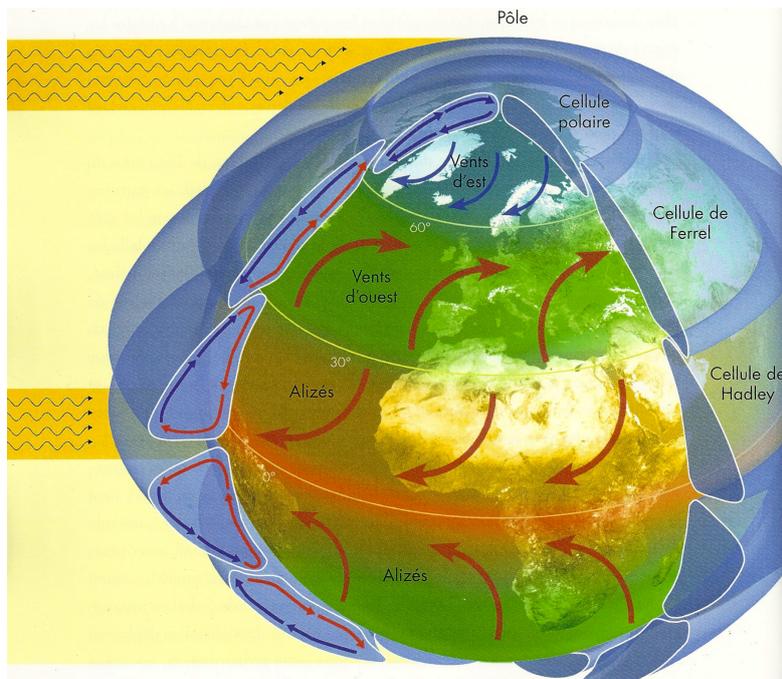


FIGURE 2.4 – Schéma des vents dominants (d'après [Brahic, 2010]).

LMDz-4 (voir figure 2.3) possède une grille régulière dans le plan longitude-latitude avec la possibilité de zoomer sur une région en particulier. On utilise la résolution de $3,75^\circ \times 2,5^\circ$ avec 19 niveaux verticaux (dont 7-9 dans la stratosphère). Le système de coordonnées vertical est hybride, c'est-à-dire qu'il épouse la topographie en surface et correspond à des niveaux de pression

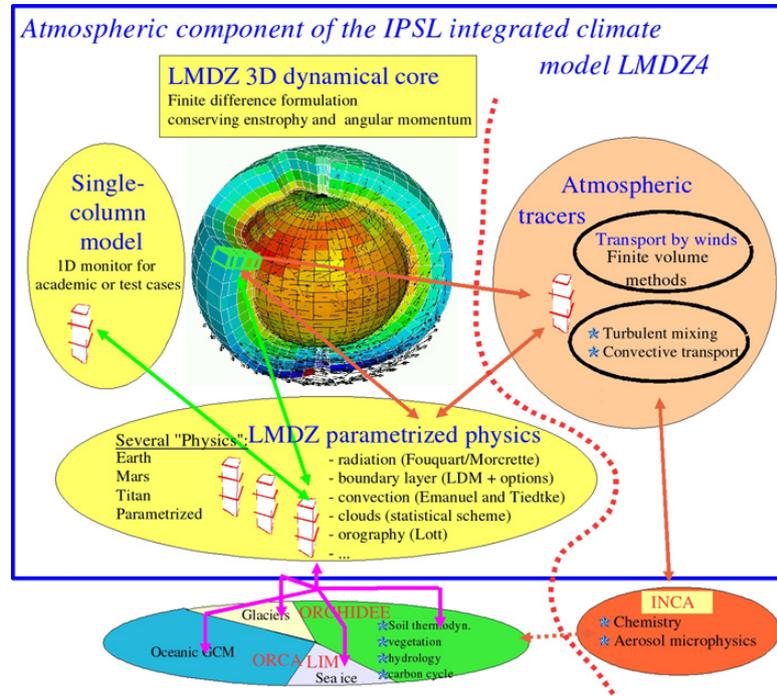


FIGURE 2.5 – Modèle LMDz de transport (Source : site de l'IPSL).

fixes en altitude.

Une nouvelle version du modèle LMDz existe avec une résolution spatiale et verticale plus fine ($3,75^\circ \times 1,875^\circ$ et 39 niveaux verticaux) ainsi qu'avec une nouvelle version de la physique où la convection profonde de la couche limite est modélisée suivant le schéma d'Emanuel ([Emanuel and Raymond, 1993]) au lieu du schéma de Tiedtke ([Tiedtke, 1989]). La comparaison de la nouvelle version de LMDz à l'ancienne a été réalisée par [Locatelli et al., 2014].

LMDz se situe au cœur de la problématique abordée par le GIEC. D'une part, il permet de suivre l'évolution de variables météorologiques pour la reconstruction de climats passés (paléoclimats) et les projections centennales au sein du modèle du système Terre de l'IPSL (Institut Pierre Simon Laplace). D'autre part, il permet l'étude de constituants pour la surveillance de l'environnement.

Son application à la chimie atmosphérique a été mise en œuvre par [Hauglustaine et al., 2004] via le développement du modèle de chimie INCA (Interaction of chemistry and aerosol). Ce dernier englobe quelques centaines

de réactions chimiques et de photolyse parmi une centaine de molécules dont la plupart ne sont pas directement observées. Le transport des espèces peut se faire soit en ligne simultanément à la simulation météorologique, soit en mode "débranché", c'est-à-dire en relisant des archives météorologiques construites au cours d'une première simulation.

Pour le comparer à des mesures de concentrations de ces espèces, on le couple avec un opérateur d'échantillonnage et, dans le cas de mesures satellitaires, des fonctions de lissage (voir section 3.3).

Par souci de cohérence, toutes les inversions présentées aux chapitres 4 et 5 sont réalisées à partir de LMDz-4 en mode débranché. La résolution moins fine de LMDz-4 génère déjà des temps de calculs importants, typiquement l'inversion SURF (présentée au chapitre 5) réalisée sur 12 ans a nécessité 70 itérations pour converger, c'est-à-dire l'équivalent d'un calcul direct sur $12 \times 70 \times (2 + 4) = 5040$ ans car le tangent linéaire et l'adjoint sont respectivement deux fois et quatre fois plus lents que le modèle direct.

Le modèle de chimie SACS (Simplified Assimilation Chemical System) a été développé par [Pison et al., 2009] pour une utilisation en mode débranché. Ce modèle est une version simplifiée du modèle de chimie INCA focalisée sur la chaîne d'oxydation du méthane (voir figure 2.3). Les principales molécules intervenant dans cette chaîne sont le méthane (CH_4), le monoxyde de carbone (CO), le formaldéhyde (CH_2O) et le dihydrogène (H_2).

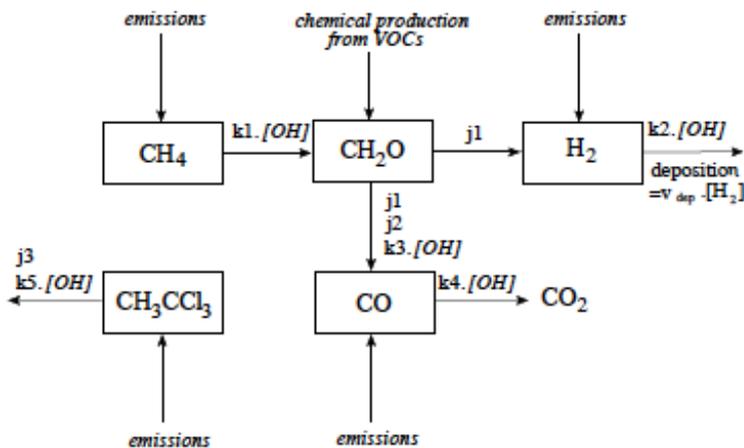


FIGURE 2.6 – Module de chimie simplifié SACS (d'après [Pison et al., 2009]).

SACS présente la particularité de suivre simultanément l'évolution de la concentration du MCF, une molécule ne réagissant qu'avec OH (principal puits du CH₄). De ce fait, la concentration d'OH est optimisée simultanément à celle du CH₄ pour quatre bandes de latitude (90°S/30°S, 30°S/0, 0/30°N et 30°N/90°N), à l'inverse d'autres études qui utilisent des champs précalculés de concentrations d'OH .

SOURCES D'INFORMATION

Sommaire

3.1	Inventaires d'émissions	39
3.1.1	EDGAR	39
3.1.2	GFED	40
3.1.3	Zones humides	42
3.1.4	Termites	42
3.1.5	Océan	43
3.1.6	Absorption du sol	44
3.2	Observations	45
3.2.1	Stations de surface	45
3.2.2	Incertitudes des observations de surface	46
3.3	Satellites	47
3.3.1	SCIAMACHY et TANSO-FTS	50
3.3.2	IASI	51

Dans le chapitre 2, on a montré que notre problème inverse était sous-déterminé notamment parce que les observations sont distribuées de façon hétérogène et parce qu'elles sont incertaines. De ce fait, on utilise une information a priori sur les émissions de CH_4 comme contrainte supplémentaire pour discriminer entre l'infinité de solutions possibles.

Comme présenté sur la figure 3.1, les sources d'information permettant de retrouver les flux de CH_4 sont de natures diverses. Notre système cherche à combiner l'ensemble de ces informations pour améliorer notre connaissance sur les flux de méthane. D'une part, on exploite des inventaires d'émissions fournissant une connaissance a priori des émissions de CH_4 . D'autre part, on exploite des observations de la concentration atmosphérique de CH_4 .

Dans un premier temps, on présente les différents inventaires d'émissions relatifs aux sources de CH_4 . Puis, on présente les deux types d'observations utilisés dans cette étude (surface et satellites).

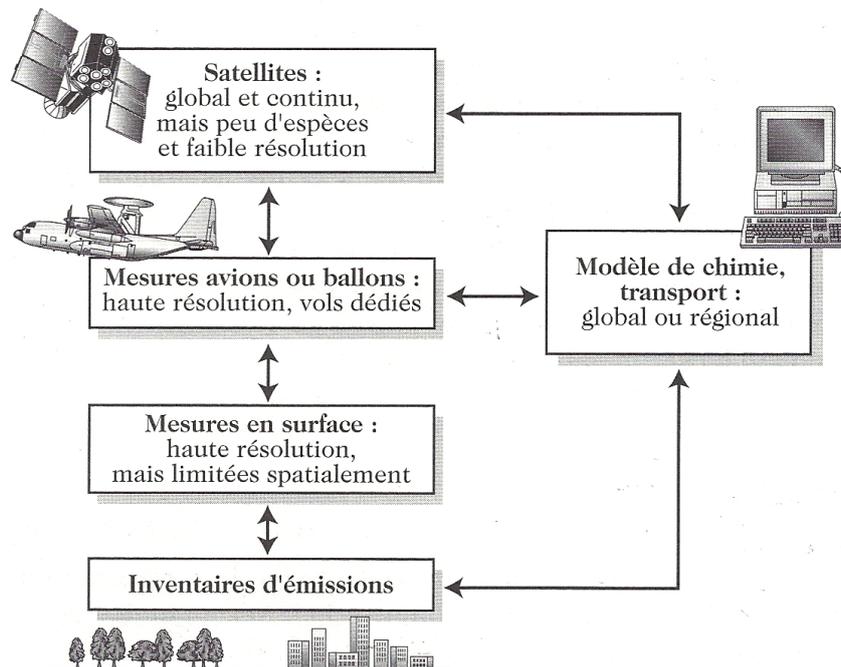


FIGURE 3.1 – Différentes sources d'information généralement disponibles pour la modélisation de la composition atmosphérique (d'après [Delmas et al., 2005]).

3.1 Inventaires d'émissions

Les systèmes d'inversion bayésiens exploitent une connaissance a priori des émissions de méthane pour contraindre le problème inverse. De nombreux inventaires sont disponibles sur le site ECCAD (eccad.sedoo.fr) en particulier pour les émissions anthropiques et les feux de biomasse. Pour certains d'entre eux comme ECLIPSE ou RCP, ils comprennent une projection des émissions pour les prochaines années. Notre a priori est construit en combinant divers inventaires des principales sources de méthane issus de la littérature (voir table 3.1). Au cours de la thèse, différentes versions des inventaires ont été utilisés, notamment en ce qui concerne les émissions anthropiques (EDGAR) et les émissions de feux de biomasse (GFED). Dans ce chapitre, on se limitera à présenter la version la plus récente de ces inventaires, valides pour l'année 2008. On note également que EDGAR et GFED sont les seuls inventaires à être pris en compte avec leur variabilité interannuelle dans notre système d'inversion.

Émissions	Tg/an	Source
Émissions anthropiques	364	<i>EDGARv4.2 [Olivier and Berdowski, 2001]</i>
Feux de biomasse	14	<i>GFED3 [van der Werf et al., 2010]</i>
Termites	20	[Sanderson, 1996]
Océan	17	[Lambert and Schmidt, 1993]
Zones marécageuses	177	[Kaplan, 2002]
Sol	-38	[Ridgwell et al., 1999]
Total	554	

TABLE 3.1 – Inventaires a priori des émissions de méthane pour l'année 2008.

3.1.1 EDGAR

L'inventaire d'émissions EDGAR (*Emission Database for Global Atmospheric Research*) recense les émissions d'origine anthropique pour des gaz à effet de serre tels que le CO₂, le CH₄ et le protoxyde d'azote (N₂O) ainsi que des précurseurs d'ozone tels que le monoxyde de carbone (CO), les oxydes d'azote (NO_x), les composés organiques volatiles d'origine non méthaniques (NMVOC) et le dioxyde de soufre (SO₂) sur une grille de 0.1° × 0.1°. Les émissions d'origine anthropique sont décomposées en plusieurs catégories comme les énergies, les processus industriels, l'agriculture, le changement d'utilisation des terres, les déchets et les sources mineures restantes. La base de données décrit également, pour chaque catégorie, l'ensemble des processus

associés. Les émissions de CH_4 dues à un processus particulier sont obtenues en multipliant le niveau d'activité par le facteur d'émission (voir équation 3.1). Pour finir, les émissions totales sont obtenues en sommant les contributions de tous les processus (voir figure 3.2).

$$Emission_X = \sum_{i=1}^p AL_i \times EF_{iX} \quad (3.1)$$

où p est le nombre total de processus, AL_i le niveau d'activité du processus i pour une année historique et une localisation donnés et EF_{iX} est le facteur d'émissions du composé X pour le processus i . Les données sont rassemblées par des organismes internationaux parmi lesquels on compte l'AIE (Agence Internationale de l'Énergie) pour les données concernant les énergies, l'ONU (Organisation des Nations Unies) pour la production et consommation industrielles et l'ONUAA (Organisation des Nations Unies pour l'Alimentation et l'Agriculture) pour les données concernant l'agriculture.

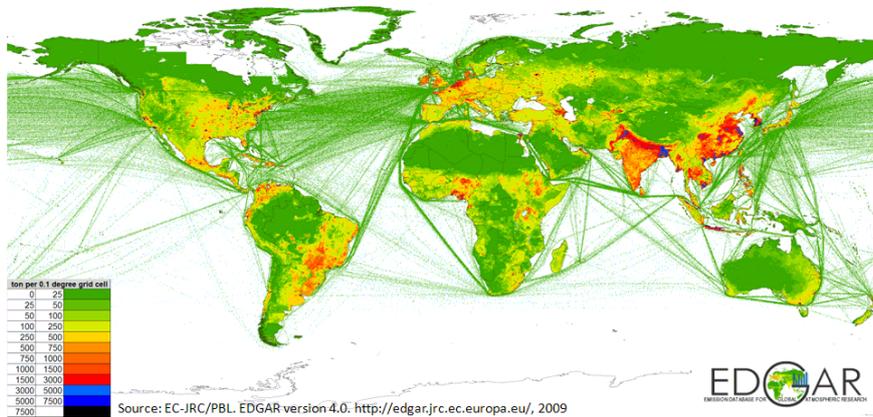


FIGURE 3.2 – Émissions anthropiques de méthane pour l'année 2005 (d'après [Olivier and Berdowski, 2001]).

3.1.2 GFED

La base de données GFED (*Global Fire Emissions Database*) fournit une estimation des émissions de CH_4 provenant des feux. Pour réaliser ces estimations, [van der Werf et al., 2010] exploitent des informations satellitaires de l'activité des feux et de la productivité de la végétation au sein d'un modèle de végétation. Les différents types de feux présentent des signatures

de fréquences ou d'amplitudes différentes (voir figure 3.3). De ce fait, un découpage du globe, réalisé notamment avec les cartes de zones brûlées de [Giglio et al., 2010], et des facteurs d'émissions spécifiques à chaque type de feux (voir table 3.2) sont utilisés afin de relier le carbone consommé aux émissions de méthane.

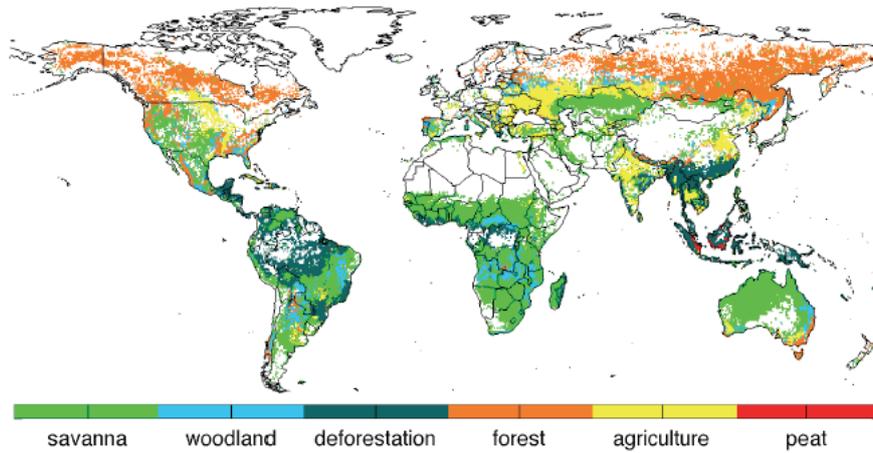


FIGURE 3.3 – Distribution spatiale des principaux types de feux (d'après [van der Werf et al., 2010]).

	Deforestation ¹	Savanna and Grassland ¹	Woodland ²	Extratropical forest ¹	Agricultural waste burning ¹	Peat fires ³
Carbon ⁴	489	476	483	476	440	563
CO ₂	1626	1646	1636	1572	1452	1703
CO	101	61	81	106	94	210
CH ₄	6.6	2.2	4.4	4.8	8.8	20.8
NMHC	7.00	3.41	5.21	5.69	11.19	7.00
H ₂	3.50	0.98	2.24	1.78	2.70	3.50
NO _x	2.26	2.12	2.19	3.41	2.29	2.26
N ₂ O	0.20	0.21	0.21	0.26	0.10	0.20
PM _{2.5}	9.05	4.94	7.00	12.84	8.25	9.05
TPM	11.8	8.5	10.2	17.6	12.4	11.8
TC	6.00	3.71	4.86	8.28	6.19	6.00
OC	4.30	3.21	3.76	9.14	3.71	4.30
BC	0.57	0.46	0.52	0.56	0.48	0.57
SO ₂	0.71	0.37	0.54	1.00	0.40	0.71

TABLE 3.2 – Facteurs d'émissions pour les principaux types de feux (d'après [van der Werf et al., 2010]).

3.1.3 Zones humides

Notre a priori des émissions provenant des zones humides est basé sur l'étude de [Kaplan, 2002]. Celle-ci identifie les émissions de méthane à partir d'un modèle de végétation, BIOME4 [Kaplan, 2001] et d'une cartographie des zones susceptibles d'émettre du méthane. La définition des zones humides repose sur la combinaison d'une topographie suffisamment lisse et d'un sol suffisamment humide. Le bilan annuel pour l'année 2002 s'élève à 140 Tg/an. Dans notre étude, la distribution spatiale (voir figure 3.4) de [Kaplan, 2002] est conservée mais un facteur d'échelle est appliqué selon [Bergamaschi, P.C.] pour adapter cet inventaire à l'année 2008, année de référence pour tous nos inventaires a priori. De ce fait, le bilan annuel s'élève à 177 Tg/an (table 3.1).

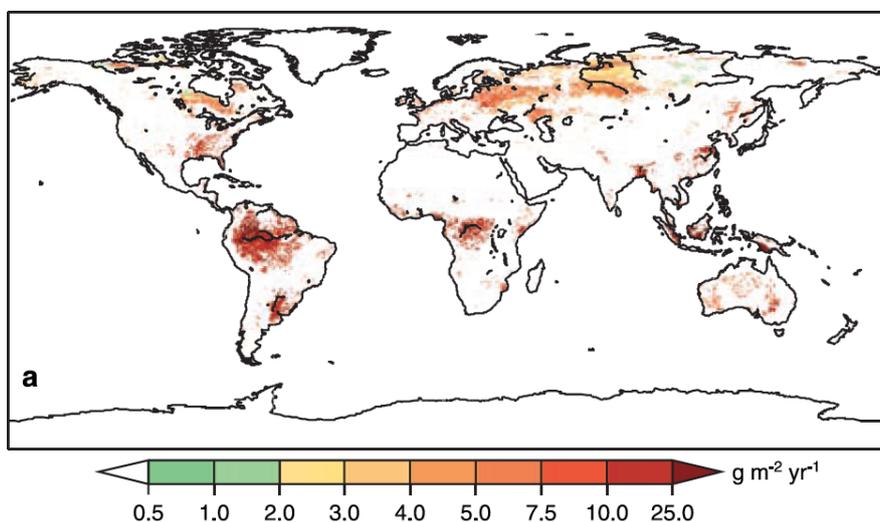


FIGURE 3.4 – Émissions des zones humides pour l'année 2002 (d'après [Kaplan, 2002]).

3.1.4 Termites

L'inventaire d'émissions des termites est réalisé à partir d'un modèle de végétation [Olson et al., 1989] qui découpe le globe en seize habitats de termites (voir table 3.3) localisés principalement dans les Tropiques et dans les latitudes tempérées. L'étude de [Sanderson, 1996] regroupe un grand nombre d'études réalisées sur les familles de termites. Premièrement, les termites sont divisées en trois grandes classes suivant leur mode d'alimentation (bois, sol ou champignons) car leur nourriture influence directement leur flux de méthane

émis. Puis, pour chaque habitat, à partir de la proportion des différentes classes de termites, [Sanderson, 1996] évaluent le flux moyen de CH₄ toutes classes confondues. Enfin, en multipliant le flux moyen, la densité des termites et l'aire de chaque habitat, ils déduisent un flux annuel de CH₄.

Ecological Region ^a	Area, 10 ¹² m ²	Biomass, g m ⁻²	Emission, μg CH ₄ g termite ⁻¹ h ⁻¹	Annual Flux, Mt CH ₄ yr ⁻¹
Tropical rain forest (OW)	1.67	11.0	6.16	0.99 ± 0.23
Tropical rain forest (NW)	2.68	11.0	5.64	1.46 ± 0.40
Rain-green forest (OW)	3.98	8.0	6.16 ^b	1.72 ± 0.41
Rain-green forest (NW)	0.63	8.0	5.64 ^b	0.25 ± 0.07
Tropical montane/seasonal (OW)	3.79	11.26	6.16 ^b	2.30 ± 0.55
Tropical montane/seasonal (NW)	3.50	11.26	5.64 ^b	1.95 ± 0.53
Temperate forest	1.07	3.0	1.77	0.05 ± 0.06
Savannah/grassland (OW, arid)	4.03	0.96	7.60	0.26 ± 0.04
Savannah/grassland (NW, arid)	2.10	0.96	2.90	0.05
Savannah/grassland (OW, nonarid)	6.36	10.6	7.00	4.13 ± 0.60
Savannah/grassland (NW, nonarid)	5.19	10.6	3.20	1.54
Temperate grassland/prairie	5.20	5.2	1.77 ^c	0.42 ± 0.54
Succulent woods (OW, arid)	1.48	0.98	7.60 ^d	0.10 ± 0.02
Succulent woods (NW, arid)	0.18	0.98	2.90 ^d	0.01
Succulent woods (OW, nonarid)	1.17	8.43	7.00 ^d	0.60 ± 0.09
Succulent woods (NW, nonarid)	1.07	8.43	3.20 ^d	0.58 ± 0.00
Farmland/settlement (OW)	4.71	5.38	3.90 ^e	0.87 ± 0.05
Farmland/settlement (NW)	2.91	5.38	3.00 ^e	0.41
Patchy woods+crop/grass (OW)	2.91	2.25	3.90 ^e	0.22 ± 0.07
Patchy woods+crop/grass (NW)	2.75	2.25	3.00 ^e	0.16 ± 0.04
Mediterranean tree/scrub	0.90	5.3	4.13	0.17 ± 0.11
Dry/highland scrub, semidesert	13.17	2.7	4.13	1.29 ± 0.86
Eucalyptus or Acacia	0.90	5.3	4.13 ^f	0.17 ± 0.11
Annual methane production				19.7 ± 1.5

TABLE 3.3 – Biomasse des termites, taux d'émissions de méthane et production annuelle de méthane par les termites (d'après [Sanderson, 1996]).

$$Emission_X = C \sum_{i=1}^n A_i B_i F_i \quad (3.2)$$

où A_i est l'aire d'une région donnée (en m²), B_i la biomasse des termites pour cette région (en g termites/m²), F_i le flux de gaz X (en g/g termites/heure) et C représente le nombre d'heures dans une année (8760).

3.1.5 Océan

Les couches superficielles des océans sont sursaturées en méthane par rapport à la concentration atmosphérique, d'un rapport moyen de 1,3. La vitesse moyenne d'échange de méthane entre l'océan et l'atmosphère est mal connue. Pour l'estimer, on se base sur une estimation de la vitesse moyenne d'échange de dioxyde de carbone entre l'océan et l'atmosphère

estimée à 13 cm/h [Etcheto et al., 1991] et sur les nombres de Schmidt du CO₂ et du CH₄ [Kanakidou, 1988]. Cette approche nous donne une estimation du flux moyen d'échange de méthane entre l'océan et l'atmosphère. En multipliant ce flux moyen par l'aire totale des océans, on obtient une estimation des émissions mondiales de méthane dues aux océans de 10,7 Tg/an [Lambert and Schmidt, 1993]. De plus, cette estimation dépend de divers paramètres comme la vitesse du vent, la température de l'eau ou encore le niveau de la mer.

3.1.6 Absorption du sol

Le flux de méthane absorbé par les sols est calculé à partir de la diffusivité du gaz et de l'activité oxydante des bactéries méthanotrophes à une profondeur fixée à 6 cm. Le globe est divisé en quatorze régions susceptibles d'absorber du méthane par les sols. Ces régions comptent principalement des zones de végétation mais aussi quelques zones humides qui ne sont pas continuellement irriguées et de ce fait capables de se comporter comme un puits de méthane lors de saisons plus sèches. Pour chaque région identifiée, le flux de méthane et l'aire de la région sont déterminés (voir table 3.4). On en déduit un flux annuel ici estimé à -38 Tg/an [Ridgwell et al., 1999].

Aggregated Holdridge Life Zone		Flux Rate, mg m ⁻² yr ⁻¹ CH ₄			Annual Sink, Tg yr ⁻¹ CH ₄		
Class	Description	Reference	No Agriculture	Area, 10 ⁶ km ²	Reference	No Agriculture	Cultivation-Related Reduction in Uptake, %
1	Tundra	100.2	100.3	10.5	1.05	1.05	0.0
2	Cold Parklands	207.0	210.3	2.8	0.59	0.59	0.0
3	Forest Tundra	161.0	161.8	8.9	1.44	1.45	0.7
4	Boreal Forest	187.3	196.4	15.2	2.85	2.99	4.7
5	Cool Desert	265.0	274.2	4.0	1.07	1.11	3.6
6	Steppe	255.9	316.9	7.4	1.91	2.36	19.1
7	Temperate Forest	240.6	297.3	10.0	2.41	2.98	19.1
8	Hot Desert	179.2	183.4	20.9	3.74	3.83	2.3
9	Chapparal	343.9	429.9	5.6	1.94	2.42	19.8
10	Warm Temperate Forest	331.6	385.5	3.2	1.07	1.24	13.7
11	Tropical Semiarid	420.3	462.9	9.5	4.01	4.42	9.3
12	Tropical Dry Forest	452.5	504.3	14.9	6.73	7.50	10.3
13	Tropical Seasonal Forest	411.9	439.7	15.1	6.22	6.64	6.3
14	Tropical Rain Forest	333.8	345.5	8.5	2.83	2.92	3.1
TOTAL				136.7	37.84	41.50	

TABLE 3.4 – Puits de méthane par les sols (d'après [Ridgwell et al., 1999]).

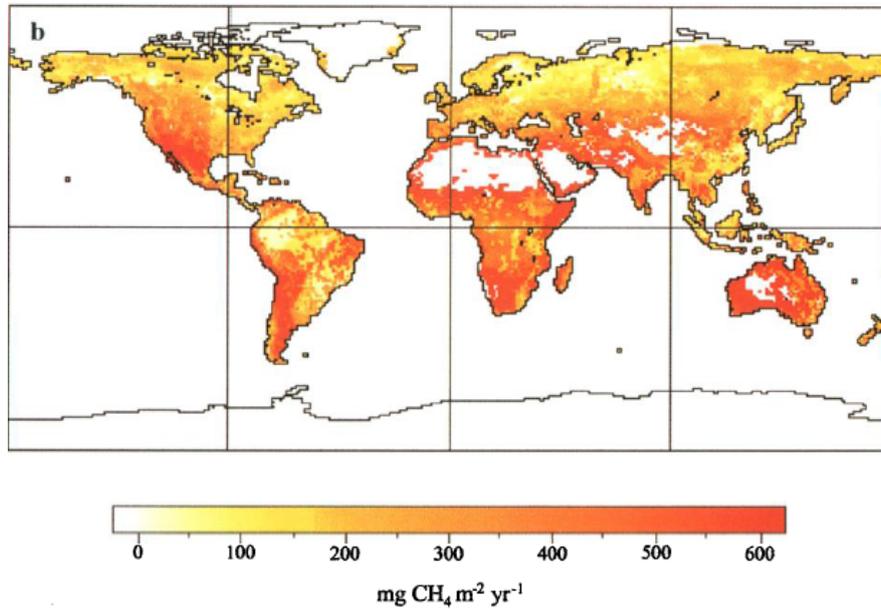


FIGURE 3.5 – Carte du puits de méthane par les sols ([Ridgwell et al., 1999]).

3.2 Observations de concentrations atmosphériques

3.2.1 Stations de surface

Les concentrations atmosphériques de CH_4 et de MCF sont directement observées respectivement depuis 1983 et 1990 par la station de Mauna Loa (voir chapitre 1). Depuis, les réseaux de surface se sont développés mais restent aujourd'hui relativement épars notamment à cause de contraintes géopolitiques et logistiques. La figure 3.6 représente les stations de surface de 31 instituts observant la concentration atmosphérique de CH_4 et sept observant la concentration atmosphérique de MCF. Elle met en évidence un manque de données notamment en Afrique du Nord et en Amérique du Sud, qui sera compensé par le modèle de chimie-transport et l'information a priori dans les inversions. Ces données sont collectées par l'Organisation Météorologique Mondiale (OMM) et distribuées via le Centre Mondial des Données relatives aux Gaz à effet de Serre (CMDGS).

Les stations de surface sont composées d'un cylindre plus ou moins volumineux suivant le réseau d'observations (par exemple 2,5 l pour le réseau de la NOAA) et d'un piston permettant de pomper l'air ambiant qui est ensuite

pressurisé. On collecte des flacons par paires une ou deux fois par semaine qui sont ensuite envoyés aux centres de collecte et d'analyse (par exemple à Boulder, pour la NOAA). On estime les fractions molaires de CH_4 ou de MCF à partir de méthodes de chromatographie de gaz puis de détection par ionisation de flamme.

Pour chaque inversion réalisée (présentée aux chapitres 4 et 5), les stations de surface utilisées ont été sélectionnées suivant des critères bien définis. En effet, la série temporelle de chaque site doit mesurer sur toute la période d'inversion de façon quasi-continue et homogène car les systèmes d'assimilation variationnelle sont perturbés par des observations qui apparaissent et disparaissent dans la fenêtre d'inversion [Masarie and Tans, 1995].

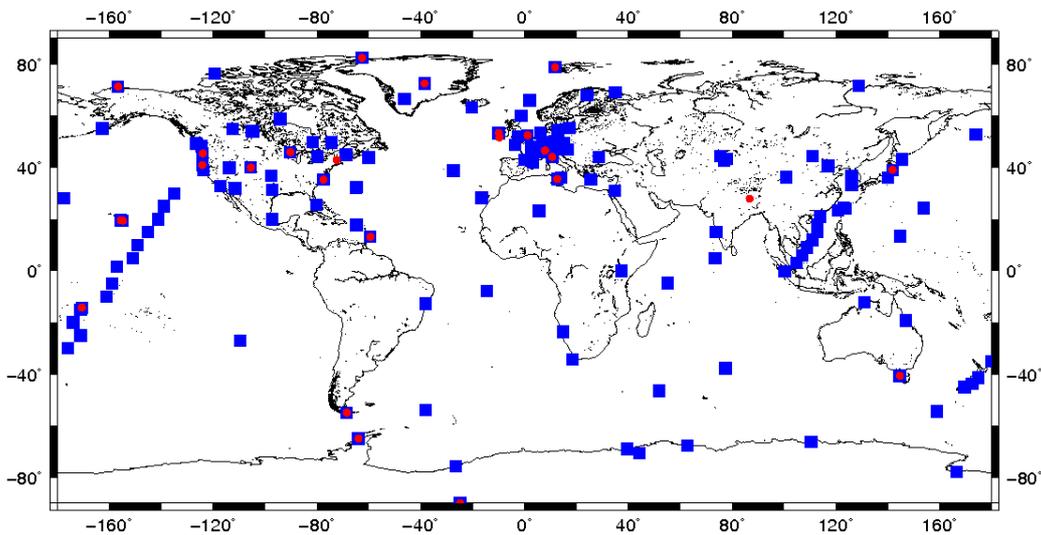


FIGURE 3.6 – Stations de surface mesurant la concentration atmosphérique de CH_4 (en bleu) et de MCF (en rouge). (Cette carte a été réalisée grâce aux données distribuées via le CCMDGS.

3.2.2 Incertitudes des observations de surface

Les erreurs de mesure des stations de surface sont très petites ($\simeq 0,2\%$ de la mesure). Cependant, pour être traitées dans des systèmes d'inversion, on prend en compte l'erreur du modèle de transport, qui domine largement les erreurs instrumentales pour ce type d'instrument. Nous supposons ici que l'incertitude du modèle de chimie-transport aux stations de surface est

dominée par sa difficulté à représenter la variabilité synoptique. Nous modélisons donc cette erreur à partir de la variabilité synoptique des mesures, que nous extrayons par la méthode de [Masarie and Tans, 1995] initialement développée afin d'établir une base de données cohérente des mesures de surface de la NOAA.

En pratique, cette méthode consiste à approximer les observations $c_{STA}(t)$ (représentatives d'un mélange à grande échelle) d'une station (STA) par une fonction $f_{STA}(t)$ (voir équation 3.3). La fonction d'approximation décrit le cycle saisonnier (représenté alors par une somme de sinus et de cosinus) et la tendance à long terme (représentée ici par un polynôme d'ordre 2).

$$f_{STA}(t) = a_0 + a_1t + a_2t^2 + \sum_{k=1,4} [b_{2k-1}\sin(2\pi kt) + b_{2k}\cos(2\pi kt)] \quad (3.3)$$

$$S_{STA}(t) = f_{STA}(t) + [c_{STA}(t) - f_{STA}(t)]_{40j} \quad (3.4)$$

À l'aide d'un filtre passe-bas ayant une fréquence maximale de 40 jours, on met en évidence la variabilité interannuelle du cycle saisonnier. Pour ce faire, on calcule les différences entre les observations et la fonction d'approximation, aussi appelées les résidus, auxquels on applique ensuite le filtre passe-bas décrit précédemment. On définit alors la courbe lissée (*smoothed curve*, voir équation 3.4) comme la somme des résidus à haute fréquence obtenus et de la fonction d'approximation.

$$Res(t) = c_{STA}(t) - S_{STA}(t) \quad (3.5)$$

Des statistiques sont calculées sur les résidus entre les observations et la courbe lissée $Res(t)$ (voir équation 3.5). L'écart-type de ces résidus σ_{Res} est alors utilisé pour représenter les incertitudes des observations de surface.

3.3 Satellites

Apparus depuis quelques dizaines d'années, les satellites permettent d'accéder aux différentes couches de l'atmosphère. Ils peuvent être disposés essentiellement sur deux types d'orbite suivant l'enjeu scientifique abordé.

Les satellites géostationnaires, positionnés à 36000 km d'altitude dans le plan équatorial de la Terre, orbitent de façon synchrone avec la Terre de telle sorte qu'ils sont toujours situés au-dessus du même point de l'équateur. Ils permettent ainsi de se focaliser sur une région de la Terre en particulier, ce

qui est très utile en météorologie.

Plus adaptés à notre problème, les satellites défilants, positionnés souvent entre 600 et 800 km d'altitude, présentent la particularité de pouvoir observer tout ou une partie de la Terre suivant l'inclinaison du satellite. Si le satellite est capable de remonter jusqu'à proximité des pôles, on parle de satellite en orbite polaire. De plus, si le satellite est en phase avec le soleil, on parle d'orbite héliosynchrone. Dans ce cas, le satellite passe au-dessus de l'équateur toujours à la même heure locale par type d'orbite (montante, descendante). C'est le cas par exemple du satellite japonais GOSAT (Greenhouse gases Observing SATellite) dont l'orbite est représentée sur la figure 3.7.

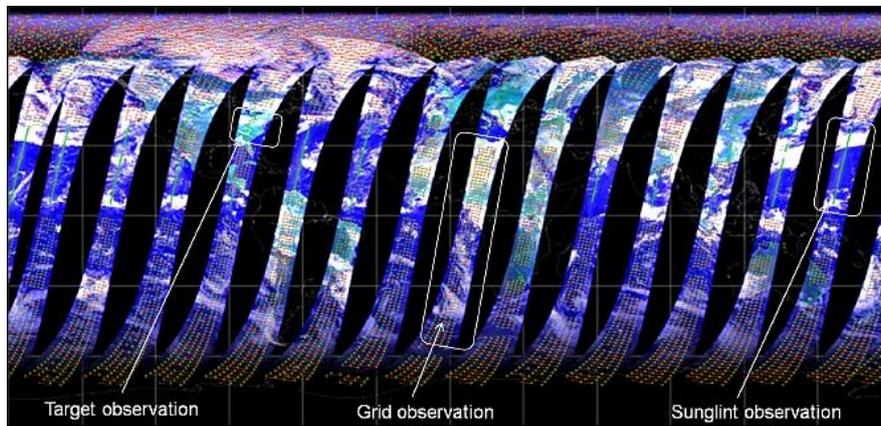


FIGURE 3.7 – Illustration de l'orbite du satellite GOSAT (source : JAXA).

Il existe deux sortes de visées pour les instruments embarqués à bord de plateformes satellitaires. La première est une visée au nadir qui pointe vers la surface de la Terre. La seconde est une visée au limbe qui pointe vers l'espace et pour laquelle le cheminement du rayonnement se retrouve piégé dans les couches de l'atmosphère.

La télédétection consiste à mesurer à distance une variable quelconque en récoltant le rayonnement d'une source considérée comme ponctuelle (soleil, laser...) ou étendue (atmosphère, surface). Le rayonnement récolté après avoir traversé les différentes couches de l'atmosphère contient une information sur les paramètres physiques du milieu sondé (ici les concentrations atmosphériques de CH_4).

Afin de restituer des colonnes totales ou partielles de CH_4 à partir des

mesures satellitaires, on utilise des modèles basés sur les équations du transfert radiatif et des bases de données contenant les informations spectroscopiques des différentes molécules impliquées, comme la Gestion et Étude des Informations Spectroscopiques Atmosphériques (GEISA) décrite par [Jacquinet-Husson et al., 2008].

En pratique, les colonnes totales ou partielles contiennent une concentration atmosphérique de CH_4 moyennée. L'information relative à la sensibilité sur la verticale est contenue dans des fonctions de poids ou fonctions de lissage (*weighting functions* ou *averaging kernels*). Ces fonctions sont représentées pour des instruments satellitaires mesurant dans différents domaines de longueur d'ondes sur la figure 3.8. C'est ainsi que les instruments mesurant dans le domaine visible sont sensibles à toute la colonne atmosphérique alors que les instruments mesurant dans le domaine thermique possèdent une sensibilité maximale à la moyenne et haute troposphère et ne sont pas sensibles aux couches d'air à proximité de la surface. Cela implique que la résolution spatiale des flux estimés par l'inversion est d'autant plus fine que la fonction de poids pointe vers le bas de l'atmosphère.

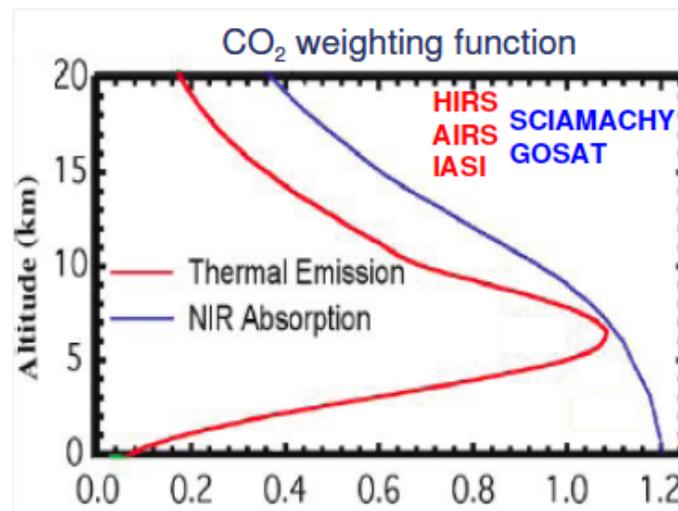


FIGURE 3.8 – Exemples pour le CO_2 de fonctions de poids ou fonctions de lissage traduisant la sensibilité à la verticale des observations des instruments satellitaires mesurant dans le domaine thermique ou visible des colonnes partielles ou totales (d'après [Chédin et al., 2003]).

Les inversions présentées aux chapitres 4 et 5 utilisent les mesures de concentrations atmosphériques de CH_4 de trois instruments satellitaires,

dont deux spectromètres embarqués (SCIAMACHY et TANSO-FTS) et un interféromètre embarqué (IASI).

3.3.1 SCIAMACHY et TANSO-FTS

3.3.1.1 Instruments

L'instrument SCIAMACHY (SCanning Imaging Absorption spectroMeter for Atmospheric CHartographY) se trouve à bord du satellite européen ENVISAT (ENVIronmental SATellite). Il a été lancé en mars 2002 et a acquis des mesures jusqu'à ce que la connexion avec le satellite soit définitivement perdue en avril 2012. ENVISAT était un satellite défilant qui orbitait à 800 km d'altitude et qui parcourait toute la Terre en 6 jours. Sa résolution au sol (sous le satellite) était de 30 km par 60 km lorsque l'instrument mesurait au nadir. L'instrument mesurait dans le domaine visible proche infrarouge (NIR, c'est-à-dire Near InfraRed), plus précisément entre 1631 et 1670 nm (voir figure 3.9).

L'instrument TANSO-FTS (Thermal And Near-infrared Sensor for carbon Observation- Fourier Transform Spectrometer), à bord du satellite japonais GOSAT (Greenhouse gases Observing SATellite) a été lancé en janvier 2009. GOSAT est un satellite défilant en orbite à 667 km d'altitude et parcourt toute la Terre en 3 jours. Sa résolution au sol est de 10,5 km lorsque l'instrument observe au nadir. L'instrument mesure dans le domaine infrarouge de faible longueur d'onde (*Short Wave InfraRed*, SWIR), soit proche du visible 1600 nm (voir figure 3.10).

3.3.1.2 Méthodes

Deux méthodes permettent d'accéder aux concentrations de CH_4 de SCIAMACHY et de TANSO-FTS : la méthode du substitut (*proxy*) et la méthode physique (*full physics*).

La méthode du substitut a été développée par [Frankenberg et al., 2005] initialement pour SCIAMACHY. Elle repose sur l'hypothèse que les bandes d'absorption du CH_4 et du CO_2 sont suffisamment proches pour que les propriétés de diffusion des aérosols et les propriétés de l'albédo varient peu. Ainsi, elle exprime le rapport de mélange du CH_4 (VMR_{CH_4}) en fonction du rapport des fractions molaires des colonnes de CH_4 et de CO_2 (V_{CH_4} et V_{CO_2}) mesurées par l'instrument satellitaire et du rapport de mélange du CO_2 (VMR_{CO_2}) provenant de simulations de modèles.

$$VMR_{CH_4} = \frac{V_{CH_4}}{V_{CO_2}} \times VMR_{CO_2} \quad (3.6)$$

La méthode physique a été développée plus récemment [Butz et al., 2010, Schepers et al., 2012] et combine les informations de l'instrument satellitaire sur le CH₄, le CO₂ et les paramètres des aérosols afin d'en déduire une colonne totale de la concentration atmosphérique de CH₄. Cette méthode présente l'avantage d'exploiter exclusivement des mesures satellitaires et de ne pas utiliser de champ de CO₂ issu de modèles pour contraindre le CH₄ comme c'est le cas pour la méthode du substitut.

[Schepers et al., 2012] ont montré que les deux méthodes sont de qualité comparable avec toutefois un biais mondial plus important pour la méthode physique. De plus, du fait d'un filtre nuageux plus restrictif pour la méthode physique, [Monteil et al., 2013] ont mis en évidence que la méthode physique fournit presque trois fois moins de données.

Par souci de cohérence entre SCIAMACHY et TANSO-FTS, on choisit d'utiliser la méthode du substitut pour ces deux instruments. Les champs de CO₂ que nous utilisons comme substitut proviennent d'une inversion utilisant les mesures de surface et notre modèle PYVAR-LMDz [Chevallier et al., 2010].

Les incertitudes associées aux colonnes totales de CH₄ (appelées erreurs instrumentales) de SCIAMACHY sont de l'ordre de 2% de la mesure [Frankenberg et al., 2005] et de 0,6% de la mesure pour TANSO-FTS [Parker et al., 2011].

3.3.2 IASI

L'Interféromètre Atmosphérique de Sondage Infrarouge (IASI) à bord du satellite Météorologique Opérationnel (MetOP-A) a été lancé en 2006. MetOp-A orbite à 817 km d'altitude et parcourt toute la Terre chaque jour. Sa résolution au sol est de 12 km lorsqu'il mesure au nadir. Cet instrument a été développé par le Centre National des Études Spatiales (CNES) et est le premier modèle d'une famille de trois satellites météorologiques. Il se trouve en orbite polaire et mesure dans le domaine thermique (7700 nm).

Des observations simultanées du CH₄ par IASI (voir figure 3.11) et de la température par AMSU (Advanced Micro-wave Sounder Unit) sont utilisées afin de retrouver les colonnes de CH₄ de la moyenne à la haute troposphère sous des conditions d'absence totale de couverture nuageuse

[Crevoisier et al., 2009]. IASI dispose de nombreux canaux de mesure (8461 canaux). Neuf d'entre eux ont été choisis pour leurs fortes sensibilités au CH_4 et à la température combinées à une faible sensibilité à la vapeur d'eau (voir fenêtre sur la figure 3.12). Du fait de la faible variabilité de la température dans les moyennes et hautes latitudes, les colonnes partielles de CH_4 sont calculées pour les Tropiques uniquement ($-30^\circ/30^\circ$). En effet, en dehors des Tropiques, le rapport signal à bruit est trop faible.

Les colonnes partielles de IASI, fournies par le LMD, sont obtenues avec une incertitude de 1,1% à partir d'un modèle basé sur des réseaux de neurones. Une telle approche se base sur l'apprentissage à partir de 4425 réalisations de situations atmosphériques provenant de la base données de TIGR (Thermodynamic Initial Guess Guess Retrieval) associée à une information du transfert radiatif.

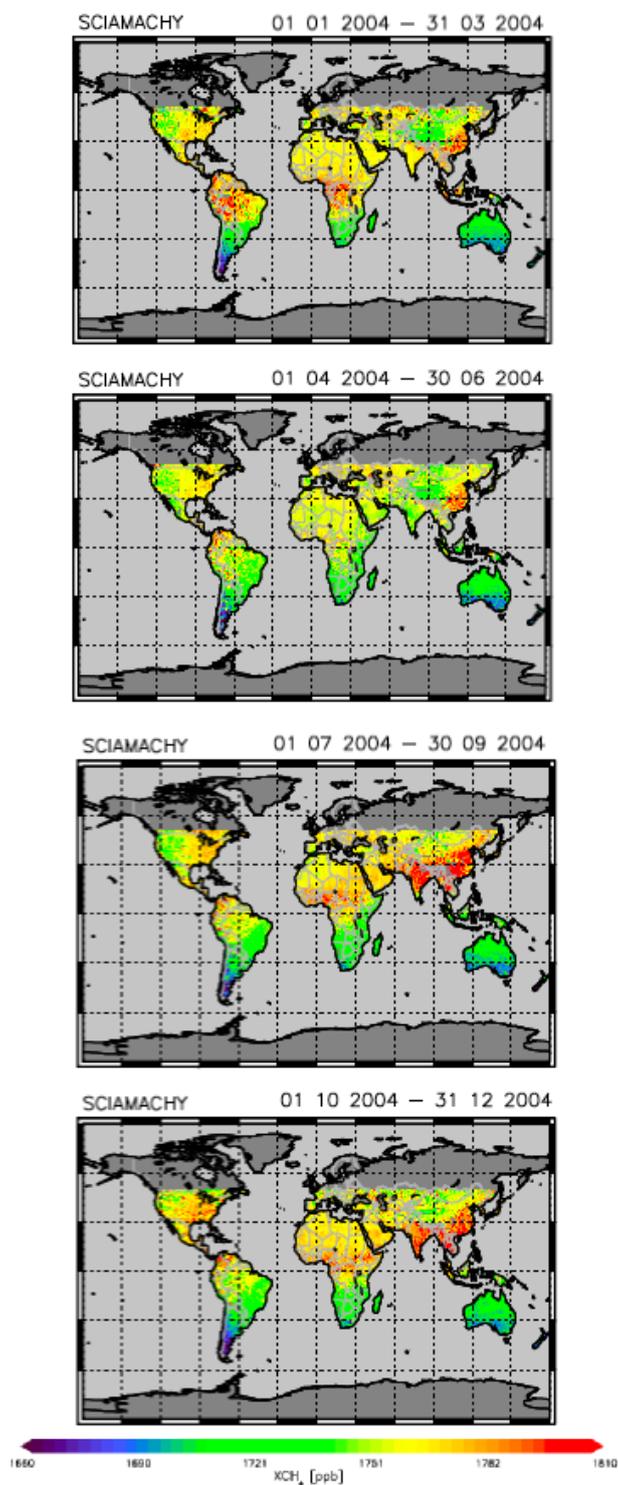


FIGURE 3.9 – Observations de colonnes totales de CH_4 par l'instrument SCIAMACHY (d'après [Frankenberg et al., 2005]).

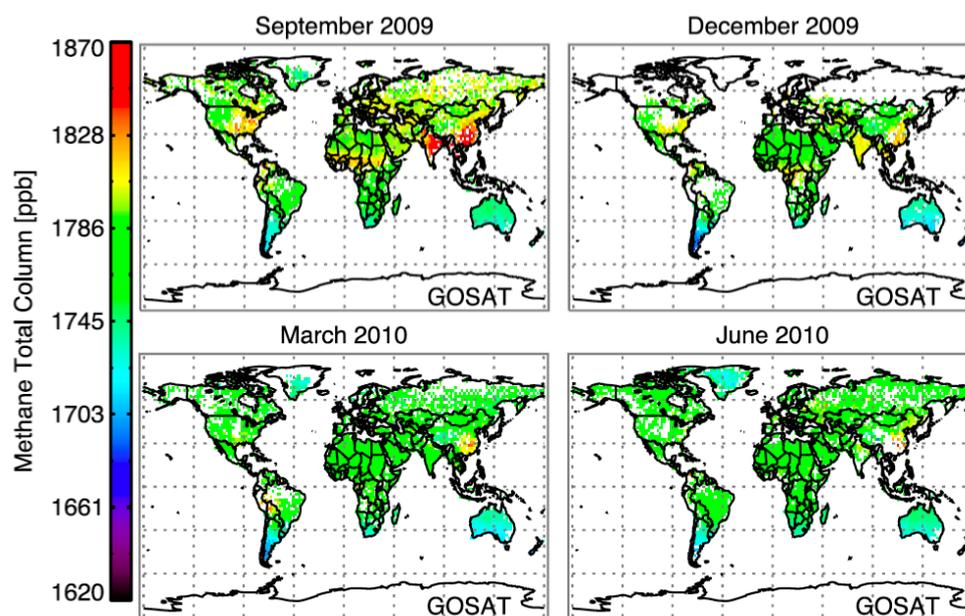


FIGURE 3.10 – Observations des colonnes totales de CH_4 par l'instrument TANSO-FTS (d'après [Parker et al., 2011]).

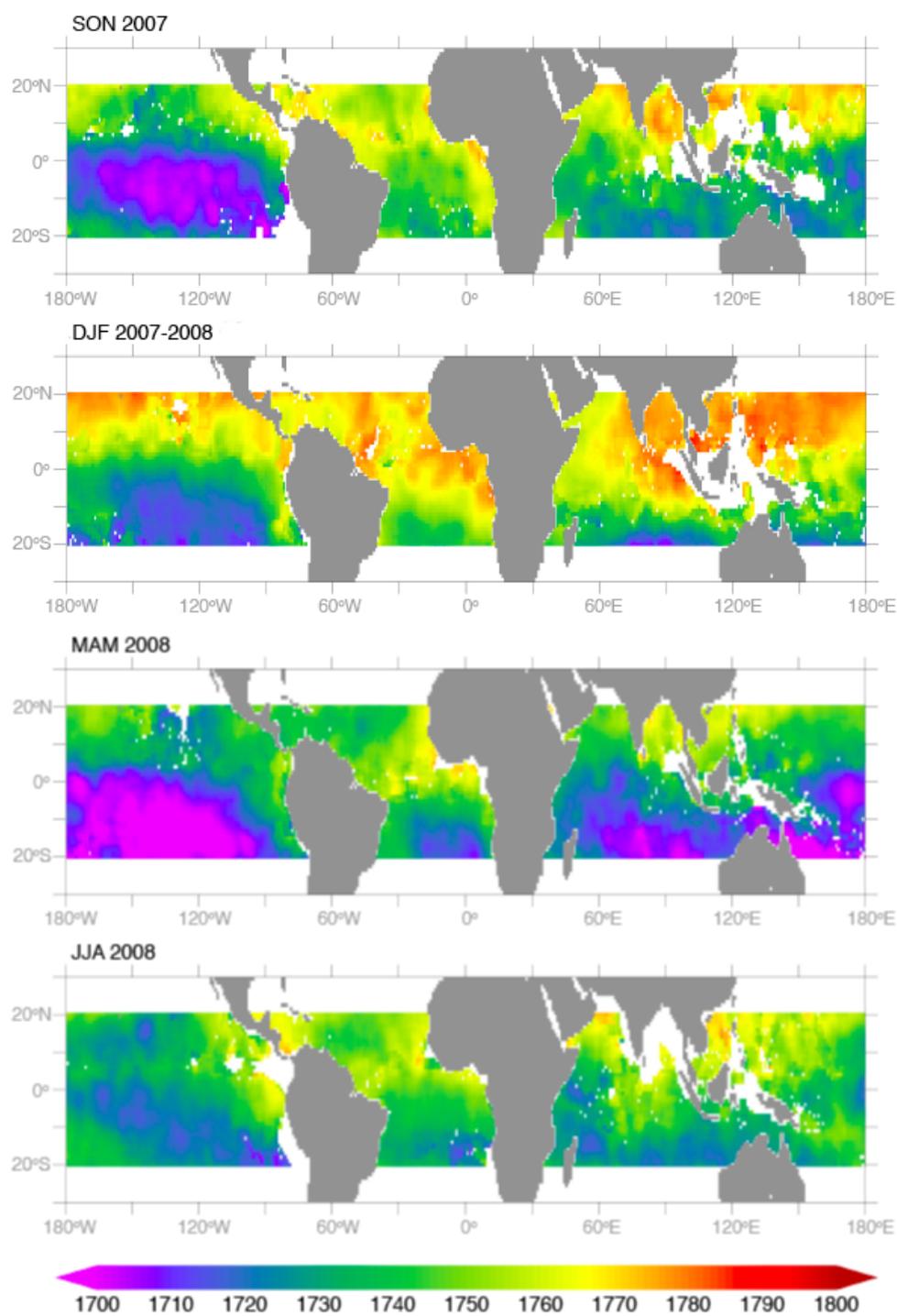


FIGURE 3.11 – Observations de colonnes partielles (moyenne à haute troposphère) de CH_4 par l'instrument IASI (d'après [Crevoisier et al., 2009]).

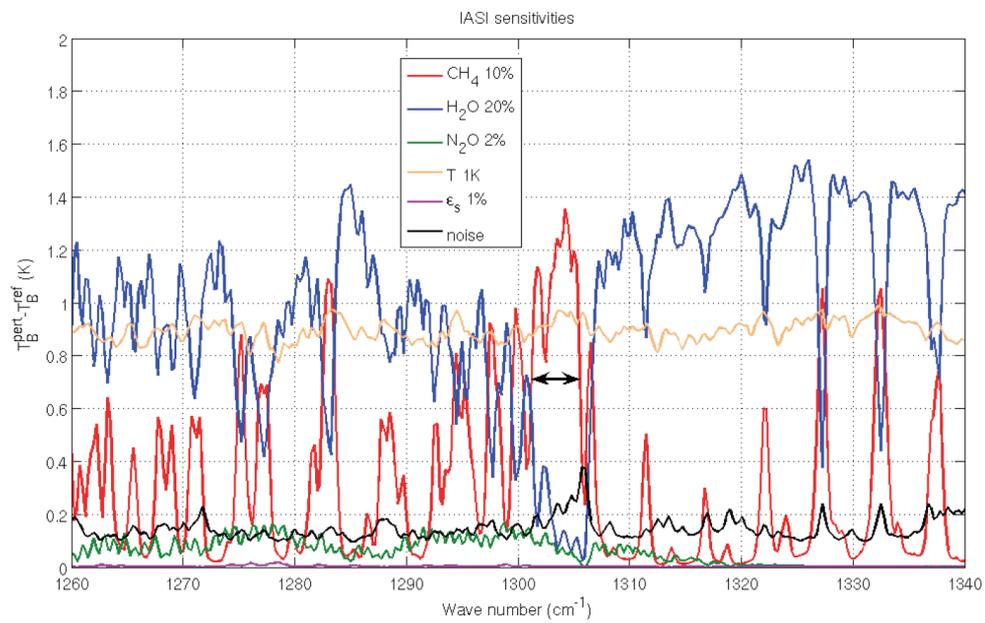


FIGURE 3.12 – Spectre représentant la sensibilité de différents paramètres dont le CH_4 , H_2O et la température (T) en fonction de la longueur d'onde pour l'instrument IASI (d'après [Crevoisier et al., 2009]).

APPLICATION 1

COMPARAISON D'INSTRUMENTS SATELLITAIRES POUR L'ESTIMATION DES FLUX ANNUELS DE CH₄

Sommaire

4.1	Introduction	58
4.2	Inversions d'origine	58
4.3	Tests de sensibilité	61
4.3.1	Sensibilité aux erreurs de l'a priori	61
4.3.2	Sensibilité aux erreurs des observations	63
4.3.3	Sensibilité aux conditions initiales	64
4.3.4	Mise à jour des inversions	65
4.3.5	Sensibilité au filtrage des observations	66
4.4	Article ACP	67
4.4.1	Présentation	67
4.4.2	<i>Abstract</i>	71
4.4.3	<i>Introduction</i>	71
4.4.4	<i>Method</i>	73
4.4.5	<i>Prior information and observations</i>	76
4.4.6	<i>Results</i>	82
4.4.7	<i>Discussion</i>	96
4.4.8	<i>Conclusions</i>	98
4.4.9	Cas particulier : les erreurs de l'analyse	99
4.5	Conclusions	100

4.1 Introduction

Si les stations de surface disposent d'une grande précision de mesure, les instruments satellitaires fournissent une plus grande densité d'information. Toutefois, leurs observations possèdent une distribution spatiale variant au cours des saisons suivant la présence ou non de nuages les rendant ainsi plus difficiles à étudier. Comme chaque instrument satellitaire possède des résolutions horizontale et verticale qui lui sont propres, ils sont également plus difficiles à comparer les uns aux autres.

Dans cette partie, on cherche à comparer les trois instruments satellitaires décrits dans le chapitre 3 (TANSO-FTS, IASI et SCIAMACHY) en s'intéressant aux émissions et pertes de méthane générées par l'assimilation de leurs observations dans le système inverse LMDz-SACS présenté au chapitre 2.

On cherche ici à évaluer ces instruments satellitaires en comparant les émissions et pertes de méthane a posteriori à celles d'une inversion de référence. Par ailleurs, on évalue également les concentrations de CH_4 a posteriori aux mesures indépendantes de surface. Dans un premier temps, on présente les flux analysés de méthane des inversions d'origine utilisant les jeux de données des trois instruments satellitaires et les paramètres d'entrées présentés par [Pison et al., 2009]. Les flux a posteriori de méthane sont plus ou moins influencés par divers paramètres prescrits en entrée comme les flux a priori (\mathbf{x}^b), les observations (\mathbf{y}^o), les matrices d'erreurs \mathbf{B} et \mathbf{R} ou les conditions initiales. On présente ici la sensibilité des flux de CH_4 aux variations des ces paramètres d'entrées. Les tests de sensibilité se sont échelonnés sur une période de deux ans. De ce fait, plusieurs versions des jeux de données et des inventaires a priori ont été utilisées rendant la présentation des résultats très hétérogène. On rappelle que chaque résultat de flux analysés présenté ici nécessite plusieurs milliers d'heures de calculs (de l'équivalent de 4 jours pour TANSO-FTS à 3 semaines de calculs pour IASI) et que la caractérisation des erreurs a posteriori (σ^a) associées à l'inversion multiplie ce chiffre par 10.

4.2 Inversions d'origine

Les premières inversions utilisant les jeux de données des trois instruments satellitaires (TANSO-FTS, SCIAMACHY, IASI) ont été réalisées sur leur période de recouvrement, initialement de juin 2009 à juillet 2010. Dans cette partie, j'exploite le produit de TANSO-FTS du NIES (appelé GOSAT Officiel) et celui de l'université de Leicester (appelé GOSAT Leicester). Comme définies

au chapitre 3, les erreurs instrumentales fournies avec les jeux de données (σ_i^o) sont complétées par l'erreur du modèle de chimie-transport (σ_m^o) fixée initialement à 10% de la mesure ([Pison et al., 2009]).

De plus, ces inversions utilisent l'inventaire d'émissions a priori présenté par [Pison et al., 2009], appelé PRIOR_{init} dans ce qui suit. La construction de PRIOR_{init} est réalisée sur le principe décrit au chapitre 2, c'est-à-dire à partir de différents inventaires dont certains sont fournis sans variations interannuelles tandis que d'autres sont régulièrement réactualisés. C'est le cas notamment des inventaires concernant les émissions anthropiques (EDGAR) et les émissions de feux de biomasse (GFED). De ce fait, PRIOR_{init} utilisant EDGARv3.2 et GFEDv2 ainsi généré est valable pour l'année 1995 (voir table 4.1). Il n'est pas rare que les émissions a priori de certaines sources particulièrement incertaines comme les rizières ou les zones humides soient réajustées en multipliant leurs bilans mondiaux annuels par un facteur d'amplitude afin de prendre en compte leur tendance ([Frankenberg et al., 2006, Bergamaschi et al., 2007]). Ici, aucun facteur d'amplitude n'est appliqué aux différentes sources de PRIOR_{init} afin de l'adapter aux années récentes de notre période d'étude (2009 et 2010). Par ailleurs, la matrice \mathbf{B} est définie de la façon décrite dans la section 2.1.3. Ainsi, le bilan mondial a priori de méthane s'élève initialement à 484 ± 16 Tg/an.

Émissions	Tg/an	Source
Émissions anthropiques	296	<i>EDGARv3.2 [Olivier and Berdowski, 2001]</i>
Feux de biomasse	12	<i>GFED2 [van der Werf et al., 2010]</i>
Termites	20	[Sanderson, 1996]
Océan	17	[Lambert and Schmidt, 1993]
Zones marécageuses	177	[Kaplan, 2002]
Sol	-38	[Ridgwell et al., 1999]
Total	484	

TABLE 4.1 – Inventaires a priori des émissions de méthane pour l'année 1995 (PRIOR_{init}).

La table 4.2 présente les bilans mondiaux annuels de méthane a posteriori et leurs incertitudes évaluées à l'aide de la méthode de Monte-Carlo (voir chapitre 2). Les incertitudes présentées ici et dans toute le mémoire représentent 1 écart-type (σ) de la distribution d'erreurs a posteriori, soit 68% de la distribution gaussienne.

Les incréments de méthane générés par les inversions utilisant les quatre

jeux de données sont tous positifs et suggèrent une sous-estimation des flux de méthane a priori. Les bilans annuels de méthane a posteriori ne sont pas tous cohérents entre eux au sens statistique si on prend les incertitudes à 1σ mais ils le deviennent à 2σ (soit 95% de la distribution).

	Émissions (Tg/an)	Incertitudes (Tg/an)
Prior EDGARv3.2+GFED2	484	± 16
Inversion GOSAT Officiel	498	± 13
Inversion IASI	510	± 8
Inversion GOSAT Leicester	520	± 10
Inversion SCIAMACHY	526	± 14

TABLE 4.2 – Bilans a posteriori des émissions et des incertitudes mondiales et annuelles de CH₄ des inversions d'origine.

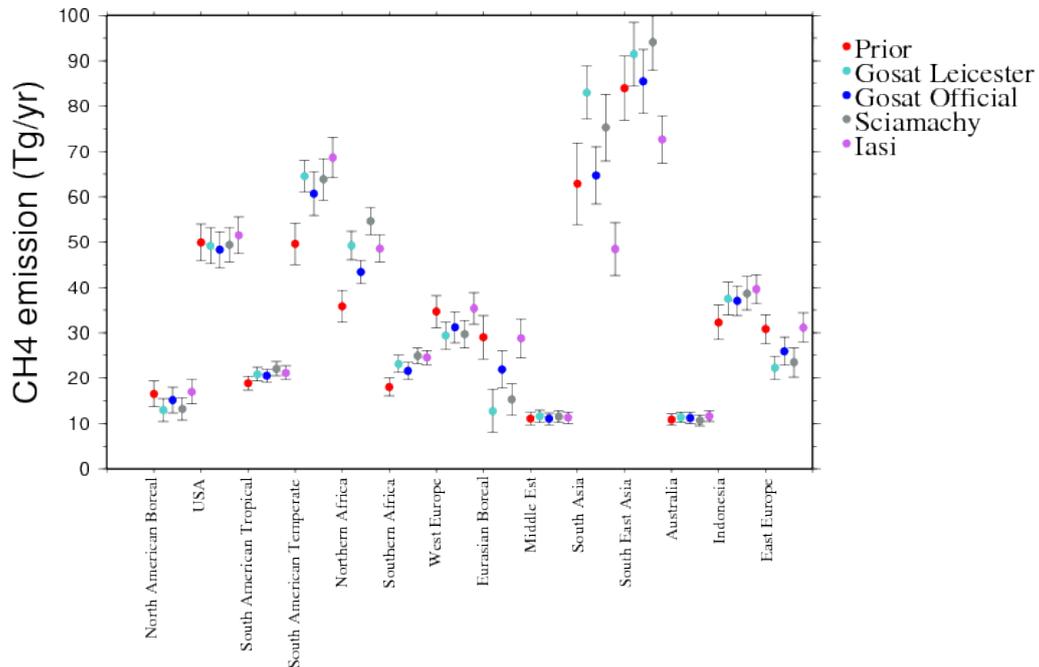


FIGURE 4.1 – Émissions régionales de méthane pour les inversions d'origine. Les barres d'incertitudes représentent les erreurs a posteriori évaluées par la méthode de Monte-Carlo.

En principe, le caractère bayésien du système d'inversion garantit la cohé-

rence entre les résultats d'inversions à condition que les erreurs soient bien représentées. Toutefois, dans notre cas, on constate de fortes incohérences dans les bilans mondiaux et régionaux de méthane (y compris à 2σ) notamment pour l'Asie du Sud, l'Asie de l'Est, l'Eurasie boréale, l'Amérique du Sud tempérée et l'Afrique du Nord (voir figure 4.1). Ce résultat suggère que les erreurs associées aux émissions a priori sont probablement sous-estimées. Dans ce cas, le système reste trop proche de l'a priori pour bien prendre en compte les observations.

Par ailleurs, les incréments de flux obtenus avec tous les systèmes d'observation sont systématiquement positifs, ce qui suggère que les émissions a priori sont également sous-estimées. Comme l'inventaire d'émissions a priori a été réalisé pour l'année 1995 et qu'il n'a subi aucun réajustement, il n'est pas surprenant qu'il ne soit pas adapté pour des années récentes (voir figure 1.3 représentant la tendance du méthane).

Dans ce qui suit, on présente plusieurs séries de tests de sensibilité dans le but d'améliorer la cohérence entre les quatre produits satellitaires.

4.3 Tests de sensibilité

Dans un premier temps, on teste la sensibilité des incréments de méthane générés par l'inversion à plusieurs paramètres d'entrées tels que le bilan d'erreurs a priori, les conditions initiales, les erreurs des observations ainsi que plusieurs filtres appliqués aux observations.

4.3.1 Sensibilité aux erreurs de l'a priori

Les premiers tests de sensibilité se focalisent sur les émissions et le bilan d'erreurs a priori. Pour ces tests, on a mis à jour l'inventaire d'émissions a priori avec EDGARv4.1 et GFEDv3 tous deux valables pour l'année 2005. Comme cet inventaire que l'on appelle $PRIOR_{inter}$ (voir table 4.3) est très peu différent de $PRIOR_{init}$ (6 Tg/an d'écart), on suppose que les variations des émissions de méthane observées sont entièrement attribuées à la modification du bilan d'erreur a priori.

Afin d'augmenter le bilan d'erreurs a priori, on a ajouté des corrélations temporelles au système, dont le rayon d'influence suit une décroissance exponentielle. On a testé plusieurs configurations et on présente ici les résultats

obtenus avec les configurations de 2 et 3 semaines de corrélation temporelle. Ces configurations se rapprochent d'un bilan d'erreur a priori cohérent avec la littérature, par exemple ± 45 Tg/an selon [Houweling et al., 1999].

Émissions	Tg/an	Source
Émissions anthropiques	300	<i>EDGARv4.1 [Olivier and Berdowski, 2001]</i>
Feux de biomasse	14	<i>GFED3 [van der Werf et al., 2010]</i>
Termites	20	[Sanderson, 1996]
Océan	17	[Lambert and Schmidt, 1993]
Zones marécageuses	177	[Kaplan, 2002]
Sol	-38	[Ridgwell et al., 1999]
Total	490	

TABLE 4.3 – Inventaires a priori des émissions de méthane pour l'année 2005 (PRIOR_{inter}).

	Émissions (Tg/an)	Incertitudes (Tg/an)	Corrél. temporelle (semaines)
Prior EDGARv4.1+GFED3	490	± 36	3
Inversion GOSAT Officiel	539	-	3
Inversion IASI	532	-	3
Inversion GOSAT Leicester	561	-	3
Inversion SCIAMACHY	564	-	3
PRIOR EDGARv4.1+GFED3	490	± 30	2
Inversion GOSAT Leicester	553	-	2
Inversion SCIAMACHY	515	-	2

TABLE 4.4 – Influence d'une corrélation temporelle (de 2 ou 3 semaines) sur les émissions mondiales de méthane.

Les incréments de méthane générés avec 2 semaines de corrélations temporelles sont de même signe mais de plus faible amplitude que ceux générés avec 3 semaines (voir table 4.4). En effet, plus on augmente la longueur de corrélation temporelle, plus on donne de liberté au système pour s'éloigner de l'a priori et ainsi générer des incréments de méthane plus importants.

Ces tests ont également mis en évidence qu'en faisant plus confiance aux observations, le système avait aussi plus de difficultés à les expliquer. De ce fait, la présentation des résultats n'est pas homogène ici. Par ailleurs, ceci met également en évidence que quelques observations isolées ou des biais

systématiques dans les observations peuvent perturber le système d'inversion et empêcher sa convergence.

On a ainsi mis en évidence que les quatre jeux de données sont sensibles à une augmentation des erreurs a priori qui est d'ailleurs équivalente à augmenter le poids des observations. De ce fait, les incréments de méthane plus importants que pour les inversions d'origine semblent être générés par les observations elles-mêmes.

Les variations des émissions de méthane a posteriori observées en réponse à une augmentation du bilan d'erreur a priori suggèrent que le système d'inversion est très sensible à la prescription des erreurs en entrée.

4.3.2 Sensibilité aux erreurs des observations

Les hautes latitudes posent deux problèmes majeurs pour ce genre d'étude. D'une part, les observations satellitaires de concentrations atmosphériques de méthane sont particulièrement sujettes aux biais car la couche atmosphérique traversée par le rayonnement ultra-violet des spectromètres embarqués TANSO-FTS et SCIAMACHY est plus épaisse. D'autre part, comme la tropopause est plus basse dans ces régions, la part stratosphérique est plus importante dans les colonnes totales de méthane et on sait que celle-ci est mal représentée dans la version de LMDz-SACS à 19 niveaux que j'utilise. Pour les tests suivants sur les erreurs associées aux observations, on a supprimé les hautes latitudes (c'est-à-dire au-delà de 65°).

	Émissions (Tg/an)	Incertitudes (Tg/an)
Prior EDGARv4.1+GFED3	490	± 30
Inversion GOSAT Officiel	525	-
Inversion SCIAMACHY	572	-

TABLE 4.5 – Ajout d'une erreur de modèle valant 10% de la mesure (soit $\simeq 180$ ppb).

La comparaison des tables 4.5 et 4.6 met en évidence que les incréments positifs dans les bilans mondiaux de CH_4 semblent également provenir des observations.

Avec l'augmentation du bilan d'erreurs a priori puis la diminution des erreurs des observations, le système est relativement instable. En effet, des

	Émissions (Tg/an)	Incertitudes (Tg/an)
Prior EDGARv4.1+GFED3	490	± 30
Inversion GOSAT Officiel	547	-
Inversion SCIAMACHY	583	-

TABLE 4.6 – Ajout d’une erreur de modèle valant 1% de la mesure (soit environ $\simeq 18$ ppb).

problèmes de convergence ont été identifiés pour deux produits satellitaires (GOSAT Leicester et IASI) provenant soit des effets de bords dus à l’utilisation d’une période d’inversion trop courte, soit à la sélection des observations elle-même.

4.3.3 Sensibilité aux conditions initiales

On étudie à présent la sensibilité des émissions de méthane a posteriori aux conditions initiales. Habituellement, on ajuste celles-ci aux mesures de surface sur les premiers pas de temps de la fenêtre d’assimilation. Cependant, il est possible qu’il y ait un biais initial important entre les premiers pas de temps de la surface et des instruments satellitaires. Cela ne pose en général pas de problème étant donné que les conditions initiales sont optimisées durant l’inversion. Toutefois, comme c’est le cas ici, étant limité par la période de recouvrement des instruments satellitaires, on ne dispose que d’une période de deux mois précédant notre période d’étude, ce qui est insuffisant pour permettre la stabilisation et s’affranchir de l’effet des conditions initiales. On considère que les conditions initiales n’ont plus d’effet sur les émissions a posteriori après une période de stabilisation de 6 mois (*spin-up*). Pour tenter de réduire ou d’éliminer cette stabilisation, on a alors ajusté manuellement les conditions initiales afin de les caler sur les premiers pas de temps des observations de méthane de chaque instrument satellitaire.

Les conditions initiales semblent jouer un rôle relativement marginal pour GOSAT et SCIAMACHY (± 4 Tg/an) alors que pour IASI l’impact est beaucoup plus important (64 Tg/an) (voir table 4.7). Ce résultat est probablement lié à la densité importante d’observations de IASI. Lorsque les conditions initiales sont préalablement ajustées, le système fournit moins d’effort pour les optimiser au cours de l’inversion. De ce fait, la convergence a probablement atteint un stade plus avancé pour cette inversion. Ainsi, l’ajustement manuel des conditions initiales semble non seulement améliorer la convergence

	Émissions (Tg/an)	Incertitudes (Tg/an)
Prior EDGARv4.1+GFED3	555	± 50
Inversion IASI	465	-
Inversion GOSAT Leicester	566	-
Inversion SCIAMACHY	577	-
Inversion IASI	529	-
Inversion GOSAT Leicester	570	-
Inversion SCIAMACHY	573	-

TABLE 4.7 – Ajustement des conditions initiales de l’a priori à partir des mesures de surface (pour les trois inversions du haut) et à partir des observations respectives de chaque instrument (pour les trois inversions du bas)

de l’inversion mais aussi améliorer de façon significative les incréments de méthane a posteriori pour IASI.

Cette série de tests nous a permis de mettre en évidence que les enjeux majeurs lors de la comparaison de plusieurs jeux de données satellitaires concernent les statistiques des erreurs, le filtrage des observations ainsi que les conditions initiales.

4.3.4 Mise à jour des inversions

En tenant compte des conclusions apportées par la première série de tests, on réalise une deuxième série avec de nouveaux jeux de données alors disponibles sur une période étendue (juin 2009-décembre 2010) permettant de s’affranchir des effets de bords. De plus, le filtre appliqué aux observations des deux spectromètres embarqués (TANSO-FTS et SCIAMACHY) est celui décrit par [Bergamaschi et al., 2007] consistant à supprimer les océans et les hautes latitudes (voir chapitre 3). Pour ces tests de sensibilité, on fixe l’erreur du modèle à 1%, ce qui revient à accorder plus de poids aux observations.

Avec des produits satellitaires actualisés, on constate qu’en augmentant la confiance accordée aux observations, le système génère des incréments de méthane bien trop élevés pour GOSAT Officiel et SCIAMACHY et trop faibles pour IASI (voir table 4.8). Seul le jeu de données GOSAT Leicester donne des incréments de méthane réalistes, c’est-à-dire cohérents avec les émissions des autres études sur la période 2000-2009 estimées entre 526 et

	Émissions (Tg/an)	Incertitudes (Tg/an)
Prior EDGARv4.1+GFED3	555	± 50
GOSAT Official	1116	-
IASI	387	-
GOSAT Leicester	563	-
SCIAMACHY	618	-

TABLE 4.8 – Présentation de bilans annuels sur une période étendue. Ces résultats servent de base pour l'évaluation des tests de sensibilités de la section 4.3.5. On ajoute également une erreur de modèle aux erreurs instrumentales valant 1% de la mesure.

569 Tg/an (voir tableau 1.1).

Toutefois, les incréments obtenus avec GOSAT Officiel, IASI et SCIAMACHY ne semblent pas réalistes pour ces inversions. Ceci peut être dû à des observations dont les valeurs sont à la périphérie de la pdf des observations, c'est-à-dire au-delà des 2σ et pour lesquelles les erreurs modélisées sont trop faibles. Afin d'améliorer la qualité des jeux de données, on teste un dernier filtre basé sur la distribution des erreurs.

4.3.5 Sensibilité au filtrage des observations

On réalise un filtre basé sur la distribution des erreurs en supprimant les observations pour lesquelles l'écart entre l'a priori et les observations dépasse 2σ de la pdf, ce qui revient à conserver 95% de la distribution gaussienne.

	Émissions (Tg/an)	Incertitudes (Tg/an)
Prior EDGARv4.1+GFED3	555	± 50
Inversion IASI	520	-
Inversion SCIAMACHY	604	-

TABLE 4.9 – Filtrage des observations au-delà de 2σ de la pdf.

Grâce à cette deuxième série de test, on a éliminé les effets de bords en étendant la période d'étude. Cependant, les incréments de SCIAMACHY demeurent trop élevés par rapport aux autres instruments satellitaires (voir table 4.9). Ceux-ci peuvent être induits par un biais dans le produit satellitaire construit avec la méthode du substitut (voir section 3.3.1.2).

Le jeu de données de SCIAMACHY fourni par le SRON (Netherlands Organisation for Scientific Research) utilise le CO₂ de CarbonTracker2007 (<http://www.esrl.noaa.gov/gmd/ccgg/carbontracker/>) sans réajustement pour les années 2008 à 2011 (correspondance R. Scheepmaker). Dans ce qui suit, on a reconstruit les colonnes totales de CH₄ avec la méthode du substitut et en utilisant des flux de CO₂ optimisés à l'aide de notre propre système d'inversion ([Chevallier et al., 2010]) pour les bonnes années.

De plus, on a mis en évidence que les erreurs prescrites en entrée du système et le filtrage des observations jouent un rôle important sur les incréments de méthane.

4.4 *On the consistency between global and regional methane emissions inferred from SCIAMACHY, TANSO-FTS, IASI and surface measurements*

Cette section est constituée de l'article publié d'abord dans ACPD le 25 mars 2013, puis dans ACP le 20 janvier 2014.

4.4.1 **Présentation**

Après ces tests de sensibilité préliminaires, on cherche à comparer les nouveaux produits satellitaires de GOSAT, SCIAMACHY et IASI alors disponibles sur une période étendue. On commence par présenter un jeu d'inversions de base utilisant les configurations rencontrées par défaut dans la littérature. Ensuite, on teste une correction de biais sur les produits satellitaires GOSAT et SCIAMACHY. Puis, on évalue la cohérence statistique du système d'inversion à l'aide d'une méthode objective. On présente les résultats de l'article reproduit en section 4.4.2. Après avoir stabilisé la convergence du système, on s'intéresse plus en détails à la cohérence statistique des inversions.

4.4.1.1 **Inversions de base**

Comme point de départ, on utilise des configurations par défaut rencontrées le plus souvent dans la littérature. De ce fait, le bilan d'erreur a priori est cohérent avec [Houweling et al., 1999]. Les erreurs affectées aux observations

sont complétées par une erreur modèle initiale de 8% également conservative et cohérente avec [Pison et al., 2009] ou [Spahni et al., 2011]. Comme les stations de surface disposent d'une grande précision de mesure, on utilise l'inversion assimilant les observations de surface comme référence pour évaluer les émissions et pertes de méthane a posteriori et les observations de surface pour évaluer les concentrations analysées.

On trouve des émissions et pertes de méthanes a posteriori cohérentes entre les quatre systèmes d'observations (voir les inversions utilisant les données du réseau de surface, de TANSO-FTS, de SCIAMACHY et de IASI, respectivement SU_1^1 , TA_1^1 , SC_1^1 et IA_1^1 dans la table 4.12). De plus, les biais et moyennes quadratiques (appelées rms dans ce qui suit) finaux ont été améliorés par l'inversion pour les instruments GOSAT et IASI, impliquant que les concentrations optimisées de méthane se rapprochent des observations indépendantes de surface. Seul SCIAMACHY présente des biais et rms finaux plus grands que les biais et rms initiaux.

On utilise la méthode objective de [Desroziers et al., 2005] afin de diagnostiquer les statistiques des erreurs des inversions de départ (voir chapitre 2.1.4). Les diagnostics suggèrent une surestimation des erreurs de l'a priori pour la surface et SCIAMACHY et une sous-estimation pour TANSO-FTS et IASI. Ils traduisent également une surestimation des erreurs des observations ($ratio_o$ dans la table 4.13) pour les trois instruments satellitaires. Ces erreurs sont surestimées d'un facteur 13 pour TANSO-FTS (TA_1^1), d'un facteur 5 pour SCIAMACHY (SC_1^1) et d'un facteur 4 pour IASI (IA_1^1). Ces résultats sont utilisés afin de régler les erreurs des observations et de l'a priori.

Même si on observe une bonne cohérence à 1σ des bilans mondiaux annuels de CH_4 entre les quatre systèmes d'observations pour les inversions de base (voir figure 4.4b), les bilans de CH_4 a posteriori obtenus avec les deux spectromètres embarqués (GOSAT et SCIAMACHY) semblent surestimés par rapport aux deux autres systèmes d'observations. Dans ce qui suit, on teste une correction de biais des produits satellitaires à partir de l'inversion de référence (utilisant les observations de surface), puis on réalise deux séries de tests afin de régler les erreurs à partir des diagnostics de [Desroziers et al., 2005] appliqués aux inversions de base.

4.4.1.2 Correction de biais des produits TANSO-FTS et SCIAMACHY

Il est possible que les jeux de données GOSAT et SCIAMACHY contiennent encore des biais dans leurs produits. [Bergamaschi et al., 2009] ont identifié dans le jeu de données SCIAMACHY un biais dépendant de la latitude. Dans cette partie, on teste une correction de biais dépendant de la masse de l'air et basée sur l'inversion de référence pour débiaiser les deux produits satellitaires. La masse de l'air est un paramètre qui dépend de la latitude et qui présente l'avantage de prendre en compte des paramètres physiques liés aux méthodes de télédétection comme l'angle de visée du satellite et l'angle zénithal solaire (voir équation 4.3).

Une telle correction semble avoir un impact marginal sur les émissions de méthane (voir figure 4.4b) obtenues avec GOSAT (+3Tg/an). Toutefois, l'impact sur les émissions de méthane générées par SCIAMACHY est beaucoup plus important mais les incréments sont de signe opposé à GOSAT. En effet, au lieu de diminuer les émissions a posteriori de méthane afin d'améliorer la cohérence avec les stations de surface, les émissions augmentent encore plus.

On peut conclure que l'instrument GOSAT n'a pas besoin de correction de biais car le produit utilisé est déjà de bonne qualité. En revanche, la correction de biais appliquée à SCIAMACHY améliore un peu l'accord avec les stations de surface mais les incréments générés par l'instrument ne sont pas plus en accord avec les émissions a posteriori des trois autres systèmes d'observations. SCIAMACHY semble ici plus difficile à exploiter que les autres instruments.

4.4.1.3 Réglage des statistiques d'erreurs

Conformément aux diagnostics réalisés sur les inversions de base, on a mis en évidence une surestimation des erreurs a priori ainsi qu'une surestimation des erreurs des observations. Dans cette partie, on applique les formules de [Desroziers et al., 2005] (voir chapitre 2) afin de régler ces erreurs. Deux séries de tests sont réalisées afin de régler les erreurs et d'évaluer l'impact de ces réglages sur la qualité des flux de méthane inversés à l'aide du réseau de surface pris comme référence.

Réglage 1

La première série d'expériences consiste à régler les erreurs des observations propres à chaque instrument et les erreurs de l'a priori en se basant sur les diagnostics de la surface. Ceci permet d'obtenir des inversions comparables

les unes aux autres car elles utilisent la même configuration a priori.

Ce premier réglage a amélioré les diagnostics sur les statistiques d'erreurs de la surface et SCIAMACHY (respectivement $SC_{0.2}^{0.6}$ et $SU_1^{0.6}$, voir table 4.13). Cependant, il n'a pas amélioré la cohérence entre l'analyse de SCIAMACHY et les concentrations de méthane observées par les stations de surface. En effet, les biais et rms finaux sont plus grands que les biais et rms initiaux pour cet instrument (voir table 4.12). Ce résultat suggère que les variances des erreurs de SCIAMACHY sont trop complexes par rapport au réglage réalisé ou bien que le produit satellitaire est difficilement exploitable sur notre période d'étude à cause de la dégradation progressive de l'instrument. Les diagnostics des erreurs des observations de GOSAT et IASI sont améliorés par ce réglage mais ceux des erreurs de l'a priori sont dégradés confirmant leur sous-estimation diagnostiquée précédemment pour les inversions de base. En ce qui concerne GOSAT, la cohérence avec la surface a cependant été améliorée par ce réglage bien que toutes les erreurs ne soient pas idéalement prescrites selon ces diagnostics.

Réglage 2

La deuxième série d'expériences consiste à régler les erreurs des observations et de l'a priori propres à chaque instrument. Contrairement à SCIAMACHY qui possède une configuration des erreurs de l'a priori identique à celle de la surface, les diagnostics indiquent une sous-estimation des erreurs de l'a priori du même ordre de grandeur pour GOSAT et IASI.

Ce réglage a amélioré les diagnostics des erreurs des observations et de l'a priori pour GOSAT et IASI (respectivement $TA_{0.075}^{1.5}$ et $IA_{0.22}^{1.5}$, voir table 4.13). On a également amélioré l'accord avec les stations de surface pour les deux instruments. Toutefois, en ce qui concerne GOSAT, ce réglage semble équivalent au premier réglage en termes de qualité des flux de méthane puisque la cohérence avec les stations de surface de ces deux réglages en termes de biais et rms est équivalente (voir table 4.12). Cela suggère que pour GOSAT, la configuration des erreurs de l'a priori a peu d'importance, confirmant la contrainte forte apportée par ces observations. En ce qui concerne IASI, l'accord avec les stations de surface a été amélioré avec l'amélioration des statistiques des erreurs prescrites en entrée du système.

4.4.2 *Abstract*

Satellite retrievals of methane weighted atmospheric columns are assimilated within a Bayesian inversion system to infer the global and regional methane emissions and sinks for the period August 2009 to July 2010. Inversions are independently computed from three different space-borne observing systems and one surface observing system under several hypotheses for prior-flux and observation errors. Posterior methane emissions are inter-compared and evaluated against surface mole fraction observations, via a chemistry-transport model. Apart from SCIAMACHY (SCanning Imaging Absorption spectroMeter for Atmospheric CartograpHY), the simulations agree fairly well with the surface mole fractions. The most consistent configurations of this study using TANSO-FTS (Thermal And Near infrared Sensor for carbon Observation-Fourier Transform Spectrometer), IASI (Infrared Atmospheric Sounding Interferometer) or surface measurements induce posterior methane global emissions of respectively, $565 \pm 21 \text{Tg yr}^{-1}$, $549 \pm 36 \text{Tg yr}^{-1}$ and $538 \pm 15 \text{Tg yr}^{-1}$ over the one-year period August 2009–July 2010. This consistency between the satellite retrievals, SCIAMACHY apart, and independent surface measurements is promising for future improvement of CH_4 emission estimates by atmospheric inversions.

4.4.3 *Introduction*

Methane (CH_4) is the second most important anthropogenic greenhouse gas in terms of radiative forcing after carbon dioxide [Forster et al., 2007]. CH_4 sources are of biogenic origin (wetlands, rice cultivation, ruminant animals, termites, landfills and waste), of pyrogenic origin (biomass burning) and of thermogenic origin (production, transport and distribution of fossil fuels, natural geological leakages). The emissions are about 2/3 anthropogenic and 1/3 natural, with large uncertainties for each individual source (20–100%) [Kirschke et al., 2013]. Its loss in the atmosphere, mainly controlled by the chemical reaction with hydroxyl free radical (OH), gives to the CH_4 molecule a lifetime of about 9 yr. Methane concentrations have reached unprecedented values since the beginning of the industrial era (+150%) and the explanation of their recent variability is still debated [Bousquet et al., 2011, Rigby et al., 2008]. Methane sources and sinks are classically estimated either using bottom-up approaches (process-based modeling and inventories) or top-down approaches (atmospheric inversions). Atmospheric inversions, mostly based so far on surface CH_4 observations [Houweling et al., 1999, Bousquet et al., 2006, Bergamaschi et al., 2009, Bergamaschi et al., 2010, Pison et al., 2009], have

shown to improve bottom-up methane emission estimates from global to regional scales. One difficulty with atmospheric inversions is the determination of error statistics attached to atmospheric observations and prior knowledge of emissions and sinks. More or less empirical methods have been set up by various authors to fill the associated covariances matrices [Pison et al., 2009, Bergamaschi et al., 2010, Chen and Prinn, 2006]. These approaches generally rely on proxy methods and expert judgement. Since 2003, retrievals of methane mixing ratios from space are available from the SCanning Imaging Absorption spectroMeter for Atmospheric CartographY (SCIAMACHY) onboard the ENVironmental SATellite (ENVISAT), largely increasing the number of available constraints for atmospheric inversions, but with a lower individual precision on measurements ($\sim 2\%$) as compared to surface observations ($\sim 0.2\%$). First inversions using SCIAMACHY retrievals have been produced, with the need of specific and empirical treatment to account for retrieval biases [Bergamaschi et al., 2007].

We study four different observing systems that measure or retrieve CH_4 mole fractions (nmol mol^{-1} , abbreviated ppb) : SCIAMACHY, the Thermal And Near infrared Sensor for carbon Observation- Fourier Transform Spectrometer (TANSO-FTS) onboard the Greenhouse Gas Observing SATellite (GOSAT), the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) onboard the Meteorological Operational Polar satellite (MetOp) and surface air sample sites from various networks (National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA), the Italian National Agency for New Technology, Energy and the Environment (ENEA), Japan Meteorological Agency (JMA), Commonwealth Scientific and Industrial Research Organisation (CSIRO), the National Institute of Water and Atmospheric Research (NIWA)). These observations do not have the same spatial (horizontal but also vertical) resolution nor the same space-time sampling, and therefore they are not easy to compare directly. We use the transport model of the Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMDz4) coupled with the Simplified Assimilation Chemical System (SACS) to invert the methane fluxes from each dataset on a spatial grid of $3.75^\circ \times 2.5^\circ$ with a weekly temporal resolution. SACS allows combining methane observations and methyl-chloroform (CH_3CCl_3 , called MCF hereinafter) observations to simultaneously optimize the emissions and oxidation of CH_4 [Pison et al., 2009]. We compare the posterior methane emissions and losses inferred from the various observing systems at both global and regional scales in order to assess the consistency of their information about methane emissions over the globe. The inversion that assimilates surface measurements is taken here as the reference to evaluate the satellite products.

The theoretical framework used to infer methane emissions and their uncertainties is presented in Sect. 4.4.4. The data sets from the various observing systems used in this study are detailed in Sect. 4.4.5. Results are presented in Sect. 5.2.3 and discussed in Sect. 4.4.7, including sensitivity tests introducing a bias correction on the satellite retrievals as a function of the airmass factor and the tuning of the input error statistics.

4.4.4 *Method*

4.4.4.1 *Inversion system*

Our inversion scheme relies on Bayes' theorem and is based on a variational data assimilation system that has been detailed by [Chevallier et al., 2005]. The variational formulation of data assimilation provides a powerful technique when the dimension of the observation vector is very large, which is the case with satellites, and when the number of variables to be optimized is large as well, which is the case for grid-point-scale inversions. High-resolution inversions avoid some of the aggregation errors that hit low-resolution inversions [Bocquet et al., 2011, Kaminski et al., 2001]. Variational data assimilation involves minimizing a cost function J defined as follows :

$$J(\mathbf{x}) = \frac{1}{2}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b)^T \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b) + \frac{1}{2}(H(\mathbf{x}) - \mathbf{y})^T \mathbf{R}^{-1}(H(\mathbf{x}) - \mathbf{y}); \quad (4.1)$$

\mathbf{x} is the state vector that contains the variables to be optimized during the inversion process : the time series of weekly grid-point emission fluxes of CH_4 and MCF, together with their initial conditions (in the form of 2-D scaling factors on the CH_4 and MCF columns) and time series of weekly scaling factors of OH column concentrations averaged into four bands of latitude ($-90^\circ/90^\circ$, $-30^\circ/0^\circ$, $0^\circ/30^\circ$, $30^\circ/90^\circ$). The vector \mathbf{x}^b represents the prior state of \mathbf{x} , the error statistics of which are defined by the covariance matrix \mathbf{B} . Likewise, the vector \mathbf{y} contains the observations of CH_4 and MCF mole fractions with their associated errors described by the covariance matrix \mathbf{R} . Observation errors are defined with respect to the inversion system and therefore combine measurement errors, errors of the chemistry-transport model and representativity errors. The covariance matrix \mathbf{R} is assumed diagonal to simplify calculations, meaning that no correlations between the observations are explicitly taken into account. Following [Chapnik et al., 2006] and [Chevallier, 2007], the variances in \mathbf{R} are inflated to account for the missing correlations. H is the non-linear observation operator that projects the state vector \mathbf{x} onto the observation space. It contains the LMDz-SACS model

presented in Sect. 4.4.4.4 and appropriate observation averaging kernels or weighting functions associated with the satellite retrievals.

The iterative minimizing process implies calculating the gradient of the cost function, which is implemented using the adjoint technique. The gradient of J can be written as follows :

$$\nabla J(\mathbf{x}) = \mathbf{B}^{-1}(\mathbf{x} - \mathbf{x}^b) + \mathbf{H}^T \mathbf{R}^{-1}(H(\mathbf{x}) - \mathbf{y}); \quad (4.2)$$

where \mathbf{H} is the tangent linear of the observation operator H which is calculated at each iteration. The inversion process is iteratively solved with the M1QN3 algorithm developed by [Gilbert and Lemaréchal, 1989] until the gradient norm gets reduced by more than 99%. The inversion system provides the statistically-optimal solution given the observations, the prior information and their respective uncertainties (i.e. the maximum of the posterior probability density function), but not directly the uncertainties associated with this solution. In fact, these uncertainties can be estimated by calculating the Hessian matrix but this is practically very costly given the dimension of the state vector. Instead, we use a robust Monte-Carlo approach to compute the posterior uncertainties [Chevallier et al., 2007]. This method involves performing several inversions with randomly perturbed observations and priors according to their respective error statistics. Because the estimation of the posterior uncertainties seems to become stable from 8 inversions (not shown), an ensemble of 10 19-month inversions (i.e. 190 members) is assumed to be enough to produce an ensemble of solutions well representing the dispersion around the optimal solution \mathbf{x}_a . It completes the description of the posterior distribution for aggregated values (typically regional and annual). The improvement on methane emissions brought by an inversion is characterized by the uncertainty reduction, defined as one minus the ratio between posterior and prior uncertainties.

In addition to testing default configurations of the inversion system, we perform two sensitivity tests, that are defined as follows.

4.4.4.2 *Bias correction*

The first sensitivity test relies on a bias-correction for some of the satellite retrievals. In a previous inversion study, [Bergamaschi et al., 2009] proposed a bias correction as a function of the latitude and of the month for SCIAMACHY. Here, we parameterize possible biases of SCIAMACHY and TANSO-FTS as a function of the airmass factor A_F . A_F is a parameter varying

with the latitude as well, but it has the advantage of directly accounting for the geometrical position of the observing satellite and of the sun.

$$A_F = \frac{1}{\cos(\theta)} + \frac{1}{\cos(\xi)}; \quad (4.3)$$

where θ represents the solar zenith angle and ξ the viewing angle of the satellite. The optimized 4-D CH₄ state obtained from the inversion using surface measurements is considered as our reference. We linearly regress the difference between this optimized state and the satellite observations of TANSO-FTS and SCIAMACHY against A_F for the 19-month period at once. With 2 parameters only, estimated from the 19 months of the reference inversion with seasonally-varying data coverage, we still consider our reference to be independent from the other inversions for the quantities studied in the following.

4.4.4.3 Tuning of error statistics

In our second sensitivity test, we use the method of [Desroziers et al., 2005] to compute simple diagnostics about the error variances of the observations (diagonal of \mathbf{R} matrix) and of the prior emissions (diagonal of \mathbf{B} matrix) projected into the observation space. In principle, this method is an iterative process in which \mathbf{B} and \mathbf{R} are tuned from the following equations until convergence :

$$(\mathbf{HBH}^T)_{i+1} = E[(H(\mathbf{x}_i^a) - H(\mathbf{x}^b))(\mathbf{y} - H(\mathbf{x}^b))^T] \quad (4.4)$$

$$(\mathbf{R})_{i+1} = E[(\mathbf{y} - H(\mathbf{x}_i^a))(\mathbf{y} - H(\mathbf{x}^b))^T] \quad (4.5)$$

$$(\mathbf{HBH}^T)_{i+1} + (\mathbf{R})_{i+1} = E[(\mathbf{y} - H(\mathbf{x}^b))(\mathbf{y} - H(\mathbf{x}^b))^T] \quad (4.6)$$

with i the iteration index within this process. Practically, this iterative process is very costly. In fact, Eqs. 4.5–4.6 require the implementation of the inversion, of which the error statistics are diagnosed, and the implementation of the complete Monte-Carlo study associated (i.e. 10 more perturbed inversions see Sect. 4.4.4.1). In this study, only one iteration of these diagnostics is implemented for each inversion. Equations 4.5–4.6 are applied here to the ensemble defined by all observations at once for the period June 2009–December 2010, i.e. by averaging the diagonals of the matrices described by both sides of the equations. By doing so, both sides are scalar values. These equations allow calculating the values $diag_o$, $diag_b$ and $diag$ respectively representing the diagnosed values for the observations, the prior and the full variances (right-hand side of the equations). From our initial inverse set-up, we compute the observation error variances (var_o), the prior error variances in the observation space (var_b) and the sum of the observation error variances and of the

prior error variances, called the full variances hereinafter ($var = var_o + var_b$), that are defined in our system (left-hand side of the equations). $(\mathbf{HBH}^T)_{i+1}$ (var_b) is computed from the spread of a Monte Carlo ensemble simulation, where each ensemble member is drawn from \mathbf{B} . The ratio ($ratio = \frac{var}{diag}$) is an indicator of the goodness of the variances used in our inversions and, in the best case, equals one. These diagnostics can be advantageously extended to also tune the error correlations (off diagonal terms of \mathbf{R} and \mathbf{B}) and not only variances. However, this implies defining retrieval ensembles for each correlation lag, in spite of irregular space-time sampling ; this is not attempted here.

4.4.4.4 *Chemistry-Transport Model : LMDz-SACS*

The inversion scheme includes a chemistry-transport model (CTM) that combines the LMDz4 transport model [Hourdin et al., 2006] in a nudged (towards analyzed winds) and offline (transport mass fluxes are precomputed) mode, and the chemistry module SACS implemented by [Pison et al., 2009] to estimate the methane emissions that most likely generated the observed mole fractions. The SACS module accounts for the interactions between CH_4 , OH and MCF. Indeed, MCF only reacts with OH, which controls 90% of the destruction of CH_4 in the troposphere. Measurements of MCF mole fractions, the emissions of which are relatively well known, are used as an additional constraint for the OH modeled mole fractions. CH_4 and MCF mole fractions are synergistically optimized during the inversion process to estimate the methane surface sources and the methane atmospheric sink on a spatial grid of $3.75^\circ \times 2.5^\circ$ and with a weekly temporal resolution.

4.4.5 *Prior information and observations*

4.4.5.1 *Prior information*

Our system exploits some prior information \mathbf{x}_b which combines different standard and recent inventories (table 4.10). The anthropogenic emissions of CH_4 are drawn from the Emission Database for Global Atmospheric Research EDGARv4.2 [Olivier and Berdowski, 2001] and biomass burning emissions are from the interannual Global Fire and Emission Database GFED-v3 [van der Werf et al., 2010], both valid for 2008. No effort is made here to adapt these inventories to the years of the study (2009 and 2010). Other sources are added to these emissions : termites from a study of [Sanderson, 1996], ocean from [Lambert and Schmidt, 1993] and wetlands from [Kaplan, 2002]

Emissions	Tg yr ⁻¹	Source
Anthropogenic emissions	364	EDGARv4.2 [Olivier and Berdowski, 2001]
Biomass burning	14	GFED v3 [van der Werf et al., 2010]
Termites	20	[Sanderson, 1996]
Ocean	17	[Lambert and Schmidt, 1993]
Wetlands	177	[Kaplan, 2002] rescaled by [Bergamaschi, P.C.]
Soil	-38	[Ridgwell et al., 1999]
Total	554	

TABLE 4.10 – Global annual prior methane emissions used in the inversions.

which have been rescaled by P. Bergamaschi (personal communication, 2009). Soil uptake is based on [Ridgwell et al., 1999]. The 3-D concentrations of OH are obtained from a previous simulation of the full atmospheric chemistry model LMDz-INCA [Hauglustaine et al., 2004]. MCF emissions are described by the EDGARv4.2 database and are extrapolated for the years 2009 and 2010 based on a former atmospheric inversion [Bousquet et al., 2005], which has been updated.

Current bottom-up inventories range between 223Tg yr⁻¹ and 469Tg yr⁻¹ for the global methane natural sources and between 296Tg yr⁻¹ and 353Tg yr⁻¹ for the global methane anthropogenic sources [Kirschke et al., 2013] implying large uncertainties on methane emissions. The standard deviation of the errors of grid-point weekly CH₄ prior emissions are defined here as a percentage (120%) of the maximum value of the prior emissions between the 8 nearest neighbors in the corresponding month for each grid point [Pison et al., 2009]. Errors on OH scaling factors are set at $\pm 10\%$ and those on MCF are set at $\pm 1\%$ of the flux (from now on, the \pm sign is used to represent standard deviations). MCF errors are relatively small because their emissions are considered to be well known, which motivates their use to constrain the OH concentrations. Errors on the initial conditions are set at $\pm 10\%$ for MCF concentrations and $\pm 3\%$ for CH₄ concentrations. All error spatial correlations are defined by an e-folding length of 500 km over land and of 1000 km over sea, without any correlation between land and ocean grid points. Temporal error correlations are all defined by an e-folding length of 2 weeks. Combining variances and correlations, the CH₄ prior emissions budget amounts to 554 ± 51 Tg yr⁻¹, which is consistent with the large range seen among the current bottom-up inventories [Kirschke et al., 2013]. This initial \mathbf{B} will be further tuned in a sensitivity test (Sect. 4.4.6.3) based on the objective diagnostics described in Sect. 4.4.4.3 : a scalar factor α is estimated so that the new covariance matrix $\alpha\mathbf{B}$ satisfies Eq. 4.5.

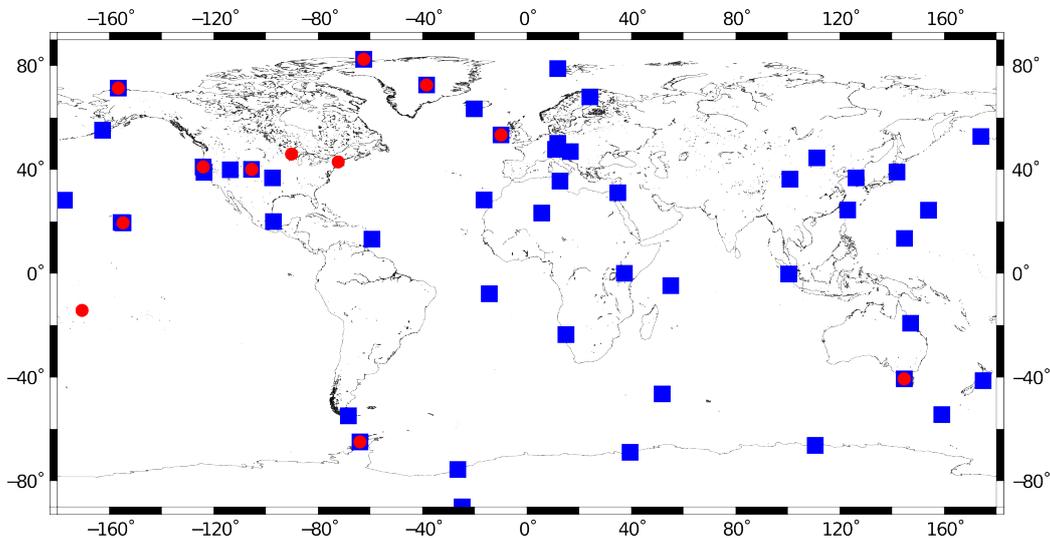


FIGURE 4.2 – Surface sites from the NOAA, ENEA, CSIRO, JMA and NIWA networks used in this study with red circles for surface sites observing MCF dry air mole fractions and blue squares for surface sites observing CH₄ dry air mole fractions.

4.4.5.2 *Surface measurements*

Pointwise methane surface measurements are sparsely distributed but provide observations of the dry air mole fractions with high accuracy and precision (0.2%).

We have selected 49 sites that had regular measurements during the period June 2009–December 2010 (Fig. 4.2) from the NOAA global cooperative air sampling network [Dlugokencky et al., 1994, Dlugokencky et al., 2009], JMA [Matsueda et al., 2004], ENEA [Artuso et al., 2007], CSIRO [Francey et al., 1999] and NIWA [Lowe et al., 1991] networks. The synoptic variability from [GLOBALVIEW-CH₄, 2009] is used as a proxy for transport error, which largely dominates the observation error. Overall, observation standard deviations range from 3.4 ppb (station CYA) to 58.5 ppb (station TAP).

Methyl chloroform (MCF) is a molecule used in the past as an industrial solvent. Its use and emission have been restricted since the Montreal Protocol and its amendments so that its concentration has exponentially decreased in the last decades. Following [Montzka et al., 2000, Montzka, 2011], only

flask data from the NOAA network are used in our inversions. 12 sites have been selected over our study period; they are not homogeneously distributed (Fig. 4.2). During the inversion process, OH columns are scaled into 4 latitude bands to fit the MCF and CH₄ observations. In the Southern tropical band, only Samoa Observatory (SMO) observes the MCF dry air mole fractions. SMO did not have a regular sampling, with no data between April and July 2010, implying that MCF does not add much constraint on the chemical loss in this band. The MCF monthly variances are averaged over each year from the Advanced Global Atmospheric Gases Experiment (AGAGE) program [Prinn et al., 2005] when available, otherwise from the NOAA. These averages, representing synoptic variability, are used as MCF observation errors. MCF standard deviations range from 0.07 ppt (station SUM) to 0.21 ppt (station HFM).

4.4.5.3 *Satellite observations*

SCIAMACHY was operated onboard the European satellite ENVISAT between March 2002 and April 2012. It orbited at 800 km and covered the Earth in full every 6 days with a swath of 960 km and a ground resolution of 30 km (along track) and 60 km (across track) at nadir. The instrument observed the solar radiation reflected at the surface and the top of the atmosphere in the Short Wave Infra Red (SWIR) domain that allows deducing total columns of methane in cloud-free and sunlight conditions. The ratio of the CH₄ and CO₂ dry air mole fractions is retrieved together with the corresponding averaging kernels using the Iterative Maximum A Posteriori (IMAPv55) DOAS algorithm initially detailed by [Frankenberg et al., 2006]. We use this ratio and the 4-D CO₂ analysis from the surface air-sample inversion of [Chevallier et al., 2010] to obtain the column-averaged dry air mole fraction of CH₄ (XCH₄). The retrievals have a lower accuracy over the oceans, where the reflection of the solar radiation is very weak and at high latitudes as well. To avoid biases that may be introduced by these data and following [Bergamaschi et al., 2009], we limit our study to the observations over land within 50° from the Equator and for which ground altitudes and model orography differ by less than 250 m. The selected XCH₄ data (Fig. 4.3b) are then averaged (non-weighted by their errors) into grid cells for each time step of the model so that “super-observations” are obtained. Lastly, we remove outliers by suppressing the super-observations whose departure to the prior is larger than three times the standard deviation of all departures. The mean of these averaged observations is about 1747 ppb. The uncertainty of the XCH₄ retrievals is around 2% [Frankenberg et al., 2006].

Following [Spahni et al., 2011] and [Pison et al., 2009], a CTM error of 8% of the observation values describing the inability of the model to represent the observations and accounting for correlated errors (see Sect. 4.4.4.1), is quadratically added to this retrieval error. In a sensitivity test (Sect. 4.4.6.3), an additional tuning will be computed based on the objective diagnostics described in Sect. 4.4.4.3 : a scalar factor γ is estimated so that the new covariance matrix of the observation errors $\gamma\mathbf{R}$ satisfies Eqs. 4.6 and 4.6.

The Japanese satellite GOSAT was launched in January 2009 and has a polar sun-synchronous orbit at 667 km. It provides a full coverage of the Earth every 3 days with a swath of 750 km and a ground pixel resolution of 10.5 km at nadir. The TANSO-FTS instrument also observes in the SWIR domain. Version 3.2 of the TANSO-FTS XCH₄ proxy retrievals performed at the University of Leicester [Parker et al., 2011] are used with associated averaging kernels and a priori profiles. The XCH₄ retrieval algorithm uses an iterative retrieval scheme based on Bayesian optimal estimation. The retrieval accuracy is estimated to be about 0.6%. As for SCIAMACHY, CO₂ columns at appropriate time and location from [Chevallier et al., 2010] are then used as a proxy for light path to retrieve the averaged mole fractions of methane. A CTM error of 8% of the observation is quadratically added to this error (see previous paragraph). Given the similarity between SCIAMACHY and TANSO-FTS measurements, we apply the data selection of the previous paragraph (see Fig. 4.3a), create “super-observations” and remove outliers as well. The assimilated observations have a mean of 1775 ppb. Moreover, the covariance matrix for TANSO-FTS \mathbf{R} will also be tuned with a scalar γ in Sect. 4.4.6.3.

The European MetOp-A satellite was launched in October 2006 and has a polar sun-synchronous orbit at an altitude of 817 km. Onboard MetOp-A, the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) measures the thermal radiation coming from the Earth and the atmosphere in the Thermal InfraRed domain (TIR) with a spectral resolution of 0.5 cm⁻¹ apodized. It provides a full global coverage every day with a swath of 1066 km and a ground resolution of 12 km at nadir. The retrieval algorithm is based on a non-linear inference scheme [Crevoisier et al., 2009, Crevoisier et al., 2012]. It allows inferring mid-to-upper troposphere columns of methane for the tropical band between 30° S and 30° N, including both land and ocean, twice a day at 09 :30 a.m./p.m. local time, with an accuracy of 1.2%. A CTM error of 3% of the CH₄ mid- to upper-troposphere columns is quadratically added to the retrieval error. The lower CTM error compared to TANSO-FTS and SCIAMACHY relates to the lesser vertical extent of the IASI (partial) column

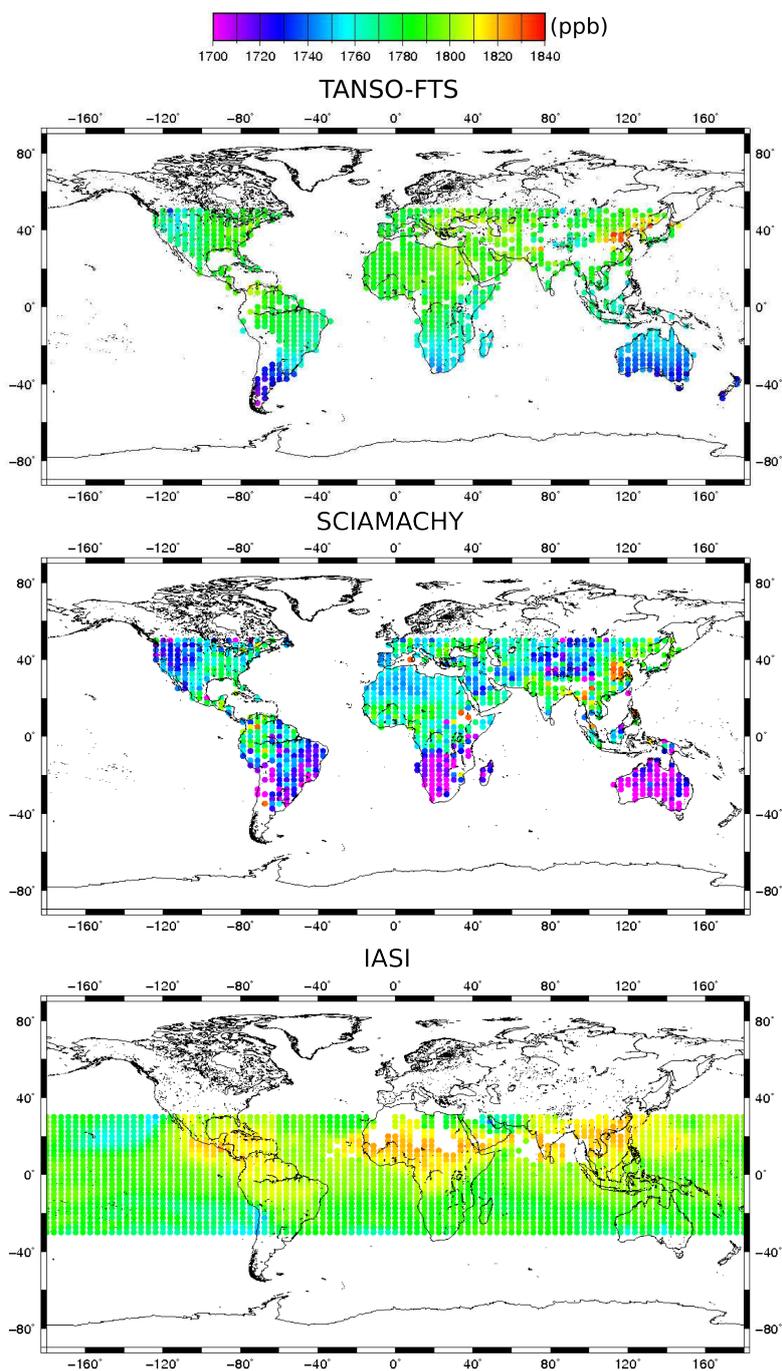


FIGURE 4.3 – Satellite "super-observations" (ppb) used in the inversions for the month of July 2010.

retrieval that does not include the boundary layer. IASI retrievals (Fig. 4.3c) are also averaged into super-observations and outliers are removed as well. This removal suppresses about 10 % of the super-observations which have now a mean of 1788 ppb. Additional tuning of the observation error covariance matrix for IASI is done like for the other instruments in Sect. 4.4.6.3.

4.4.6 Results

A series of grid-point inversions covering the period from June 2009 to December 2010 are computed with the inverse model presented in Sect. 4.4.4 and the datasets presented in Sect. 4.4.5. To avoid edge effects, we study the methane emissions for the one-year period from August 2009 to July 2010. This time period has been chosen to have all observing systems available. Posterior states given by the inversions are then aggregated at global or regional scales and evaluated at the local scale, i.e. at the surface sites. Each inversion will be called XX_γ^α with XX a two letter code specific to each observing system (SC for SCIAMACHY, TA for TANSO-FTS, IA for IASI and SU for surface sites), α and γ the multiplicative factors associated, respectively, with the covariance matrices \mathbf{B} (see Sect. 4.4.5.1) and \mathbf{R} (see Sect. 4.4.5.3).

4.4.6.1 Default configurations

For this first set of inversions, no tuning of inversions errors is performed. We present and analyze SU_1^1 , SC_1^1 , TA_1^1 and IA_1^1 .

Global and regional budgets

Figure 4.4a presents the methane global annual emissions as inferred by the inversions. When compared to the prior fluxes, the global emission budgets of TANSO-FTS (TA_1^1) and SCIAMACHY (SC_1^1) are respectively increased by 3.9% (+22 Tg yr⁻¹) and 4.2% (+24 Tg yr⁻¹) (see table 4.12). They are decreased for IASI (IA_1^1) and the surface (SU_1^1) respectively by 2.3% (-12 Tg yr⁻¹) and 3.6% (-19 Tg yr⁻¹). Chemical losses are increased by 0.4% (+2 Tg yr⁻¹) for TA_1^1 only. For the other observing systems, they are decreased by 1.4% (-8 Tg yr⁻¹), 0.3% (-2 Tg yr⁻¹) and 3% (-16 Tg yr⁻¹) respectively for SC_1^1 , IA_1^1 and SU_1^1 . This leads to global annual growth rates of +39 Tg yr⁻¹, +51 Tg yr⁻¹, +9 Tg yr⁻¹ and +17 Tg yr⁻¹ respectively for TA_1^1 , SC_1^1 , IA_1^1 and SU_1^1 . Uncertainty reductions on global budgets, estimated with a Monte-Carlo approach as detailed in Sect. 4.4.4.1, are of 41%, 51%, 56%

Regions	TA_1^1	SC_1^1	IA_1^1	SU_1^1
North American Boreal	07	00	00	41
USA	18	15	10	35
South American Tropical	21	31	48	16
South American Temperate	41	37	43	33
Northern Africa	53	61	63	49
Southern Africa	13	12	24	29
West Europe	15	16	04	51
East Europe	21	15	00	46
Eurasian Boreal	11	17	06	45
Middle East	30	24	07	13
South Asia	35	44	35	33
South East Asia	39	32	36	51
Australia	01	00	02	26
Indonesia	29	20	64	38
Global	41	51	56	60

TABLE 4.11 – Uncertainty reduction (%) on methane emissions for the default configurations.

and 60% respectively for TA_1^1 , SC_1^1 , IA_1^1 and SU_1^1 (see table 4.11). The global posterior uncertainty is inferred from the uncertainty reduction and the global prior uncertainty of 51 Tg yr^{-1} and completes the description of posterior global annual estimates of methane. The global emission budgets amount to $576 \pm 30 \text{ Tg yr}^{-1}$, $578 \pm 25 \text{ Tg yr}^{-1}$, $542 \pm 22 \text{ Tg yr}^{-1}$ and $535 \pm 20 \text{ Tg yr}^{-1}$ respectively for TA_1^1 , SC_1^1 , IA_1^1 and SU_1^1 . As shown by Fig. 4.4a, with error bars representing the 1-sigma standard deviations (68% of the posterior distribution), the global emissions and chemical losses of methane inferred from the different observing systems are statistically consistent with each other, in the sense that they agree within at least two sigmas.

The methane emissions are then aggregated over large continental regions (shown in Fig. 4.5a and adapted from [Gurney et al., 2002]). As shown by Fig. 4.5b, the three satellites show a very good agreement for 8 regions : North American Boreal, USA, South American Temperate, Southern Africa, West Europe, Eurasian Boreal, Middle East and Australia. In some of them (USA, South American Temperate, Southern Africa, West Europe, Eurasian Boreal and Middle East), this agreement combined with significant uncertainty reductions reflect a good improvement of our knowledge on methane emissions. In regions North American Boreal and Australia, the inversion

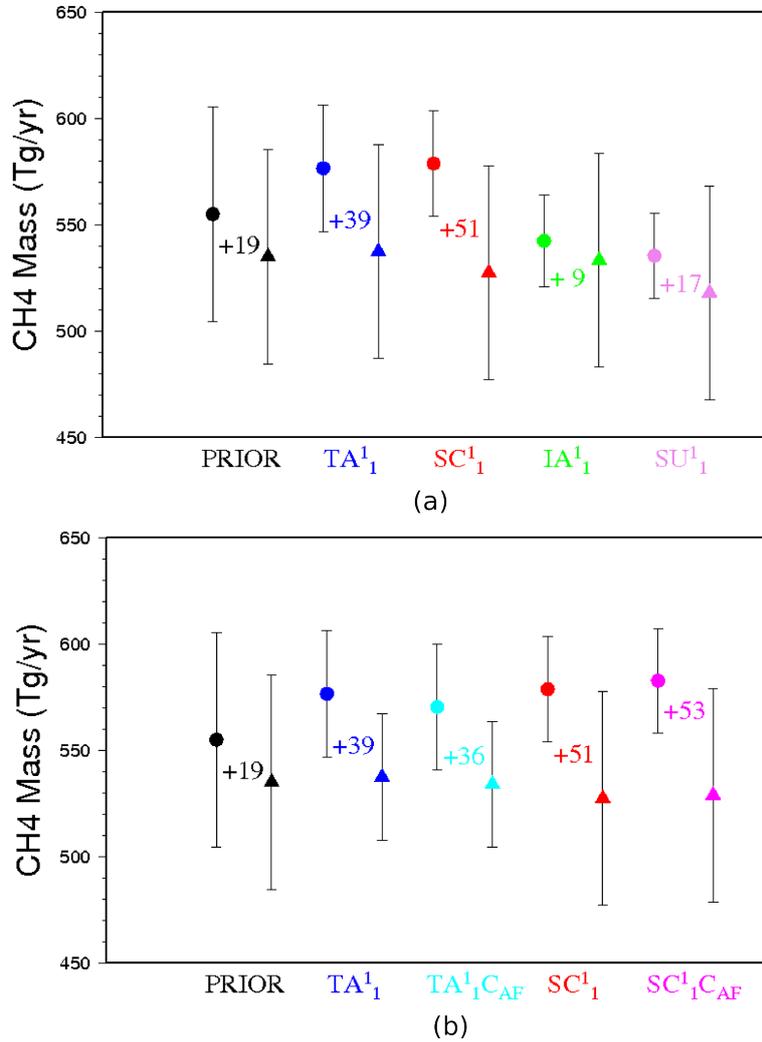


FIGURE 4.4 – Global emissions (circles) and losses (triangles) for the configurations TA_1^1 (blue), SC_1^1 (red), IA_1^1 (green) and SU_1^1 (violet) (a) and for TA_1^1 (dark blue), SC_1^1 (red) and bias-corrected configurations $TA_1^1 C_{AF}$ (light blue) and $SC_1^1 C_{AF}$ (magenta) (b). Numbers describe the global growth rates $Tg\ yr^{-1}$ inferred by the inversions. Error bars represent the posterior uncertainties estimated with the Monte-Carlo study (see section 4.4.4.1)

process infers marginal increments and very weak uncertainty reductions for the three satellites meaning that we do not really improve our knowledge on methane emissions there. Large differences are found between satellite- and surface-based inversions for regions USA, South American Temperate and South East Asia. The surface-based inversion does not agree with the satellite

Name	Emissions Tg yr ⁻¹	Loss Tg yr ⁻¹	Growth Rate Tg yr ⁻¹	Mean-Bias ppb	Rms ppb
PRIOR	554 ± 51	535 ± 51	19 ± 50	24.3	28.1
SU_1^1	535 ± 20	518 ± 51	17 ± 31	0.8	5.5
TA_1^1	576 ± 30	537 ± 51	39 ± 38	4.1	15.4
SC_1^1	578 ± 25	527 ± 51	51 ± 36	39.1	40.5
IA_1^1	542 ± 22	533 ± 51	9 ± 35	13.0	20.0
$TA_1^1 C_{AF}$	570 ± 30	534 ± 51	36 ± 23	2.7	13.7
$SC_1^1 C_{AF}$	582 ± 25	529 ± 51	53 ± 22	23.4	26.4
$SU_1^{0.6}$	538 ± 15	519 ± 30	19 ± 24	9.1	10.3
$TA_{0.075}^{0.6}$	565 ± 21	537 ± 30	28 ± 25	2.2	16.1
$SC_{0.2}^{0.6}$	631 ± 16	549 ± 30	83 ± 28	39.7	44.3
$IA_{0.1}^{0.6}$	530 ± 16	530 ± 30	0 ± 20	15.5	23.6
$TA_{0.075}^{1.5}$	568 ± 29	541 ± 71	27 ± 48	1.9	15.2
$IA_{0.2}^{1.5}$	549 ± 36	536 ± 71	13 ± 50	12.4	19.2

TABLE 4.12 – Global emissions, chemical losses, growth rates of methane and absolute mean-bias to surface measurements. XX_γ^α where XX is a two letter code specific to each observing system (SC for SCIAMACHY, TA for TANSO-FTS, IA for IASI and SU for surface sites); α and γ are the multiplicative factors associated with the covariance matrices \mathbf{B} (see Sect. 4.4.5.1) and \mathbf{R} (see Sect. 4.4.5.3).

ones especially in the Tropics where there are few surface data. It seems that the increments found in region USA by the surface-based inversion are highly over-estimated. Large differences between IASI and the other observing systems are found in regions South East Asia and Indonesia. The IASI-based inversion get high uncertainty reductions for these regions (64% in Indonesia and 51% in South East Asia). However, the uncertainty reduction computation only accounts for random errors but biases in the transport model for this area may degrade the actual performance. Therefore, the differences are more likely due to a misattribution of the emissions in these regions because of a larger footprint of the IASI free tropospheric column combined with a lack of retrievals during the monsoon period.

Initial conditions

2-D scaling factors adjust the initial conditions of CH_4 and MCF on 1 June 2009 at 00 :00 UTC (see Sect. 4.4.4.4) and therefore influence the mass budget of the inversion. After the inversions SC_1^1 , TA_1^1 , IA_1^1 and SU_1^1 , the initial CH_4 columns show increments of about $1.1 \pm 0.6\%$, $0.7 \pm 0.6\%$, $0.8 \pm 1.0\%$

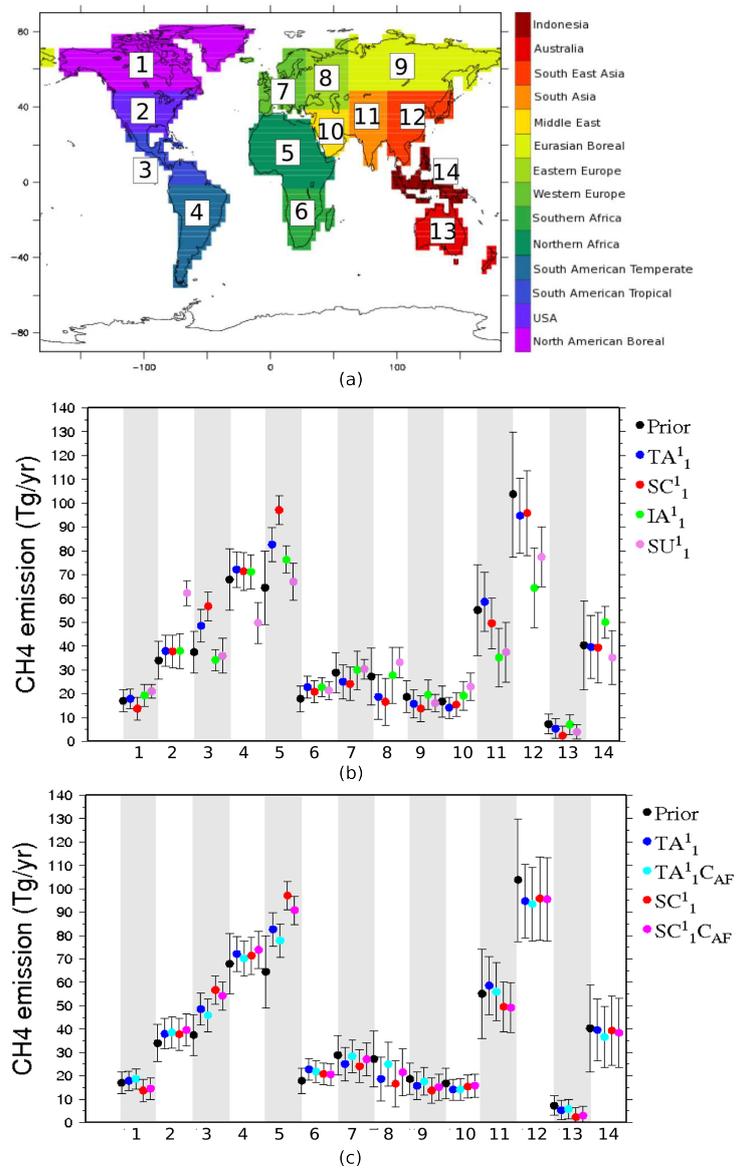


FIGURE 4.5 – Regional methane emissions for default configurations TA_1^1 (blue), SC_1^1 (red), IA_1^1 (green) and SU_1^1 (violet) (b) and for configurations TA_1^1 (dark blue), SC_1^1 (red) and bias-corrected configurations $TA_1^1 C_{AF}$ (light blue) and $SC_1^1 C_{AF}$ (magenta) (c). Error bars represent the posterior uncertainties estimated with the Monte-Carlo study (see section 4.4.4.1)

and $0.8 \pm 0.7\%$ respectively. The spatial distribution of these columns is very different between SCIAMACHY and the other observing systems. Figure 4.6b shows a decrease of the amplitude of the columns in the two hemispheres that

can reach 3% for SCIAMACHY, with a slight increase in the Tropics (less than 1%). However, for TANSO-FTS, IASI and the surface sites, Fig. 4.6a-c, 4.7a show an increase especially located in the Southern Hemisphere that can reach 4% for IASI, 3% for TANSO-FTS and 2% for the surface.

Fit to surface measurements

The fit to the surface data is summarized by the absolute mean of the biases (called mean-bias hereinafter) and the root mean squares of the bias (called rms hereinafter) (last 2 columns of table 4.12) between the posterior states obtained by using the different datasets, respectively TA_1^1 , SC_1^1 , IA_1^1 and SU_1^1 , and their equivalent seen at each surface site (see Fig. 4.8a-c, 4.9a respectively). The mean-bias obtained by TA_1^1 is 4.1 ppb which is well smaller than the SC_1^1 one (39.1 ppb) and than the IA_1^1 one (13.0 ppb), and close to the SU_1^1 one 0.8 ppb. The rms obtained by TA_1^1 is 15.4 ppb, the one by SC_1^1 is 40.5 ppb, the one by IA_1^1 is 20.0 ppb and the one by SU_1^1 is 5.5 ppb. Note that for SU_1^1 , surface observations are assimilated by the inverse system, therefore explaining low rms and mean-bias values. Only the SCIAMACHY-based inversion does not infer improved mean-bias and rms when compared to the prior ones (mean-bias of 24.3 ppb and rms of 28.1 ppb).

4.4.6.2 Bias correction

A bias correction as a function of the airmass factor A_F (see Sect. 4.4.4.2) is applied on TANSO-FTS and SCIAMACHY retrievals as presented in Sect. 4.4.5.3. $SC_1^1 C_{AF}$ and $TA_1^1 C_{AF}$ represent the inversions using bias-corrected satellite retrievals of SCIAMACHY and TANSO-FTS respectively. As shown by Fig. 4.10a, b, the linear model is $4.0 \times A_F - 34.0$ ppb for TANSO-FTS and $13.7 \times A_F - 26.6$ ppb for SCIAMACHY. $SC_1^1 C_{AF}$ and $TA_1^1 C_{AF}$ are respectively compared to SC_1^1 and TA_1^1 of Sect. 4.4.6.1 to evaluate the impact of such a correction.

Global and regional budgets

At the global scale, as shown by Fig. 4.4b and table 4.12, the bias correction decreases both posterior emissions and losses for TANSO-FTS respectively by 1% (6Tg yr⁻¹) and 0.6% (3Tg yr⁻¹) leading to a decrease of 7% of the annual growth rate (36Tg yr⁻¹ instead of 39Tg yr⁻¹ without correction). For SCIAMACHY, the correction increases both posterior emissions and losses respectively by 0.7% (4Tg yr⁻¹) and 0.2% (2Tg yr⁻¹), leading to an increase of the annual growth rate of 6% (53Tg yr⁻¹ instead of 51Tg yr⁻¹ without correction). The correction induces increments of the same order of magnitude

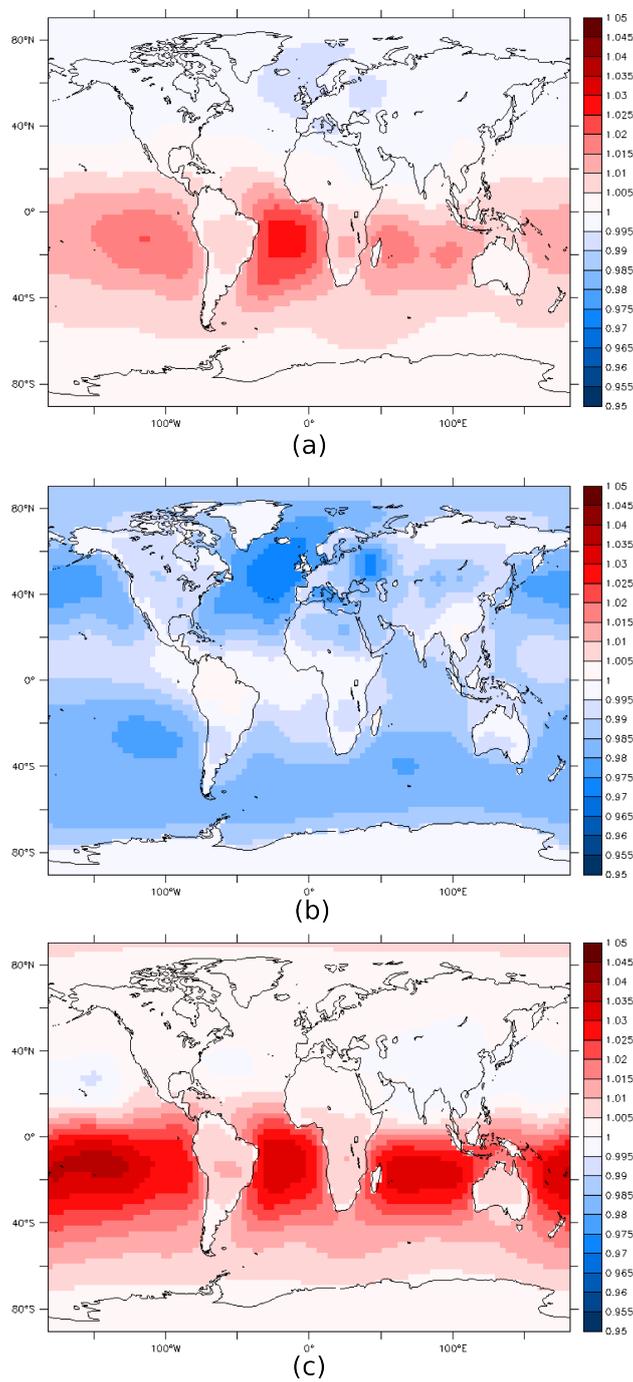


FIGURE 4.6 – Increments of the initial conditions of methane for the TA_1^1 (a), SC_1^1 (b) and IA_1^1 (c) inversions expressed as a fraction of the prior.

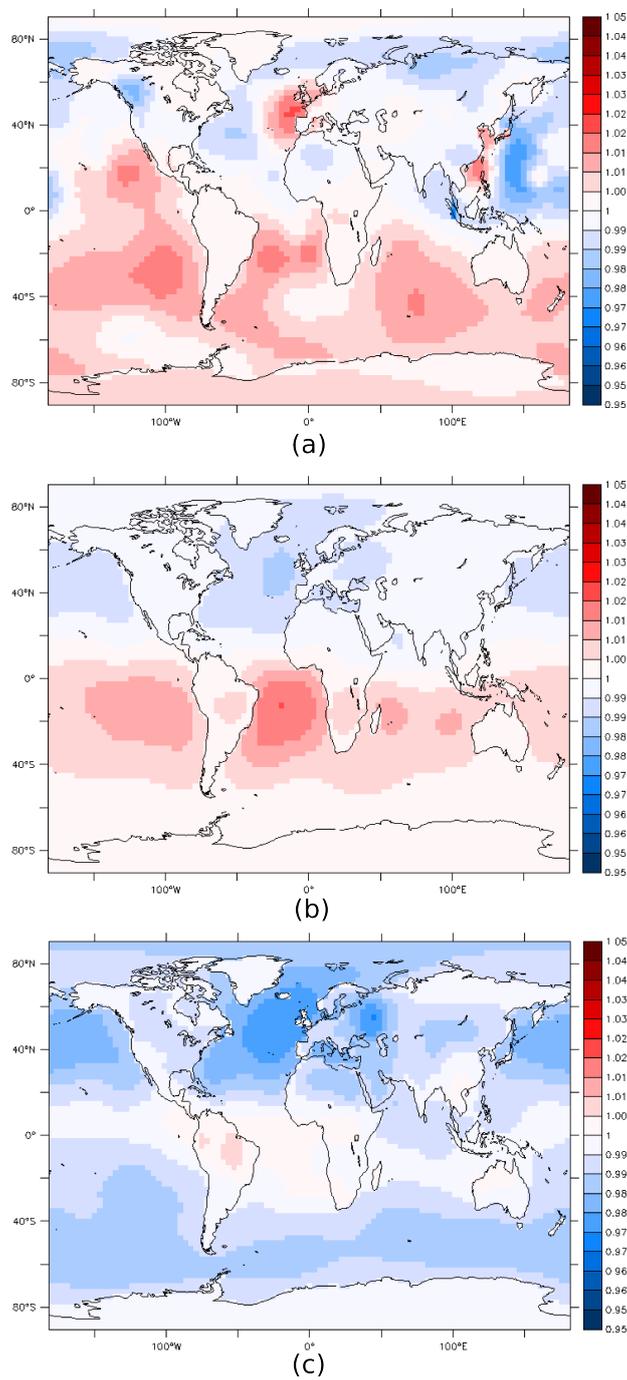


FIGURE 4.7 – Increments of the initial conditions of methane for the SU_1^1 (a), $TA_1^1C_{AF}$ (b) and $SC_1^1C_{AF}$ (c) inversions expressed as a fraction of the prior.

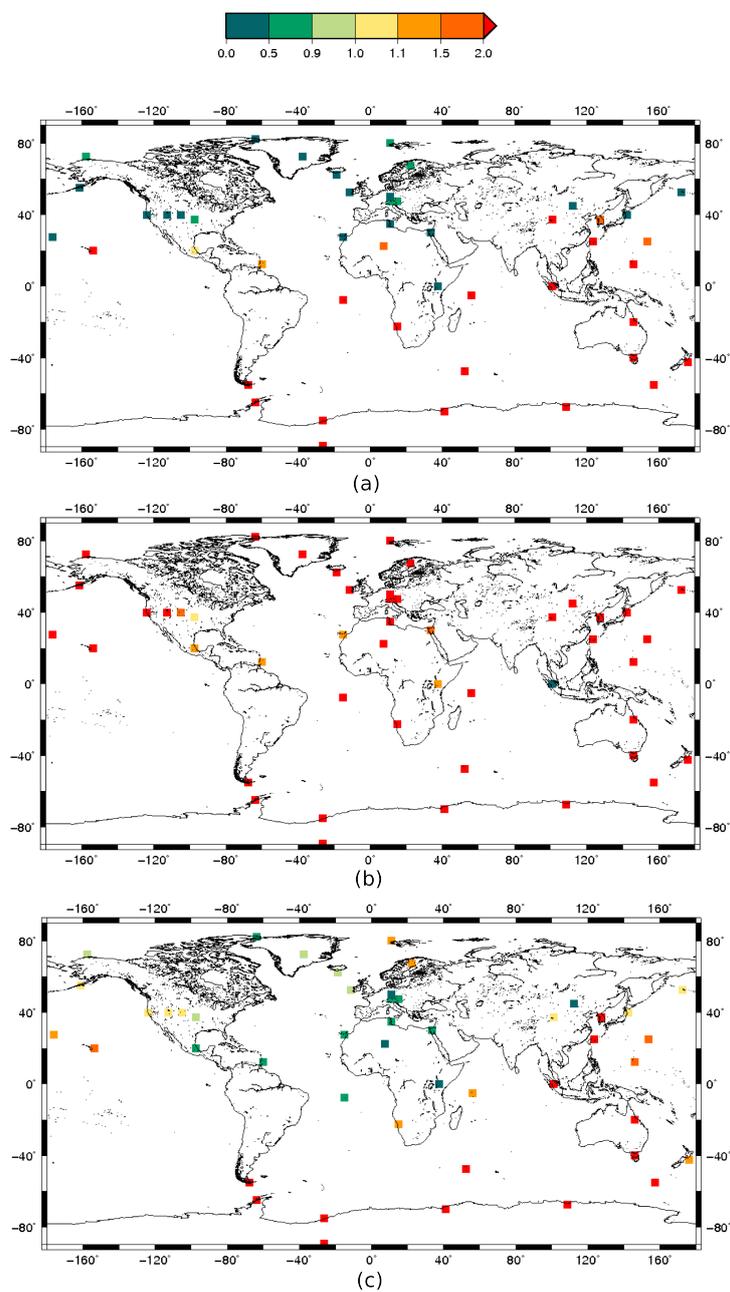


FIGURE 4.8 – Fit at surface sites (unitless) represented as the ratio of the posterior to the prior values of bias (in absolute values) between simulated (from the TA_1^1 (a), SC_1^1 (b) and IA_1^1 (c) inversions) and observed methane concentrations.

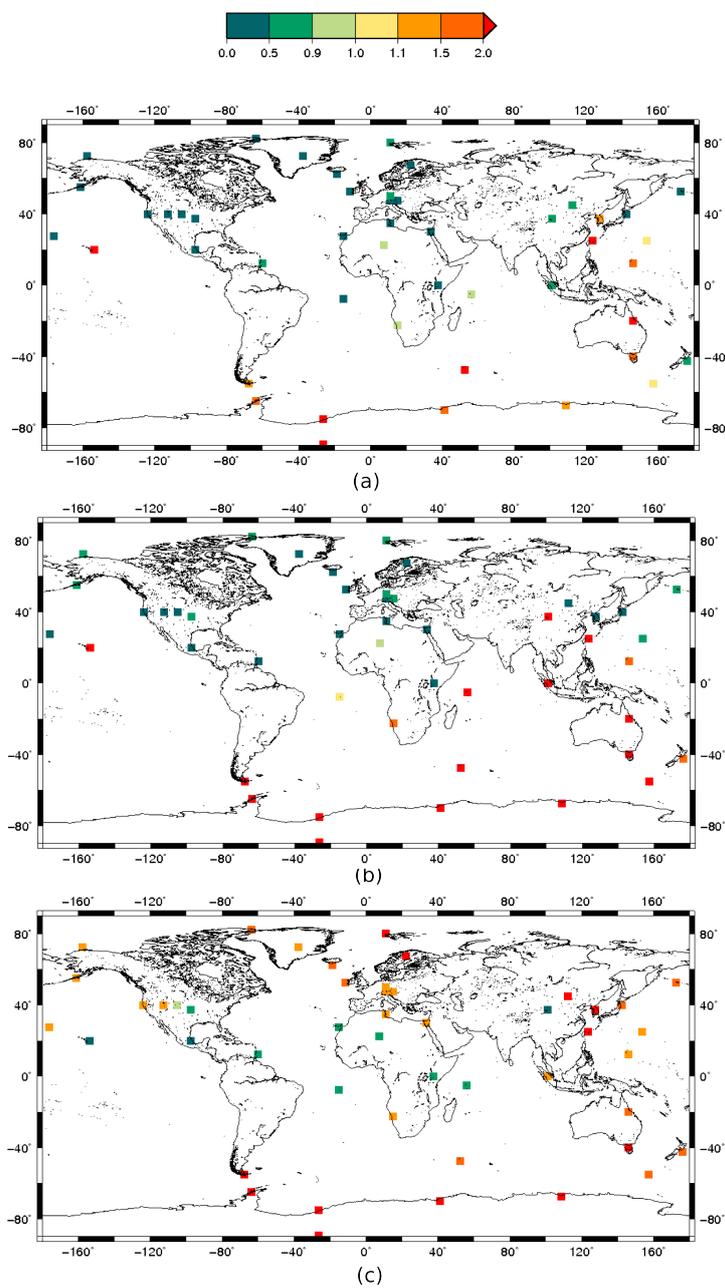


FIGURE 4.9 – Fit at surface sites (unitless) represented as the ratio of the posterior to the prior values of bias (in absolute values) between simulated (from the SU_1^1 (a), $TA_1^1 C_{AF}$ (b) and $SC_1^1 C_{AF}$ (c) inversions) and observed methane concentrations.

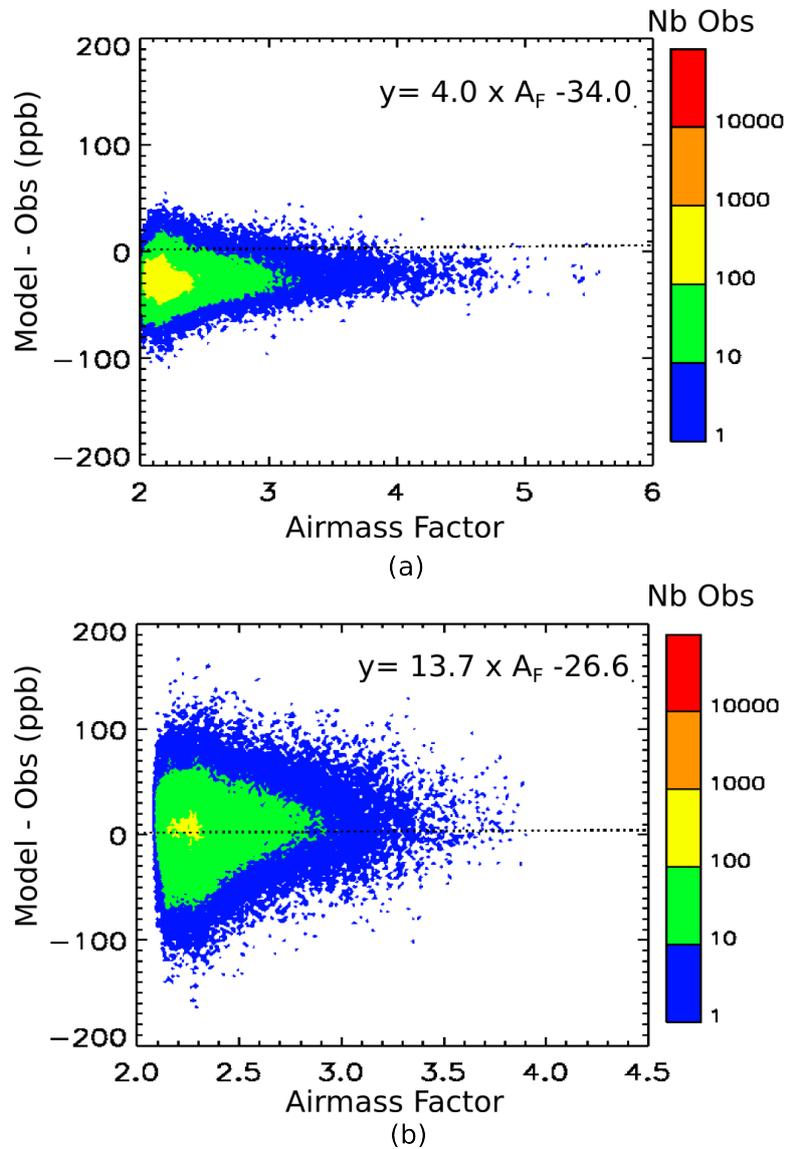


FIGURE 4.10 – Linear regression for SU_1^1 posterior state (Model) minus TANSO-FTS observations (a) or SCIAMACHY observations (b) as a function of the Airmass Factor (A_F)

for the two satellites but these do not have the same signs. Although the bias correction on TANSO-FTS retrievals shows methane emissions and growth rates more consistent with the surface-based inversion, it does not induce a posterior state more consistent with the surface in terms of methane emissions for SCIAMACHY. However, the bias correction improves the agreement between the SCIAMACHY posterior state and the surface measurements (see

Fig. 4.9c and table 4.12).

At the regional, when compared to the non-corrected inversion TA_1^1 , posterior methane emissions of $TA_1^1C_{AF}$ are slightly increased or decreased getting closer to the reference inversion for all regions. As shown by Fig. 4.5c, the emissions are increased especially in mid- and high-latitudes, like in region East Europe (+13%). They are decreased especially in the Tropics, like in region Indonesia (-7.6%). For SCIAMACHY, the correction triggers increases or decreases following the reference increments for almost all regions with exceptions particularly in regions South American Tropical (-4%) and South American Temperate (+4%). The correction only infers marginal variations of methane emissions and does not improve the agreement between $SC_1^1C_{AF}$ and the surface-based inversion at the regional scale. As surface measurements are especially located in mid- and high-latitudes, it makes sense that the largest inconsistencies with the reference concern the Tropics.

Initial conditions

The initial columns of the two configurations using TANSO-FTS observations have the same spatial distribution. However, the bias correction infers larger negative increments in the Northern Hemisphere and weaker positive increments in the Southern Hemisphere. The initial columns of the two configurations of SCIAMACHY are dominated by a strong decrease compared to the prior (see Fig. 4.7c) with the largest negative variations (around 3%) located in the Northern Hemisphere. The CH_4 initial columns vary by $1.1 \pm 0.6\%$ without correction (SC_1^1) and by $0.8 \pm 0.5\%$ with the bias correction ($SC_1^1C_{AF}$). The bias correction seems to make the spatial distribution of the $SC_1^1C_{AF}$ initial conditions agree more with TA_1^1 or $TA_1^1C_{AF}$ initial conditions (Fig. 4.6a, 4.7b), which show a positive anomaly in the Tropics of the Southern Hemisphere.

Fit to surface measurements

For TANSO-FTS, the mean-bias between the model and the surface observations is decreased from 4.1ppb to 2.7ppb (see table 4.12) and the rms is slightly reduced from 15.4ppb to 13.7ppb after the bias correction. The bias correction marginally improves the fit to surface sites in the Northern Hemisphere where five more sites show better agreement between surface measurements and the posterior state of the corrected version $TA_1^1C_{AF}$ (Fig. 4.9b). For SCIAMACHY, the fit to the surface sites is only slightly improved, especially in the Tropics (Fig. 4.9c). The bias correction improves the fit for 10 sites located in the two hemispheres while the mean-bias is reduced from 39.1ppb to 23.4ppb and the rms is reduced from 40.5ppb to 26.4ppb. This shows a marginal improvement of the mean-bias and the rms of the SCIAMACHY corrected

configuration $SC_1^1 C_{AF}$ when compared to the prior mean-bias (24.3ppb) and rms (28.1ppb).

4.4.6.3 *Tuning of error statistics*

Diagnostics on default configurations

The results of the diagnostics applied on the default configurations SU_1^1 , SC_1^1 , TA_1^1 and IA_1^1 are presented in table 4.13. They suggest that prior error variances are over-estimated by almost 2-fold for the surface ($ratio_b=1.68$) and SCIAMACHY ($ratio_b=1.82$) while they are under-estimated by 1.5 for TANSO-FTS ($ratio_b=0.64$) and IASI ($ratio_b=0.69$). The differences among prior error diagnostics for the four observing systems likely stems from the use of a single scaling factor for the whole matrix that may have a more complex structure in reality. Each observing system suggests a scaling factor in this context, based on its own spatial and temporal sensitivity.

The observation errors seem to be fairly well represented in our system for the surface ($ratio_o=0.79$) while they are over-estimated by 13-fold for TANSO-FTS ($ratio_o=13.69$) and by almost 5-fold for SCIAMACHY ($ratio_o=5.00$) and IASI ($ratio_o=4.41$). The initial value of $ratio_o$ for the satellites is related to our use of a diagonal \mathbf{R} , with inflated variances qualitatively compensating for missing correlations (see section. 2.1). It should be noted that the diagnostics do not account for this numerical artifact.

The full variances are slightly over-estimated for the surface ($ratio=1.54$) while they are over-estimated by 4-fold for TANSO-FTS and SCIAMACHY ($ratio=4.24$ for TA_1^1 and $ratio=4.60$ for SC_1^1) and by 2-fold for IASI ($ratio=2.12$ for IA_1^1).

From these diagnostics, we perform two experiments series where we tune observation and prior error variances. We evaluate the results based on their agreement with our reference system, i.e. the surface network.

Tuning experiments 1

In the first experiment, we select the prior error variance ($\alpha = 0.6 = 1/1.68$) suggested by our reference observing system (SU_1^1). It avoids making the prior error matrix vary with the observing system. For the satellites, the observation errors are tuned in order to satisfy Eq. 4.6. For the surface, the observation error variances are not tuned as they are rather good already ($ratio_o=0.79$ for SU_1^1). This tuning improves all diagnostics for the surface ($ratio_o=0.74$, $ratio_b=0.94$ and $ratio=0.90$ for $SU_1^{0.6}$ see table 4.13) and SCIAMACHY ($ratio_o=1.06$, $ratio_b=0.93$ and $ratio=1.03$ for $SC_{0.2}^{0.6}$) but does not improve the agreement with the reference in terms of mole fractions (see

NAME	ratio _o	ratio _b	ratio
SU_1^1	0.79	1.68	1.54
TA_1^1	13.69	0.64	4.24
SC_1^1	5.00	1.82	4.60
IA_1^1	4.41	0.69	2.12
$SU_{0.6}^1$	0.74	0.94	0.90
$TA_{0.075}^{0.6}$	1.17	0.38	0.49
$SC_{0.2}^{0.6}$	1.06	0.93	1.03
$IA_{0.22}^{0.6}$	1.00	0.41	0.58
$TA_{0.075}^{1.5}$	1.11	0.95	0.96
$IA_{0.22}^{1.5}$	1.00	1.01	1.00

TABLE 4.13 – Ratios (unitless) of the observation ($ratio_o$), prior ($ratio_b$) and full (ratio) variances inferred from the diagnostics. These quantities are respectively defined as the ratios between prescribed (var_o , var_b and $var = var_o + var_b$ and associated diagnosed ($diag_o$, $diag_b$ and $diag$ error variances and represent the goodness of the error statistics in the inversion system. Good statistical consistency is obtained when the ratios are close to 1.

table 4.12). For the surface, the fit to assimilated surface sites is degraded. This result is expected as decreasing prior errors limit the possibility of the inversion to deviate from the prior to better fit the assimilated observations. For SCIAMACHY, there is no real improvement of the fit to surface sites after inversion in terms of mean-bias (39.7 ppb) and rms (44.3 ppb) when compared to the prior statistics of the bias. This suggests that the observation error variances of SCIAMACHY have a more complex structure than the one tuned here. Otherwise, the observation error diagnostics for TANSO-FTS ($ratio_o=1.17$ for $TA_{0.075}^{0.6}$) and IASI ($ratio_o=1.00$ for $IA_{0.2}^{0.6}$) are both improved while the prior error diagnostics are degraded for both satellite instruments ($ratio_b=0.38$ for $TA_{0.075}^{0.6}$ and $ratio_b=0.41$ for $IA_{0.2}^{0.6}$) confirming the fact that the prior error configuration satisfying for the surface does not fit TANSO-FTS and IASI. However, the agreement with independent surface sites is improved in terms of mean-bias (2.2 ppb) and rms (16.1 ppb) for TANSO-FTS only and is stable for IASI.

Tuning experiments 2

In the second experiment, we tune both prior and observation error variances following the diagnostics specific to TANSO-FTS and IASI. As suggested by the diagnostics applied on the default configurations, we set $\alpha=1.5$ for prior errors ($ratio_b=0.64$ for TANSO-FTS and $ratio_b=0.69$ for IASI) and the

observation errors are independently tuned ($\text{ratio}_o=13.69$ for TANSO-FTS and $\text{ratio}_o=4.41$ for IASI). The results of the diagnostics for the configurations $\text{TA}_{0.075}^{1.5}$ and $\text{IA}_{0.22}^{1.5}$ are presented in table 4.13. They suggest that all error variances are fairly well prescribed in our system now ($\text{ratio}=0.96$ for $\text{TA}_{0.075}^{1.5}$ and $\text{ratio}=1.00$ for $\text{IA}_{0.22}^{1.5}$). The fit to surface sites is improved by this tuning in terms of mean-bias and rms for both instruments when compared to the default configurations (i.e. when $\alpha=\gamma=1$). However, for TANSO-FTS, the mean-bias and rms are similar to the ones obtained by the first tuning experiment with prior error diagnostics degraded (i.e. configuration $\text{TA}_{0.075}^{0.6}$), meaning that prior error variances have a minor effect on the quality of the inverted fluxes for this instrument. This is not the case for IASI () for which the prior error configuration has a larger impact on the inverted fluxes.

4.4.7 Discussion

The two satellite instruments observing in the SWIR domain, TANSO-FTS and SCIAMACHY, infer larger emissions than the other two observing systems, respectively by $+41\text{Tg yr}^{-1}$ and $+43\text{Tg yr}^{-1}$ for the default configurations (i.e. with $\alpha=\gamma=1$), when compared to the surface global budget of 535Tg yr^{-1} . This over-estimation can be partly explained by a bias identified as a function of the airmass factor in the satellite products, respectively of $4.0 \times A_F - 34.0$ ppb and $13.7 \times A_F - 26.6$ ppb. Correcting this bias improves the agreement between TANSO-FTS and the surface at global and regional scales and the fit to surface measurements as well. However, given the modesty of the bias and the uncertainty of the linear regression, its need is not obvious. For SCIAMACHY, the bias correction has a slight impact on the inverted methane emissions and does not improve the agreement with the surface at global and regional scales. It has a larger impact on the fit to surface measurements in terms of mole fractions which is well improved when compared to the default configuration. However, for the bias-corrected configuration SC_1^1CAF , the mean-bias (23.4 ppb) and rms (26.4 ppb) are slightly improved by this inversion, when compared to the prior ones, but remain large. Such a correction is needed for SCIAMACHY albeit not sufficient to reconcile the posterior state with the reference.

When comparing configurations $\text{TA}_{0.075}^{1.5}$ with the other test configuration (e.g. $\text{TA}_{0.075}^{0.6}$), the fit to surface sites is similar since mean-bias and rms are very close. The two sets of tuning experiments indicate that the informations inferred from TANSO-FTS is robust in our system in terms of mole fractions and growth rates. IASI seems to be more sensitive to prior error assignment.

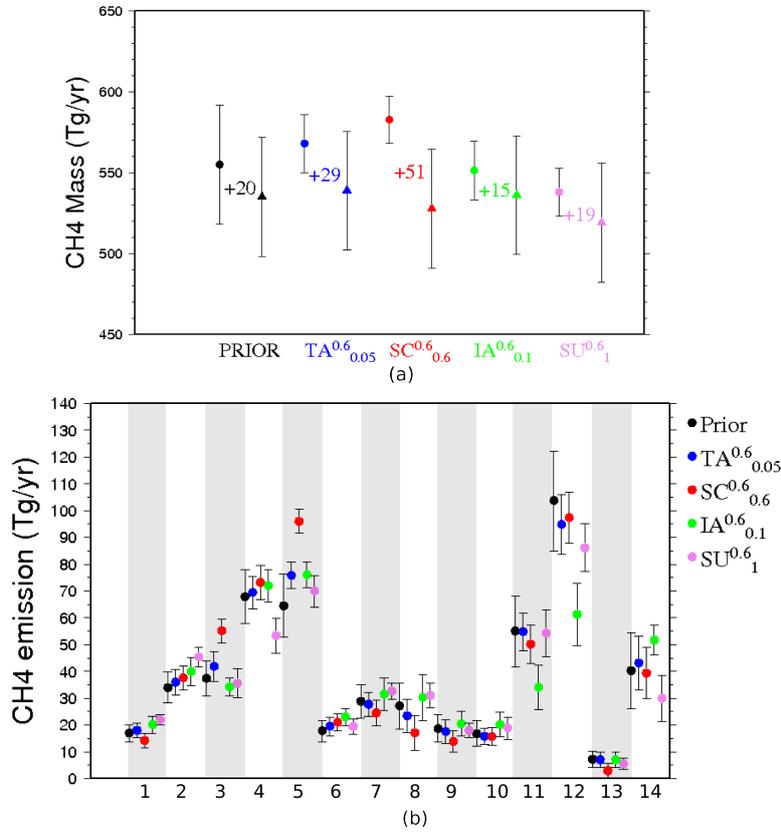


FIGURE 4.11 – Global emissions (circles) and losses (triangles) (a) and regional emissions (b) for the "optimal" configurations $TA_{0.05}^{0.6}$ (blue), $SC_{0.6}^{0.6}$ (red), $IA_{0.1}^{0.6}$ (green) and $SU_1^{0.6}$ (violet). Numbers describe the global growth rates Tg yr^{-1} inferred by the inversions. Error bars represent either the prior uncertainties ($\alpha = 0.6$ in black and $\alpha = 1.5$ in dark green), either the posterior uncertainties estimated with the Monte-Carlo study (see section 4.4.4.1)

Indeed, with a tuning specific to this satellite instrument, one gets a better agreement with independent surface sites. Based on the fit to surface measurements, the inversions $TA_{0.075}^{0.6}$ and $IA_{0.22}^{1.5}$ are taken as optimal configurations obtained from the tuning procedure. However, for all sensitivity tests using SCIAMACHY, the mean-bias and rms are worse than the prior ones meaning that the inversion process does not improve the agreement with the surface measurements for this satellite. It seems that SCIAMACHY cannot agree with the reference by simply adjusting mean prior and observation error variances. This points to a complicated structure of the retrieval errors, at least for the period studied, possibly linked to the progressive degradation of the instrument. Direct conclusions regarding SCIAMACHY for earlier time

periods cannot be drawn from our study that focuses on years 2009–2010, which is the only overlap period between SCIAMACHY and GOSAT.

For all observing systems, the largest emissions are located in region South American Tropical and may be explained by methane emissions from wetlands and from biomass burning further to the severe drought in Amazonia in 2010. Large emissions are inferred as well in region South Africa, which are probably also caused by biomass burning. IASI differs from the other two observing systems in some regions. An over-estimation of the emissions (when compared to the reference) in Indonesia compensates an under-estimation of the emissions in Asia, suggesting a misattribution of the emissions in these regions likely because of the large footprint of the mid-to-upper tropospheric column combined with a lack of retrievals during the monsoon period, i.e. between June and September. Another under-estimation of the emissions in region South American Tropical is seen as well also due to a lack of IASI retrievals over this region between November 2009 and March 2010. This does not allow inferring the high emissions found by TANSO-FTS and the surface data during the drought of 2010.

The three observing systems (TANSO-FTS, IASI and the surface sites) still show good consistency in terms of emissions, meaning we can trust the main information retrieved from them. However, in the Southern Hemisphere the fit is not improved for the sites optimized during the surface-based inversions. Interestingly, we found a similar problem when inverting CO emissions from the Measurements Of Pollution In The Troposphere (MOPITT) onboard NASA’s Terra satellite [Fortems-Cheiney et al., 2011]. These two results may be partly explained by the too small exchange time of this version of the LMDz transport model from the Northern Hemisphere to the Southern Hemisphere [Patra et al., 2011] which likely induces an artificial increase of the sources inferred in the North and an increase of the loss in the South to match the surface observations.

4.4.8 *Conclusions*

Using objective tuning methods for the error statistics, we show that one can get improved consistency between different observing systems of atmospheric methane. An exception is SCIAMACHY which seems to be particularly difficult to consistently exploit over the period 2009–2010. The tuned covariance matrix is more optimistic about the quality of the prior fluxes than our initial estimates for TANSO-FTS and the surface data whereas

Inversion	$ratio_o$	$ratio_b$	$ratio_a$	$ratio$
Surface	0.79	1.68	2.11	1.54
GOSAT	13.69	0.64	2.98	4.24
SCIAMACHY	5.00	1.82	1.91	4.60
IASI	4.41	0.69	4.26	2.12

TABLE 4.14 – Résultats des diagnostics de [Desroziers et al., 2005] appliqués aux quatre systèmes d’observation sous la forme $(\frac{\sigma_{diag}}{\sigma_{obs}})$. Les $ratio_o$, $ratio_b$, $ratio_a$ et $ratio$ évaluent respectivement les erreurs des observations, de l’a priori, de l’analyse et du système en général.

it is even more conservative for IASI. The observation error, initially set at around 8% for TANSO-FTS and SCIAMACHY and around 3% for IASI, is reduced by a multiplicative factor $\gamma = 0.075$ for TANSO-FTS and $\gamma = 0.22$ for IASI. The global TANSO-FTS, IASI and surface data budgets from the improved configurations are $565 \pm 21 \text{Tg yr}^{-1}$, 549 ± 36 and $538 \pm 15 \text{Tg yr}^{-1}$ for the period August 2009 – July 2010. To assess the current methane budget with TANSO-FTS, IASI and the surface sites, one can keep one or two of these observing systems out of the inversion for independent evaluation as we propose here. Alternatively, one can combine them together to better reduce uncertainties in the methane cycle.

4.4.9 Cas particulier : les erreurs de l’analyse

L’article précédent a laissé de côté un diagnostic important des erreurs de l’analyse. Les diagnostics des erreurs de l’analyse (calculés pour les inversions de base présentées en section 4.4.1.1 et répertoriés dans la table 4.14) permettent d’évaluer la cohérence statistique en sortie du système. Toutefois, le cadre imposé par ces diagnostics est très strict, notamment en ce qui concerne le caractère non biaisé des erreurs et l’absence de corrélations entre les erreurs de l’a priori et celles des observations. Notre étude sort du cadre de ces hypothèses.

Premièrement, la présence de biais est visible surtout lors du calcul des variances de l’analyse diagnostiquées par la méthode de [Desroziers et al., 2005]. Comme ces variances sont relativement faibles, on peut obtenir dans certains cas des valeurs négatives. Ce phénomène peut également mettre en évidence que le système n’a pas encore fini de converger à ce stade. En effet, la diminution des erreurs d’entrées a augmenté la valeur de la fonction de coût. Ainsi, pour une même réduction de la norme du gradient, le système n’en est pas au même stade de la convergence.

Deuxièmement, les diagnostics de [Desroziers et al., 2005] supposent que les erreurs de l'a priori et des observations ne sont pas corrélées. Cependant, le modèle de chimie-transport génère une telle corrélation. Il en résulte une possible sous-estimation des variances diagnostiquées.

4.5 Conclusions

Ces séries de tests nous ont permis de définir les configurations optimales des statistiques des erreurs permettant d'améliorer la cohérence entre les trois instruments satellitaires et avec les observations des stations de surface en termes d'émissions annuelles de méthane. Ils nous ont également permis d'évaluer les produits satellitaires indépendamment les uns des autres. En effet, les émissions et concentrations analysées de méthane trop différentes des autres systèmes d'observations suggèrent que ce produit satellitaire est inexploitable pour des années récentes à cause de la dégradation progressive de l'instrument. D'autres part, ils nous ont permis de mettre en évidence la robustesse des émissions a posteriori de méthane pour l'instrument GOSAT, gage de la qualité du produit satellitaire. De plus, il a été montré que GOSAT peut être utilisé seul et qu'il serait de qualité comparable au réseau de surface. Quant à l'instrument IASI, on a également réussi à améliorer sa cohérence avec les stations de surface, ce qui est un résultat fort car l'instrument est insensible à la surface. De ce fait, on peut envisager la combinaison de IASI et des mesures de surface pour améliorer la contrainte sur l'ensemble de l'atmosphère et ainsi réduire davantage les incertitudes sur les flux de méthane.

APPLICATION 2

COMPARAISON DE SYSTÈMES D'OBSERVATIONS
POUR L'ESTIMATION DE L'INTERANNUALITÉ DES
FLUX DE CH₄

Sommaire

5.1	Introduction	102
5.2	Méthodes	103
5.2.1	Relations avec des paramètres climatiques	103
5.2.2	Capacité de détection des anomalies de CH ₄	104
5.2.3	Résolutions spatio-temporelles	105
5.3	Corrélations	106
5.3.1	Corrélations des concentrations de CH ₄	106
5.3.2	Corrélations des flux de CH ₄	108
5.3.3	Corrélations des anomalies de CH ₄	110
5.4	Article GRL	112
5.4.1	Présentation	113
5.4.2	<i>Abstract</i>	118
5.4.3	<i>Introduction</i>	119
5.4.4	<i>Method</i>	120
5.4.5	<i>Results</i>	123
5.4.6	<i>Discussion</i>	125
5.4.7	Corrélations non linéaires	127
5.5	Conclusions	128

5.1 Introduction

Dans le chapitre précédent, on a comparé trois instruments satellitaires (TANSO-FTS, SCIAMACHY et IASI) et le réseau de surface en assimilant leurs observations dans le système inverse PYVAR-LMDz-SACS. Afin d'améliorer la cohérence statistique entre les différents systèmes d'observations, on a réalisé deux tests de sensibilité dont un réglage des statistique des erreurs basé sur la méthode objective de [Desroziers et al., 2005] et une correction de biais des produits satellitaires TANSO-FTS et SCIAMACHY.

Cette étude a permis d'obtenir une bonne cohérence en termes de flux annuels de méthane entre trois systèmes d'observations : TANSO-FTS, IASI et le réseau de surface. On utilise maintenant les résultats de l'étude précédente comme point de départ pour cette deuxième partie. Comme les émissions annuelles de méthane obtenues avec TANSO-FTS sont de qualité comparable à celles obtenues avec le réseau de surface (en se basant sur une comparaison de biais et de moyennes quadratiques), le produit TANSO-FTS est utilisé ici seul. En revanche, même si IASI fournit des bilans annuels de méthane statistiquement cohérents avec TANSO-FTS et la surface, on préfère ici combiner ses observations tropicales au réseau de surface pour ajouter des contraintes sur le reste du globe.

On utilise les configurations optimales du chapitre précédent, c'est-à-dire celles qui possèdent à la fois une bonne cohérence statistique au sens des diagnostics de [Desroziers et al., 2005] et un bon accord avec les stations indépendantes de surface. Pour TANSO-FTS, on utilise les configurations des erreurs de l'a priori et des observations de l'inversion $TA_{0,6}^{0,075}$, pour IASI celles de $IA_{0,6}^{0,075}$ et pour la surface celles de $SU_1^{0,6}$.

On réalise ainsi trois inversions sur des périodes différentes (limitées par les séries temporelles des observations) et se terminant toutes en décembre 2011. La première inversion utilise les données de TANSO-FTS sur une période de deux ans (on l'appelle TANSO), la deuxième combine les données de IASI et de la surface sur une période de quatre ans (on l'appelle COMB) et la dernière utilise les données du réseau de surface sur une période de douze ans (on l'appelle SURF).

Dans cette partie, on étend l'étude du chapitre précédent faite sur les flux annuels de CH_4 à la variabilité interannuelle des flux de CH_4 estimés avec ces trois systèmes d'observations. On cherche ici non seulement à mettre en évidence la cohérence entre les systèmes d'observation en termes d'interan-

nualité du CH_4 mais aussi à relier l'interannualité des flux de CH_4 à deux variables climatiques : la température et l'humidité du sol. Ce choix s'inspire de l'étude de [Bloom et al., 2010] qui estime les corrélations entre les observations de concentrations atmosphériques de méthane de SCIAMACHY et la température ainsi que la profondeur de couche humide. Cette étude antérieure à la nôtre repose sur l'hypothèse que la variabilité interannuelle de CH_4 est dominée par les émissions des zones humides (voir chapitre 1). On cherche ici à l'étendre en l'appliquant non seulement aux concentrations atmosphériques, mais aussi aux flux inversés et aux anomalies de méthane correspondantes. On ajoute également une dimension statistique d'une part en tenant compte des incertitudes qui affectent les corrélations et d'autre part en réalisant un test statistique qui vise à évaluer la capacité des différents systèmes d'observation à détecter les anomalies de CH_4 . Cette étude est réalisée à diverses échelles spatio-temporelles afin d'évaluer l'impact de la résolution sur les résultats.

5.2 Méthodes

5.2.1 Relations avec des paramètres climatiques

Dans un premier temps, on cherche à évaluer la relation des anomalies (c'est-à-dire l'écart à la moyenne pluri-annuelle) de CH_4 avec d'une part la température et d'autre part l'humidité du sol. Ceci suppose que la variabilité interannuelle du CH_4 est dominée par les émissions des zones humides et que l'interannualité des flux anthropiques joue ici un rôle négligeable. Les figures 5.2 et 5.3 présentent respectivement les principaux bassins du monde et les feux enregistrés par le satellite MODIS. Les jeux de données des variables climatiques ont été récupérés sur le site du CEPMMT : la température de l'air à 2 m et l'humidité du sol jusqu'à 2,89 m de profondeur à une résolution horizontale de $1^\circ \times 1^\circ$ puis réinterpolés à la résolution de la grille de notre modèle ($3,75^\circ \times 2,5^\circ$).

Dans un premier temps, on teste la corrélation linéaire des concentrations, des flux ou des anomalies de méthane avec la température, l'humidité du sol ou leurs anomalies respectives. Les résultats sont présentés sous forme de cartes pour les trois systèmes d'observations. Toutefois, étant donné les périodes d'étude limitées des instruments satellitaires (2 ans pour TANSO-FTS et 4 ans pour IASI), l'étude de l'impact de la résolution spatio-temporelle des corrélations a été réalisée uniquement pour l'inversion de surface fournissant une série temporelle de 12 ans. Afin de vérifier la significativité des

corrélations, c'est-à-dire de s'assurer que la corrélation est suffisante pour le nombre d'éléments pris en compte (degré de liberté), on a utilisé les tables de Bravais-Pearson et fixé un seuil de 5%, assurant que les corrélations sont significatives moyennant une erreur de 5%.

D'autre part, conformément à l'étude de [Bloom et al., 2010] qui avait trouvé une corrélation non linéaire entre les concentrations de méthane et la température, on a également testé la possibilité d'existence d'une corrélation non linéaire quelconque entre les anomalies de flux de méthane et de température ou d'humidité du sol. On présente donc également les résultats obtenus avec le facteur de corrélations de Spearman ainsi que le test de significativité à 5% utilisant les tables de Spearman.

5.2.2 Capacité de détection des anomalies de CH₄

Afin d'étayer le test précédent, on réalise un test statistique basé sur l'étude du rapport signal à bruit des anomalies de CH₄ afin d'évaluer la capacité des différents systèmes d'observations à détecter l'interannualité des flux de CH₄. Afin de comparer les systèmes d'observations entre eux, on utilise des anomalies de référence provenant de l'inversion combinant l'instrument IASI et le réseau de surface (COMB). Ces anomalies sont définies comme l'écart à la moyenne pluriannuelle des émissions de CH₄ calculée sur toute la période d'inversion (4 ans).

Les incertitudes sur l'interannualité des flux de CH₄ peuvent être déduites à partir des incertitudes sur les flux annuels de CH₄ à condition que les deux années consécutives soient complètement décorréliées. Dans ce cas, les incertitudes sur la différence entre deux flux annuels sont $\sqrt{2}$ fois plus grandes que les incertitudes sur l'annuel. En revanche, si une corrélation existe entre ces deux années, les incertitudes sur l'interannualité des flux sont plus difficiles à quantifier. Elles peuvent être soit très petites (si la corrélation est positive), soit jusqu'à deux fois plus grandes que les incertitudes des flux annuels (si la corrélation est négative). Dans le cas où la corrélation entre les deux années est quelconque, les incertitudes de l'interannualité des flux sont comprises entre ces deux bornes, ce qui laisse un large intervalle d'incertitude.

Les incertitudes de l'interannualité des flux de CH₄ sont estimées de la même façon que celles des flux annuels de CH₄ avec la méthode de Monte-Carlo comme présenté au chapitre 2. On utilise cette méthode pour les trois systèmes d'observation réalisée sur des inversions de 2 ans typiquement 2010

et 2011. On suppose que la différence entre ces deux années est représentative en général de l'interannualité des flux de CH_4 . On calcule les incertitudes des anomalies de CH_4 à partir de la différence des flux de CH_4 entre 2010 et 2011 des 10 réalisations perturbées par la méthode de Monte-Carlo.

5.2.3 Résolutions spatio-temporelles

Les anomalies de méthane, leurs incertitudes et les corrélations sont évaluées à différentes échelles spatio-temporelles. L'échelle spatio-temporelle la plus fine est celle du modèle, c'est-à-dire le point de grille ($3,75^\circ \times 2,5^\circ$) et la semaine. Ensuite, ces valeurs sont agrégées à différentes échelles temporelles (le mois, 2 mois, 3 mois, 4 mois, 6 mois et l'année) et à différentes échelles spatiales (régions sous-continentales, bandes de latitudes, globe). Les régions sont inspirées du projet TRANSCOM ([Gurney et al., 2002]) mais ne prennent en compte que les terres (voir figure 5.1). À une échelle plus grossière, le globe est découpé en bandes de latitudes tous les 30° comparable à ([Bergamaschi et al., 2013]). Chaque hémisphère est donc découpé en trois bandes : une pour les latitudes boréales (BorN et BorS), une pour les moyennes latitudes (MidN et MidS) et une pour les Tropiques (TropN et TropS).

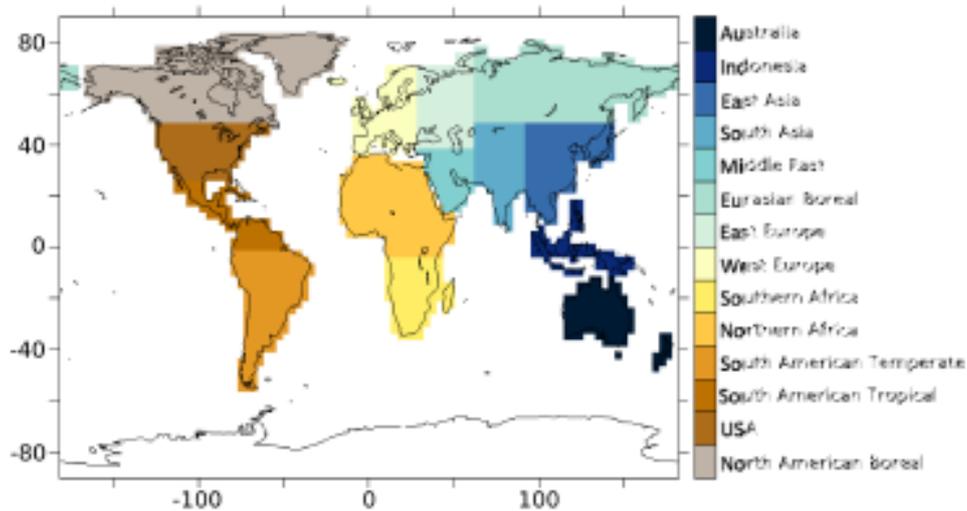


FIGURE 5.1 – Régions de référence.

5.3 Relations avec la température et l'humidité du sol

On cherche à mettre en évidence la relation physique qui lie les anomalies de CH_4 aux anomalies de température et d'humidité du sol. Par analogie avec l'étude de [Bloom et al., 2010], on étudie dans un premier temps les corrélations entre les observations satellitaires de concentrations atmosphériques de CH_4 et la température d'une part et l'humidité du sol d'autre part. Puis, même si les incertitudes des flux a posteriori de CH_4 sont importantes, on cherche à mettre en évidence la capacité de détection des anomalies de CH_4 par les différents systèmes d'observation.

Pour ce faire, on teste d'abord les corrélations supposées linéaires à l'aide du facteur de Bravais-Pearson entre les concentrations atmosphériques de TANSO-FTS (2 ans) d'une part et de IASI (4 ans) d'autre part avec la température et l'humidité du sol à la résolution du modèle. Puis, on teste la conservation et l'amplification de ces corrélations vis à vis des flux de CH_4 par l'inversion. Les résultats du deuxième article sont présentés en section 5.4.

5.3.1 Corrélations des concentrations de CH_4

Sur les figures 5.5 et 5.6, on représente les corrélations des observations de concentrations atmosphériques de CH_4 de TANSO-FTS et IASI avec d'une part la température (à gauche) et d'autre part l'humidité du sol (à droite) à la résolution spatio-temporelle du modèle. Pour chaque point de grille, on teste la corrélation linéaire existant entre les deux séries temporelles impliquées. Par ailleurs, ces séries temporelles sont limitées par les observations satellitaires de concentrations de CH_4 et comptent au maximum 96 éléments pour TANSO-FTS et 192 pour IASI. Comme la distribution des observations satellitaires varie au cours de l'année, il n'y a sur ces figures aucun critère garantissant la significativité des corrélations en fonction du degré de liberté, c'est-à-dire du nombre d'éléments que compte la série temporelle du point de grille pris en compte. [Bloom et al., 2010] utilise une version des observations de SCIAMACHY antérieure à la nôtre. D'autre part, ils exploitent des mesures de la température de l'instrument AMSU et des mesures de profondeur de la couche d'eau provenant de GRACE alors que nous utilisons des mesures d'humidité du sol. De plus, la résolution temporelle du modèle est différente. Toutefois, malgré ces différences, on observe des corrélations

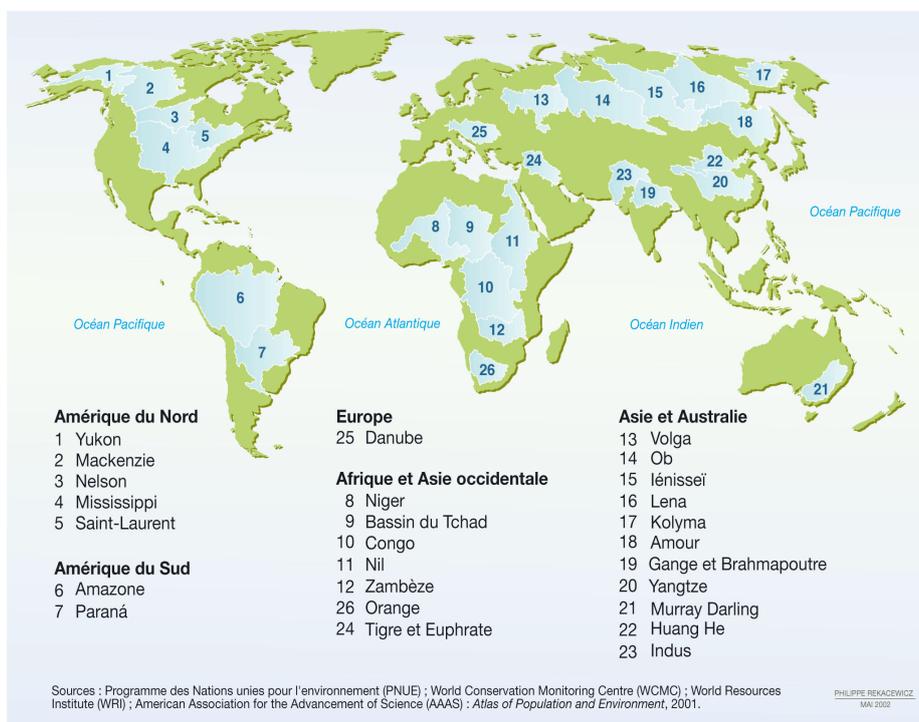


FIGURE 5.2 – Carte des principaux bassins du monde (sources : Programme des Nations Unies pour l'environnement, World Conservation Monitoring Centre, World Resources Institute, American Association for the Advancement of Science).

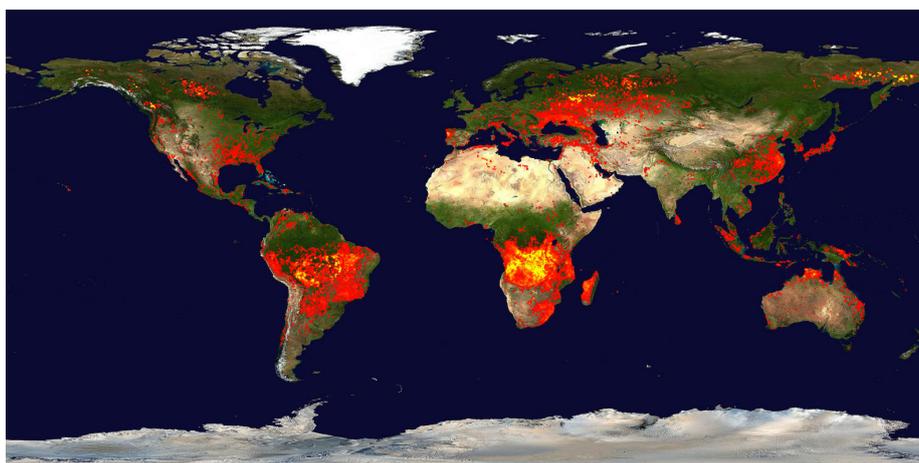


FIGURE 5.3 – Carte des feux observés par MODIS entre le 11 et le 20 février 2010 (source : Jacques Descloitres- NASA).

similaires à celles de [Bloom et al., 2010]. De plus, il est important de noter une bonne cohérence entre les instruments satellitaires.

On observe une corrélation importante entre les observations des deux instruments satellitaires avec la température en Afrique du Nord, en Asie de l'Est et en Amérique du Sud. La corrélation observée avec l'humidité du sol est à dominante négative surtout en Afrique du Nord, au Moyen-Orient et en Europe de l'Est. On observe également quelques corrélations positives notamment en Afrique centrale, en Asie de l'Est et en Amérique du Sud tropicale.

En comparant la carte de corrélations entre les concentrations de CH_4 et l'humidité du sol avec la carte des principaux bassins du monde (voir figure 5.2), on arrive à mettre en évidence une relation physiquement plausible pour les bassins du Danube, du Tigre et de l'Euphrate, du Niger, du Congo et du Gange. Cependant, la corrélation observée en Amérique du Sud tropicale ne correspond à aucun bassin figurant sur cette carte. Ce test n'est ici pas suffisant pour conclure quant au caractère physique des corrélations mises en évidence pour cette région.

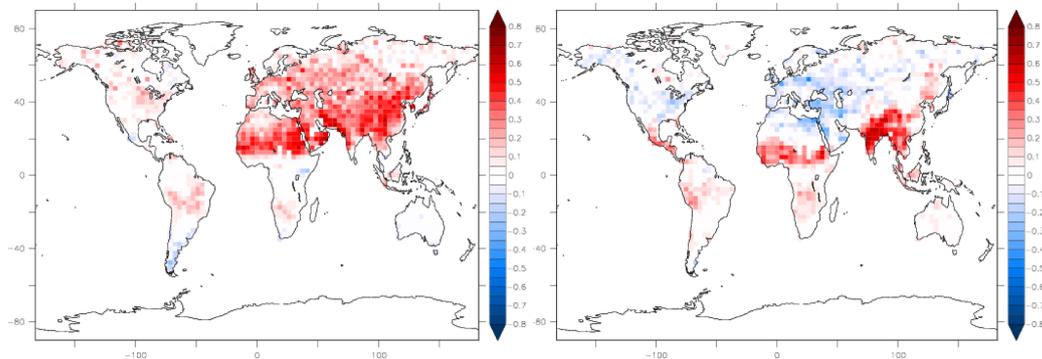


FIGURE 5.4 – Corrélations des observations de concentrations de CH_4 de SCIAMACHY avec la température (à gauche) et avec l'humidité du sol (à droite).

5.3.2 Corrélations des flux de CH_4

Précédemment, on a montré que les observations satellitaires de concentrations atmosphériques de CH_4 contiennent un signal lié à la température et à l'humidité du sol. On cherche maintenant à vérifier si ce signal est retrouvé

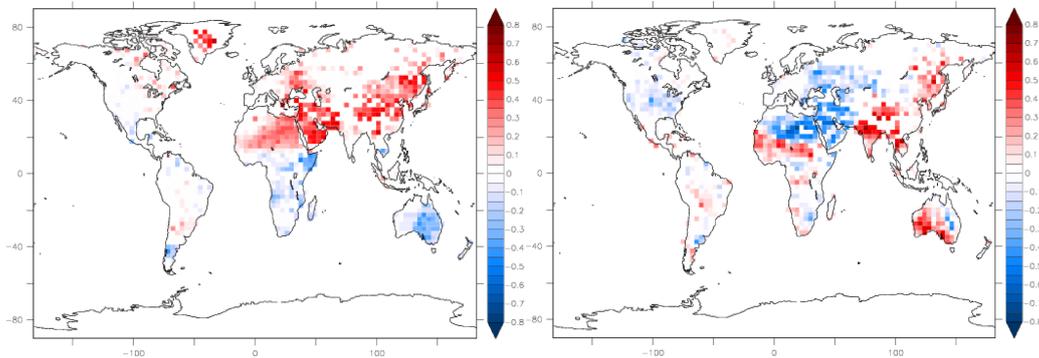


FIGURE 5.5 – Corrélations des observations de concentrations de CH_4 de GOSAT avec la température (à gauche) et avec l’humidité du sol (à droite).

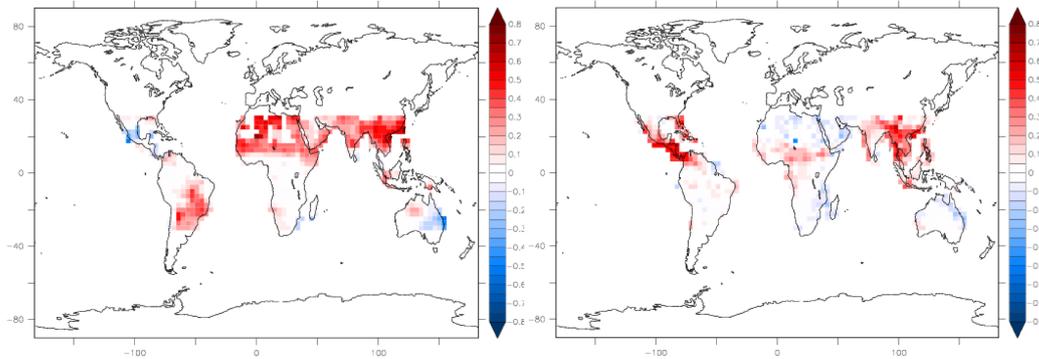


FIGURE 5.6 – Corrélations des observations de concentrations de CH_4 de IASI avec la température (à gauche) et avec l’humidité du sol (à droite).

dans les flux inversés de CH_4 . Pour ce faire, on présente les facteurs de corrélations linéaires entre les anomalies de CH_4 et la température et l’humidité du sol pour l’inversion SURF sur la figure 5.7, pour l’inversion COMB sur la figure 5.8 et pour l’inversion TANSO sur la figure 5.9. Afin d’identifier les corrélations induites par les observations elles-mêmes, on présente également les corrélations des flux a priori de CH_4 avec la température et l’humidité du sol pour chaque système d’observation.

À l’inverse des corrélations calculées à partir des séries temporelles satellitaires souvent lacunaires, les corrélations des flux de CH_4 sont toujours calculées à partir du même nombre d’éléments pour n’importe quel pixel du globe. De ce fait, notre critère de significativité est invariant pour tout le globe (même si l’erreur varie).

Pour les trois systèmes d'observation, de fortes corrélations entre les flux a priori de CH_4 et la température sont identifiées notamment dans les régions boréales (0.7), en Asie (0.8), en Amérique du Sud (0.5) ainsi qu'en Australie (0.5). À partir des corrélations de la température avec les flux a priori de CH_4 , on identifie les régions pour lesquelles les corrélations des flux a posteriori de CH_4 sont induites uniquement par les observations : les USA, l'Afrique du Nord, l'Europe de l'Est et l'Asie.

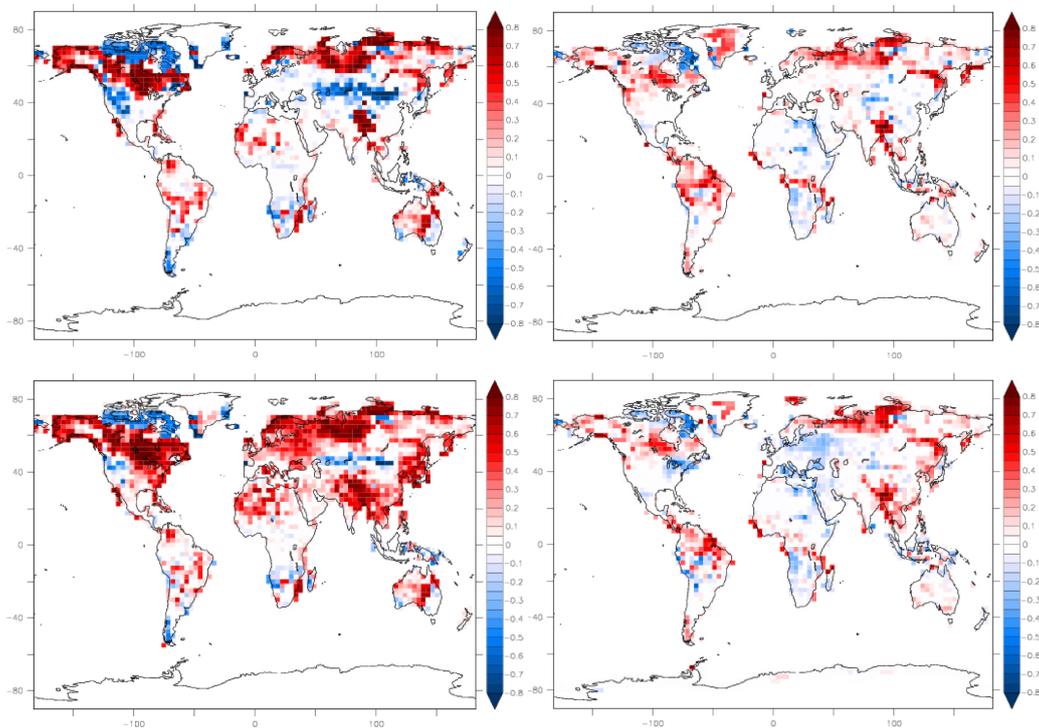


FIGURE 5.7 – Corrélations des flux a priori (en haut) et a posteriori (en bas) de CH_4 de l'inversion SURF avec la température (à gauche) et avec l'humidité du sol (à droite).

5.3.3 Corrélations des anomalies de CH_4

Les corrélations linéaires entre les anomalies de flux de CH_4 et les anomalies de température ou d'humidité du sol présentées sur les figures 5.10, 5.11 et 5.12 (respectivement pour les inversions SURF, COMB et TANSO) sont assez faibles à l'échelle du point de grille et de la semaine. Même si des corrélations semblent plus fortes pour certains point de grille surtout en ce

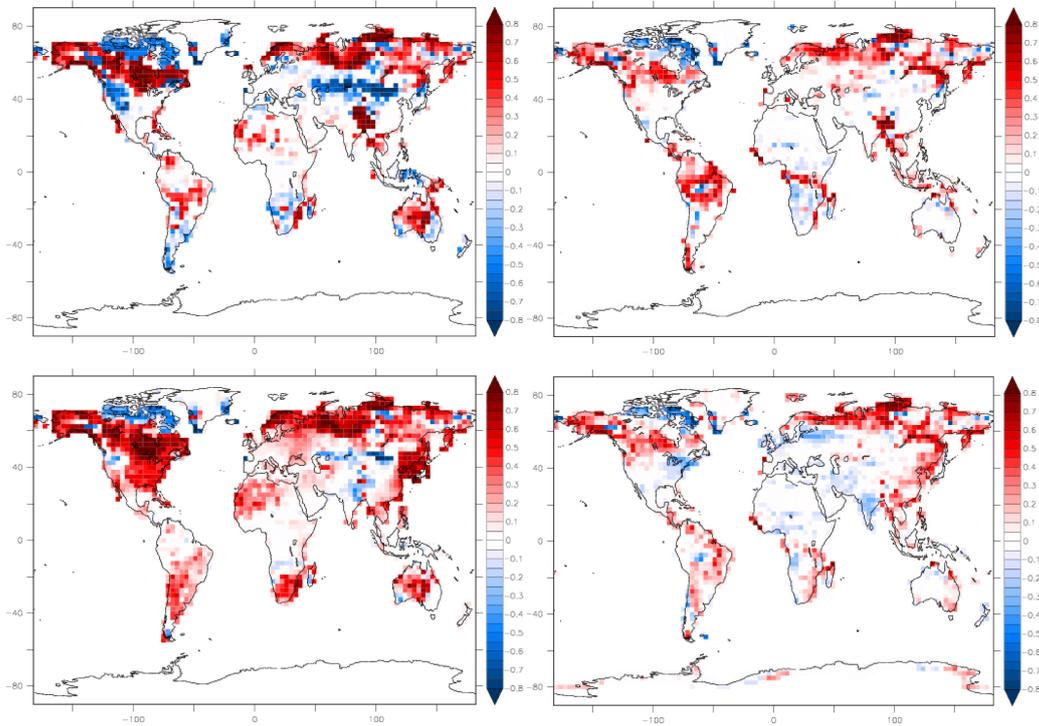


FIGURE 5.8 – Corrélations des flux a priori (en haut) et a posteriori (en bas) de CH_4 de l'inversion COMB avec la température (à gauche) et avec l'humidité du sol (à droite).

qui concerne l'humidité du sol, aucune tendance régionale n'est observée et les résultats peuvent être obtenus de façon aléatoire.

Les corrélations entre les anomalies de CH_4 et de température et d'humidité du sol sont relativement faibles à l'échelle spatio-temporelle du modèle. De plus, la distribution spatiale des maximums locaux est hétérogène et ne permet pas de distinguer de réelles tendances. De ce fait, rien ne permet d'affirmer que ces corrélations ne sont d'ailleurs pas fortuites.

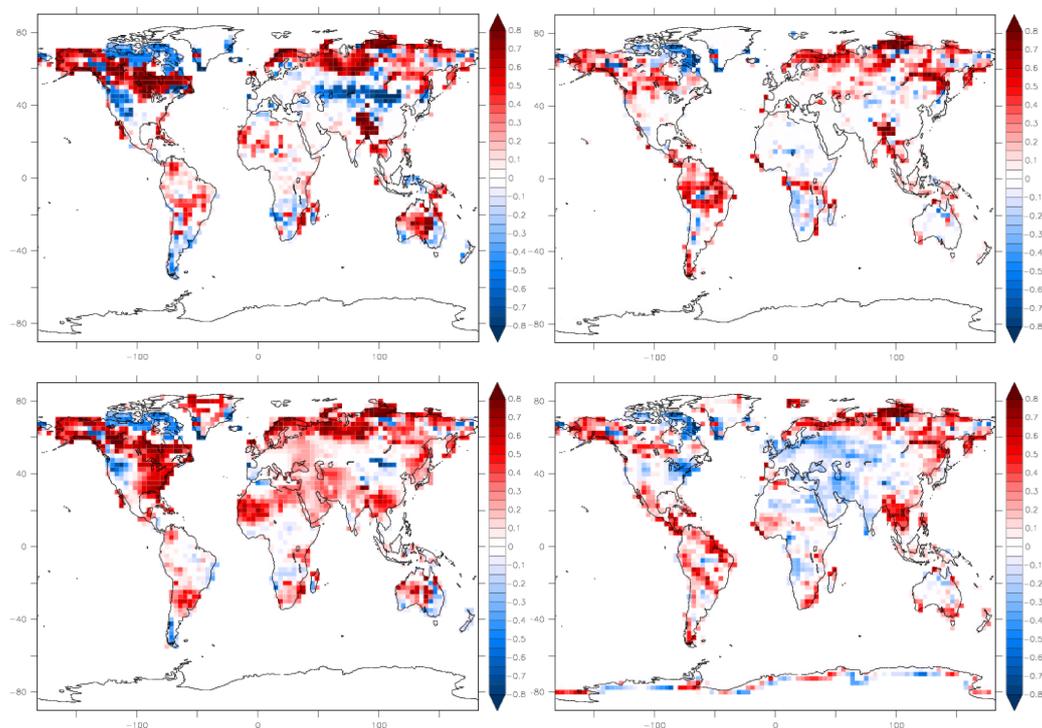


FIGURE 5.9 – Corrélations des flux a priori (en haut) et a posteriori (en bas) de CH_4 de l'inversion TANSO avec la température (à gauche) et avec l'humidité du sol (à droite).

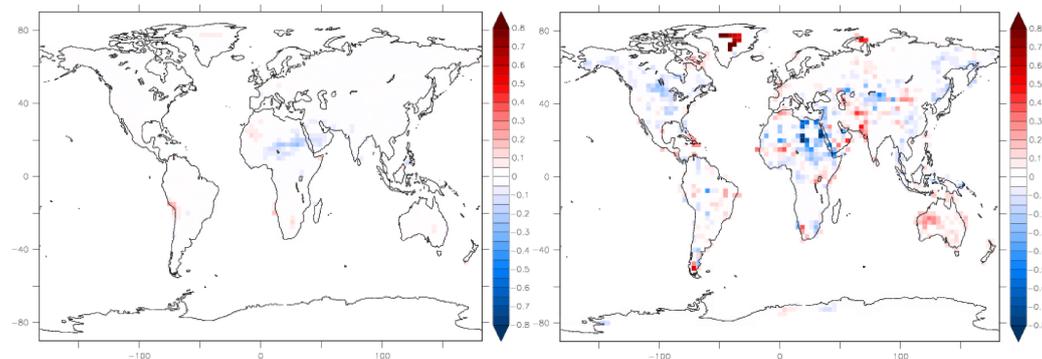


FIGURE 5.10 – Corrélations des anomalies de CH_4 de SURF avec la température (à gauche) et avec l'humidité du sol (à droite).

5.4 *Detecting anomalies in the global methane budget : a comparison between three observing systems*

Cette section rassemble un article en préparation pour Geophysical Research Letters (GRL).

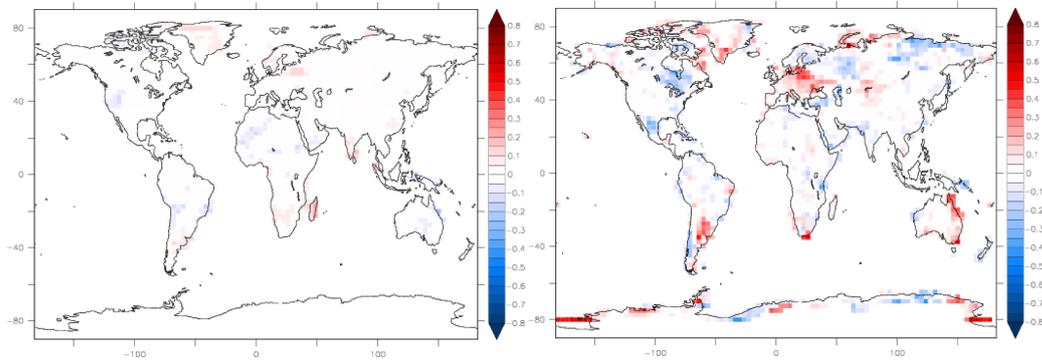


FIGURE 5.11 – Corrélations des anomalies de CH_4 de COMB avec la température (à gauche) et avec l’humidité du sol (à droite).

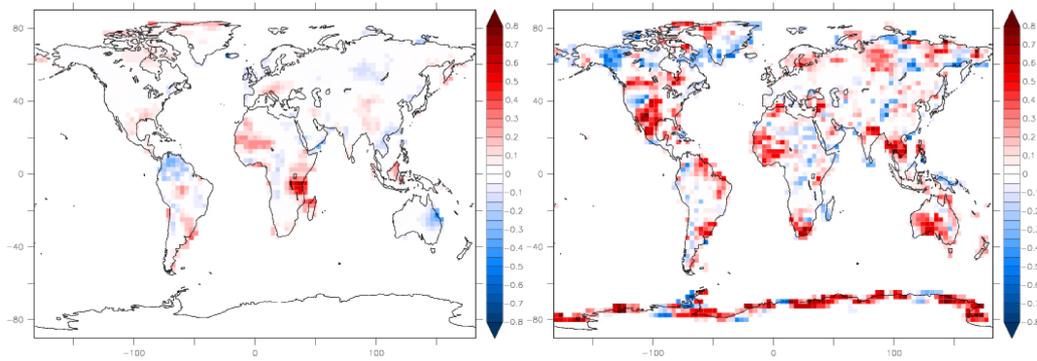


FIGURE 5.12 – Corrélations des anomalies de CH_4 de TANSO avec la température (à gauche) et avec l’humidité du sol (à droite).

5.4.1 Présentation

Précédemment, on a observé des corrélations en général faibles entre les anomalies de CH_4 et les anomalies de température ou d’humidité du sol sauf pour quelques points de grille isolés. De ce fait, à une échelle spatio-temporelle très fine, le signal observé sur les figures 5.10, 5.11 et 5.12 peut être dû à un bruit très important qui masque les anomalies de CH_4 expliquant ainsi pourquoi aucune tendance n’est observée.

On teste ici plusieurs résolutions spatio-temporelles (voir section 5.2.3) afin d’évaluer à partir de quelle agrégation les anomalies deviennent plus grandes que le bruit. Ainsi, on étudie d’une part les incertitudes liées aux anomalies

afin d'évaluer la capacité des trois systèmes d'observations à détecter les anomalies et d'autre part l'effet d'une agrégation spatiale ou temporelle sur les corrélations linéaires entre les anomalies de CH₄ et celles de température ou d'humidité du sol.

5.4.1.1 Capacité de détection des anomalies de CH₄

Dans cette partie, on compare les anomalies d'une inversion de référence aux incertitudes sur l'interannualité des flux de CH₄ de trois systèmes d'observations : le réseau de surface (SURF), IASI (IASI) et TANSO-FTS (TANSO). Etant donné la densité d'information de IASI dans les Tropiques complétée par la précision des observations des stations de surface sur le reste du globe, l'inversion COMB est prise comme référence afin d'évaluer la capacité des trois systèmes d'observations à détecter les anomalies de méthane, ce qui revient à déterminer les échelles spatio-temporelles pour lesquelles l'amplitude des anomalies dépasse les incertitudes de celles-ci ($\frac{\text{signal}}{\text{noise}} \geq 1$). De plus, l'information apportée par IASI dans la moyenne et haute atmosphère complète l'information des stations de surface et fournit une meilleure contrainte sur toutes les couches de l'atmosphère que l'utilisation du réseau de surface seul.

Pour les trois systèmes d'observations, on compare les séries temporelles des anomalies de flux de CH₄ de l'inversion COMB aux incertitudes de l'interannualité des flux de CH₄ évalués avec la méthode de Monte-Carlo (voir section 5.2.2). Les figures 5.13, 5.14 et 5.15 représentent le pourcentage d'éléments de la série temporelle d'anomalies pour lequel le signal dépasse les incertitudes.

Aux échelles mondiale et annuelle, les trois systèmes d'observation SURF, IASI et TANSO détectent toutes les anomalies des flux de CH₄. À l'échelle annuelle et des bandes de latitudes, SURF, IASI et TANSO détectent 50% des anomalies dans les Tropiques Nord, c'est-à-dire une anomalie tous les deux ans. IASI améliore la détection des anomalies de CH₄ dans l'hémisphère Sud notamment dans les Tropiques et les moyennes latitudes alors que TANSO améliore la détection dans les moyennes latitudes de l'hémisphère Nord (75% pour la bande MidN). Aux échelles annuelle et régionale, SURF et TANSO détectent la moitié des anomalies en Afrique du Sud tandis que SURF seul détecte également 50% des anomalies en Asie de l'Est et TANSO seul détecte également 50% des anomalies en Afrique du Nord et en Australie ainsi que 75% des anomalies en Amérique du Sud tempérée. On remarque également que

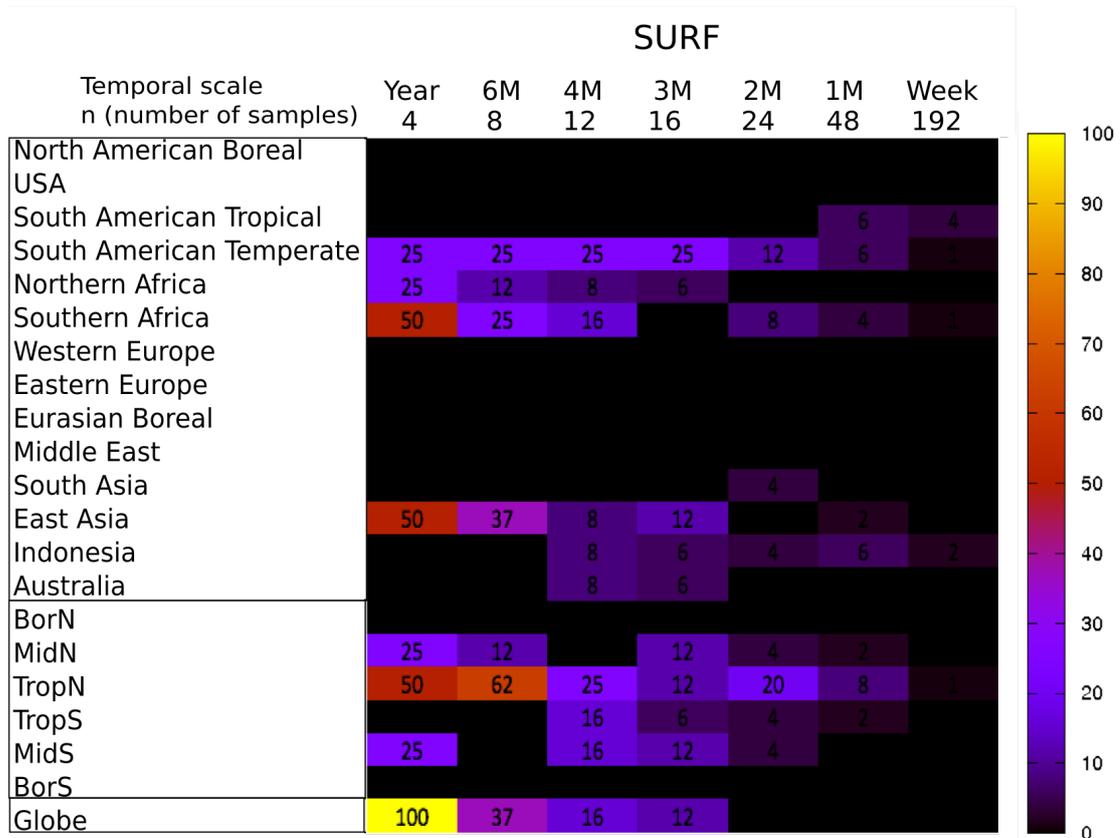


FIGURE 5.13 – Capacité de détection des anomalies de CH₄ par le réseau de surface.

la détection des anomalies diminue rapidement avec la longueur d'agrégation temporelle.

En choisissant l'inversion COMB comme référence, il est possible que l'on surestime la détectabilité des stations de surface et que l'on sous-estime celle de GOSAT.

5.4.1.2 Sensibilité des corrélations à la résolution spatio-temporelle

Dans cette partie, on complète le test de détection précédent en testant la corrélation linéaire entre les anomalies de CH₄ et de température et d'humidité du sol à des échelles de temps agrégées aux échelles spatiale et temporelle. De ce fait, on étudie la sensibilité des corrélations à de telles agrégations. Aux échelles de temps longues typiquement annuelle, le nombre d'anomalies pour les inversions GOSAT (2) et COMB (4) ne sont pas suffisantes pour le calcul

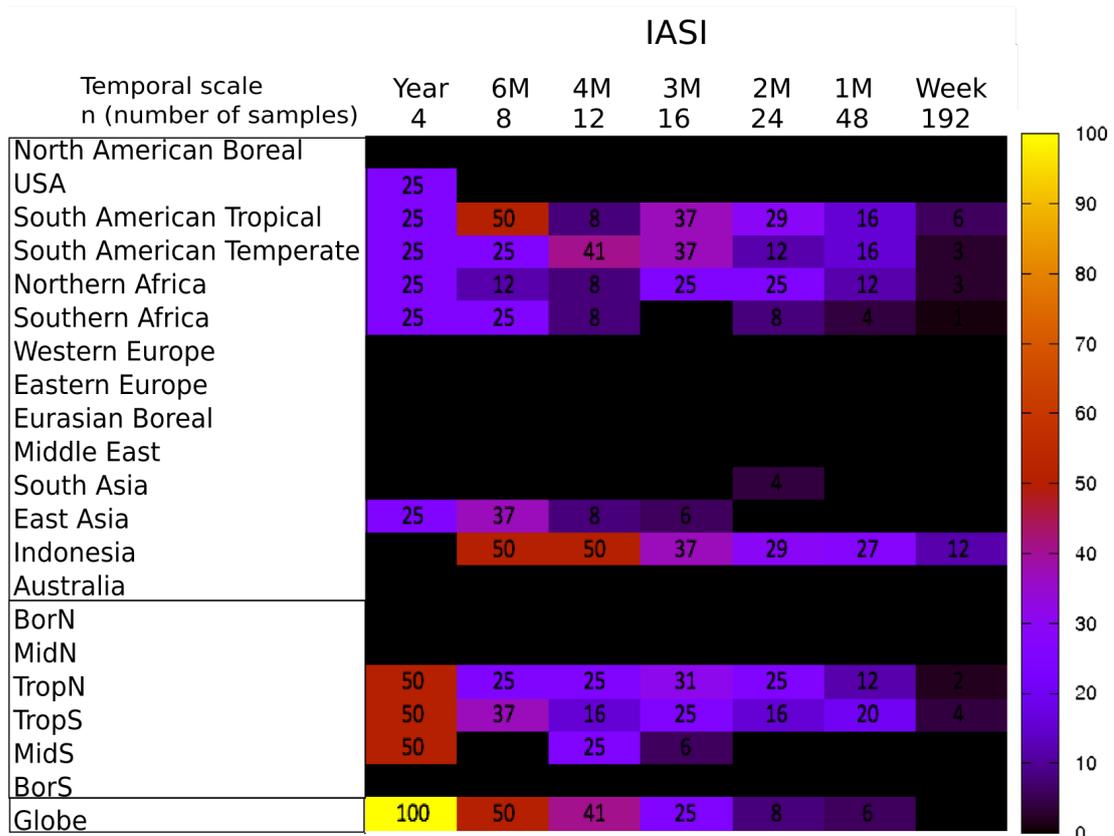


FIGURE 5.14 – Capacité de détection des anomalies de CH₄ par IASI.

des corrélations. En effet, les instruments satellitaires nouvelle génération ne disposent pas de séries temporelles de mesures suffisamment longue et doivent être ici complétés par le réseau de surface. Les anomalies de CH₄ présentées dans cette partie proviennent de l'inversion de surface (SURF) de 12 ans.

La figure 5.16 de l'article présente les corrélations linéaires des anomalies de flux de CH₄ avec d'une part la température (coin inférieur droit des cellules) et d'autre part l'humidité du sol (coin supérieur gauche des cellules). Tout comme la détection des anomalies, les corrélations diminuent rapidement avec la diminution de la longueur d'agrégation temporelle.

Les corrélations les plus importantes sont observées aux échelles annuelle et semi-annuelle. À l'échelle annuelle, la corrélation des anomalies de CH₄ avec l'humidité du sol est significative et négative (-0.6) pour le globe. Les corrélations sont également significatives et négatives pour la bande de latitude

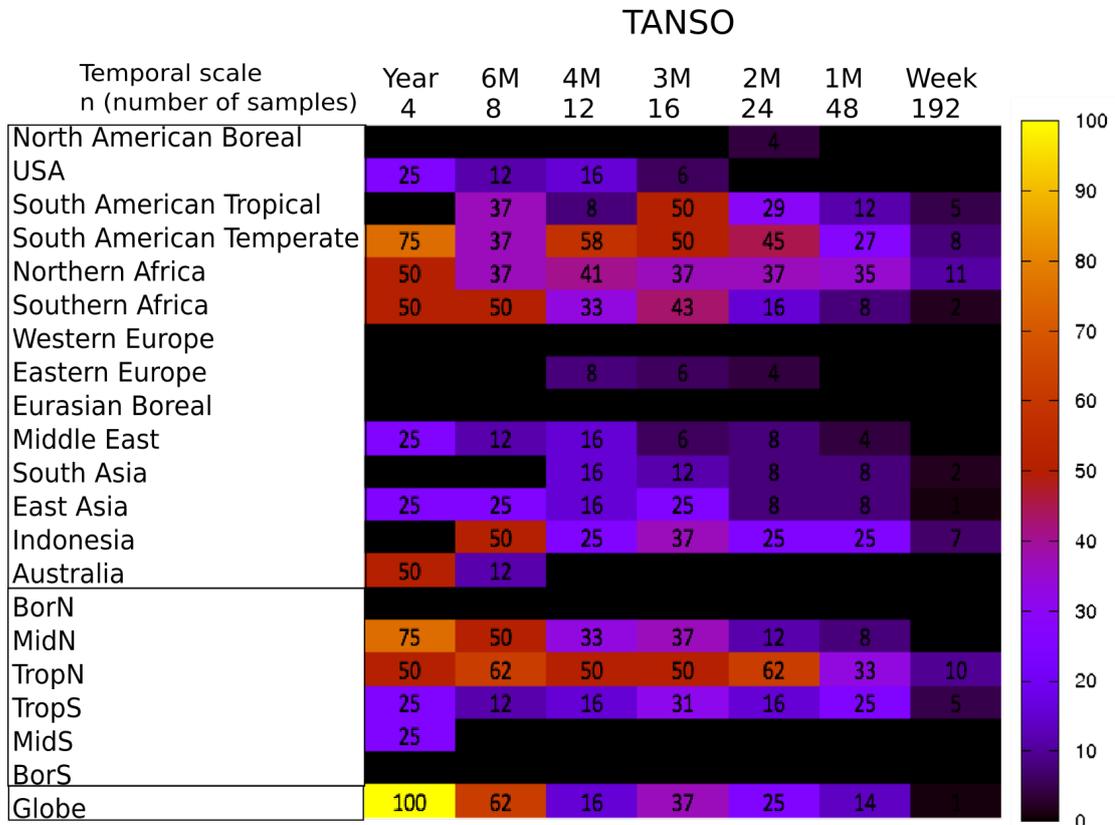


FIGURE 5.15 – Capacité de détection des anomalies de CH₄ par TANSO-FTS.

MidN ainsi que pour les régions Asie de l’Est, Europe de l’Est et Afrique du Nord. On observe également une corrélation positive pour la région Amérique du Nord Boréale. Les corrélations des anomalies de CH₄ avec les anomalies de température sont plus faibles. On observe une corrélation positive importante pour la bande de latitude MidS (0.4). Ce résultat semble fortement induit par la région Australie.

On s’attendrait à ce que les anomalies de CH₄ soient plutôt liées aux anomalies de température. Cependant, il semble que les corrélations soient plus importantes avec l’humidité du sol. Ceci n’est pas un indicateur de l’absence de relation entre les flux de CH₄ et la température mais seulement que la relation linéaire testée ici ne permet pas de capturer ce signal. Il est d’ailleurs possible que la relation entre les flux de CH₄ et la température soit plus complexe. On teste une corrélation non linéaire en section 5.4.7.

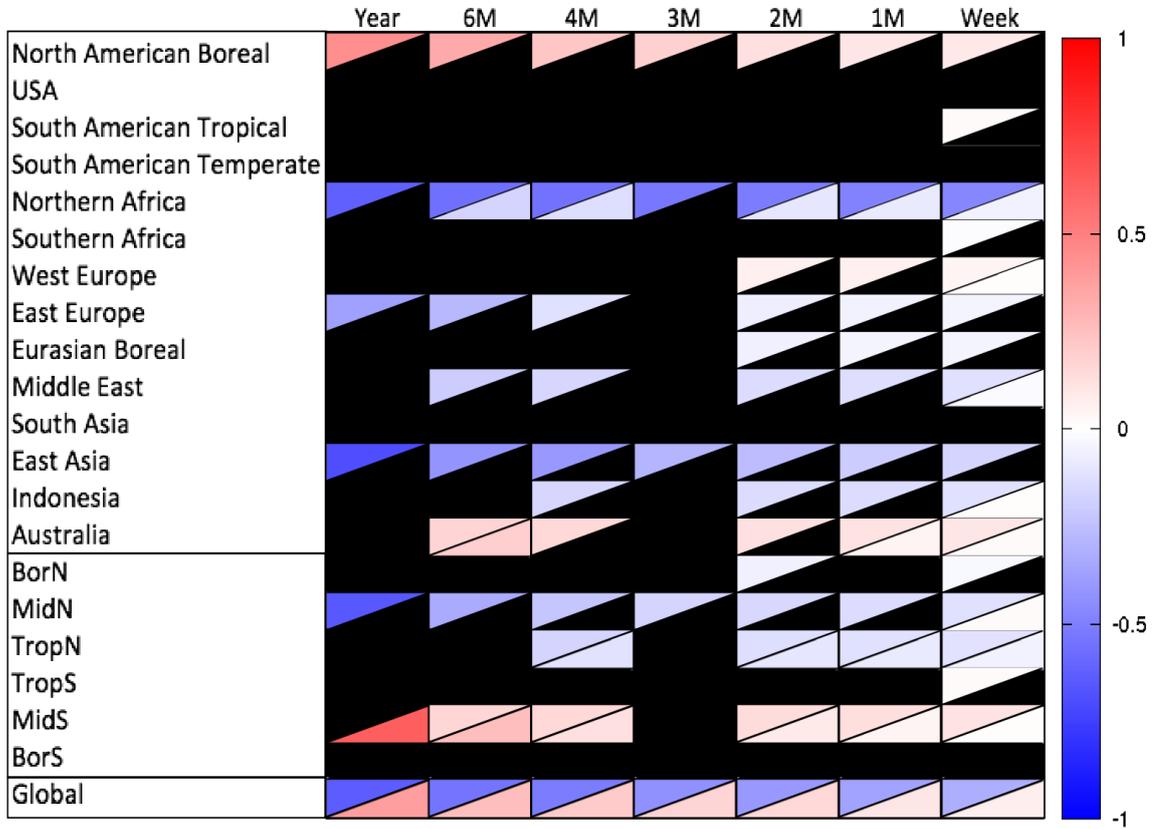


FIGURE 5.16 – Corrélations linéaires des anomalies de CH_4 (SURF) avec l’humidité du sol (coin supérieur gauche de la cellule) et la température (coin inférieur droit de la cellule).

5.4.2 Abstract

We use a Bayesian inversion system to evaluate the capability of the global surface network, the space-borne IASI instrument, and the space-borne TANSO-FTS to quantify the year-to-year anomalies of methane fluxes at various space-time scales. We study the signal-to-noise ratio of flux anomalies for each system and, for the surface network only, the correlations of the inverted flux anomalies with temperature and soil moisture. With the current observing systems, the weekly anomalies are well detected in the Tropics only, given the modesty of the anomalies amplitudes over 2008-2011. The detectability improves by aggregating the fluxes in time, typically at 6- or 12-monthly scales. Strong correlations are found between annual flux anomalies

and soil moisture anomalies in Northern Africa, East Asia and Boreal North America. We do not find significant correlations with temperature. The greater coverage of TANSO-FTS makes it here the most capable observing system.

5.4.3 *Introduction*

As the second most important anthropogenic greenhouse gas after carbon dioxide, methane (CH_4) is an important climate driver. Therefore monitoring CH_4 concentrations and their driving emissions are primary research objectives for Earth observation science. These two objectives are combined in atmospheric inversion systems. Such systems infer the space-time variations of the global or regional emissions from the assimilation of concentration measurements into chemistry-transport models (CTMs) [Houweling et al., 1999, Bergamaschi et al., 2007, Bousquet et al., 2011, Pison et al., 2013]. For such systems, explaining the trends of CH_4 concentrations, such as their stability between 2000 and 2006 and their later increase [Kirschke et al., 2013], is a major application. Despite considerable effort developing observing systems, at the Earth's surface, in the atmosphere and in space, the inverted fluxes are associated with large uncertainties and this ambiguity still allows diverging interpretations of the trends depending on which CTM is used, or on how the inversion target variables or the prior information are defined [Bousquet et al., 2006, Bousquet et al., 2011, Rigby et al., 2008, Dlugokencky et al., 2009, Bergamaschi et al., 2013]. In principle, the Bayesian framework should reconcile all well-tuned inversion systems because it characterizes the uncertainty of each inversion product at all space-time scales, thereby weighting each scenario suggested by the inversion approach. In practice, posterior uncertainties are often difficult to compute and are also affected by mis-specified prior or observation uncertainties. In a previous study, [Cressot et al., 2014] applied objective tuning methods imported from Numerical Weather Prediction [Desroziers et al., 2005] within a robust Monte Carlo approach to optimize the input error covariance matrices of a global CH_4 inversion system. Here, we use their results as a starting point to characterize the uncertainty of the year-to-year variations of the inverted fluxes at various scales, in order to document which anomaly signals from the inversions are reliable and which are not. We consider three different global CH_4 observation systems : surface air-sample sites from various global networks, the space-borne Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) that measures the mid-to-upper-tropospheric column and the Thermal And Near infrared Sensor for carbon Observation - Fourier Transform Spectrometer (TANSO-FTS), that observes the total column from space. We compute the uncertainty of each change of the inverted fluxes from one year to the next

and compare it to the flux anomalies of a reference inversion. The resulting signal-to-noise ratio is used as a criterion to evaluate the ability of each observation system to retrieve the CH₄ interannual emissions. We complement this statistical criterion with a physical one, inspired by [Bloom et al., 2010] : we analyze the flux fields inverted from the surface sites over a period of 12 years (2000-2011) in terms of their correlations to geophysical variables, temperature and soil moisture, that are known to control the interannual variability of CH₄ emissions especially in wetland regions [Walter et al., 2001]. We take the strength of the correlation as an indication of the robustness of the inverted flux anomaly.

The paper is structured as follows. The theoretical framework and the different data sets are presented in Section 5.4.4. The results of the signal-to-noise ratio of the CH₄ anomalies and their correlations with temperature and soil moisture are presented in Section 5.4.5 and discussed in Section 5.4.6.

5.4.4 *Method*

5.4.4.1 *Inversion Framework*

Our inversion system is based on a variational formulation of Bayes' theorem, as detailed by [Chevallier et al., 2005], which has been adapted to the inversion of CH₄ fluxes by [Pison et al., 2009]. It allows inverting grid-point-scale fluxes, thereby avoiding gross aggregation errors, while assimilating the large flow of satellite data at appropriate observation time and location. It ingests mole fraction measurements and prior information about the variables that are to be optimized, with associated error covariance matrices. Bayesian error statistics of the inverted variables are computed from a Monte-Carlo ensemble of inversions which is consistent with the assigned prior and observation errors [Chevallier et al., 2007]. The inversion system includes the LMDz transport model of [Hourdin et al., 2006] at resolution $3.75^\circ \times 2.5^\circ$ (longitude \times latitude) in a nudged and offline mode, which we couple to a simplified chemistry module (SACS) to represent the interactions between CH₄ and the hydroxyl radical (OH), its main sink in the atmosphere, and between methyl chloroform (MCF) and OH. When it assimilates both CH₄ and MCF mole fractions, as is done here, it synergistically optimizes both CH₄ surface sources at weekly and model grid resolution and OH at weekly resolution over 4 latitude bands (-90/-30, -30/0, 0/30, 30/90), therefore dynamically distinguishing between CH₄ emission and loss. The system iteratively minimizes the Bayesian cost function (made non-quadratic by the non-linear chemistry) using the M1QN3 algorithm [Gilbert and Lemaréchal, 1989].

This system is applied here to assimilate one or two among three CH_4 observing systems and one MCF observing system, in the configuration used by [Cressot et al., 2014]. The reader is referred to [Cressot et al., 2014] for a detailed description of this configuration. It is enough here to recall that the prior fluxes (fires excepted) have no interannual variability. Four inversions are presented in this study : one using CH_4 surface measurements (called SURF hereafter), one using IASI observations (called IASI hereafter), one combining surface and IASI observations (called COMB hereafter) and one using TANSO-FTS observations (called TANSO hereafter). The period covered by each inversion depends on the assimilated CH_4 observing system : we start in December 1999 for the surface data, in August 2007 for IASI and COMB and in June 2009 for TANSO-FTS. All inversions end in December 2011.

5.4.4.2 *Data sets*

Given our extended assimilation period for the surface data compared to [Cressot et al., 2014], we restrict the methane site list to 36 (instead of 49) that have continuous and homogeneous data throughout the assimilation window. They come from the National Oceanic and Atmospheric Administration (NOAA) global cooperative air sampling network [Dlugokencky et al., 1994, Dlugokencky et al., 2009], the Commonwealth Scientific and Industrial Research Organisation (CSIRO) [Francey et al., 1999] and the National Institute of Water and Atmospheric Research (NIWA) [Lowe et al., 1991]. We also use the station Alert (ALT) from Environment Canada (EC) [Worthy et al., 2009]. MCF measurements are provided by 11 NOAA surface sites [Montzka, 2011]. When we combine the CH_4 surface measurements with IASI, from August 2007 onward, we add 6 CH_4 sites and 2 MCF sites to the lists citepd above. The surface sites used in our inversions are presented in Figure 1a.

We use observations of the mid-to-upper tropospheric CH_4 column made by IASI, a thermal interferometer onboard the Meteorological Operational (MetOp) satellites. This quantity is retrieved based on a non-linear inference scheme [Crevoisier et al., 2009] within 30 degrees of the Equator over both land and ocean at about 09 :30 a.m./p.m. local time, with an accuracy of 1.2 %.

Last, we use observations of the CH_4 atmospheric total column over land from TANSO-FTS, a near-infrared spectrometer onboard the Greenhouse gases Observing SATellite (GOSAT). Total columns are retrieved by optimal estimation using the algorithm of [Parker et al., 2011] and with a precision of 0.6%.

The averaging kernel or weighting function of each IASI or TANSO-FTS retrie-

val is directly accounted for in the inversion system following [Connor et al., 2008].

Our information about temperature and soil moisture is provided by the ERA-Interim reanalysis [Dee et al., 2011]. Soil moisture is deduced from volumetric value averaged over the first 2.89 m below the surface whereas the temperature is the surface value.

5.4.4.3 *Error statistics*

The input error statistics for the prior and the observations are tuned using objective diagnostics as described by [Cressot et al., 2014]. This means that they bear some realism which is seen to translate into realistic Bayesian posterior error statistics, that in particular make all present inversions statistically consistent at the annual and global or regional scales [Cressot et al., 2014]. In order to keep the computational burden to a reasonable level, we compute the posterior error statistics from a Monte Carlo inversion ensemble of 10 members, each one covering the year 2010 only. Therefore, posterior error statistics of interannual emissions are computed from the ones of annual emissions. In practice, we consider that these errors are uncorrelated from one year to the next. This is a conservative hypothesis since in reality some of the transport and retrieval errors are recurrent, thereby inducing positive correlations and reducing the inflation factor to less than $\sqrt{2}$.

5.4.4.4 *Evaluation criteria*

As stated above, we use two criteria to evaluate the capability of three CH₄ observing systems to retrieve the CH₄ flux anomalies. CH₄ flux anomalies are defined here as the deviation from the 4-year mean of the CH₄ inverted fluxes. The error statistics refer to the posterior error variances associated to the interannual variability of CH₄ fluxes. We compare CH₄ flux anomalies and error statistics to evaluate the space-time scales at which these anomalies are larger than the detection limit of each observing system.

Our first criterion consists in evaluating the ability of the three observing systems to detect CH₄ anomalies of amplitude defined by the COMB inversion. We compare the CH₄ anomalies derived from COMB to the error variances given for each observing system at various spatial (global, 30°-latitude bands, sub-continental regions as shown in Figure 5.1) and temporal scales (1 year, 6 months, 4 months, 3 months, 2 months, 1 month and 1 week). COMB is

chosen as the reference because it benefits from the traditional strength of the surface network in the mid-latitudes, complemented by the dense IASI data in the Tropics. By using the signal-to-noise ratio as an evaluation criterion, we estimate at which scales and locations the CH₄ anomalies are reliable for each observation system.

The second criterion uses the correlations of the CH₄ flux with both temperature and soil moisture at the same space-time scales as above. Note that by construction the correlation of the anomalies is the same as the correlation of the variables. This criterion can only be used for SURF because the length of the satellite time series does not allow computing the correlations in a meaningful way yet. The longest record to date comes from the SCanning Imaging Absorption spectroMeter for Atmospheric CHartographY (SCIAMACHY, 10 years) but we previously showed that the progressive degradation of the instrument has made it difficult to exploit the full time series [Cressot et al., 2014]. This second criterion tests whether the global surface network can detect the physical relationship between geophysical variables and flux anomalies (assuming such a relationship exists). We evaluate the significance of the correlations by comparing them to Bravais-Pearson correlation coefficient cut-offs, which are presented for different levels of significance and different values of n (where n is 2 less than the number of pairs in the sample) in the table of [Fisher, 1963]. Only the correlations that pass the 0.05 significance level are presented in this study.

5.4.5 *Results*

5.4.5.1 *Signal-to-noise ratio*

Figures 5.13, 5.14 and 5.15 respectively present the percentage of CH₄ flux anomalies with magnitude exceeding their inversion uncertainty evaluated from Monte-Carlo studies for SURF, IASI and TANSO as detailed above. This percentage indicates the space-time scales at which the anomaly signal can be reliably detected.

At the global and annual scales, the CH₄ reference anomalies are all larger than SURF, IASI and TANSO uncertainties. The percentages of CH₄ anomalies exceeding the noise diminishes rapidly when decreasing the temporal scale : at the global and 6-monthly scales, 62% of anomalies are detected for TANSO, 50% for IASI and 37% for SURF.

At the annual and zonal-mean scales, the reference anomalies are detected by the surface network (SURF) in TropN (50%), MidN (25%) and MidS (25%). At the annual and regional scales (see regions in Figure 5.1), they are detected

in East Asia (50%), Southern Africa (50%), Northern Africa (25%) and the South American Temperate region (25%).

When compared to the detectability of the surface network, at the annual and zonal-mean scales, the reference anomalies are detected by IASI in the same latitude bands minus MidN plus TropS (50%). At the annual and regional scales, the same regions as for SURF are detected by IASI but they are also detected in USA (25%) and in the South American Tropical region (25%). Moreover, at the regional and 6-monthly scales, more CH₄ anomalies are also detected in the South American Tropical region and Indonesia (50%) by IASI. When compared to SURF, at the annual and zonal-mean scales, the reference anomalies are detected by TANSO-FTS in the same latitude bands plus TropS (25%). TANSO-FTS also improves the detectability in MidN (75%). At the annual and regional scales, the same regions as for SURF are detected by TANSO but they are also detected in USA (25%), Middle East (25%) and Australia (50%).

Overall, IASI and TANSO-FTS are more able than the surface network to detect the reference anomalies in the Southern Tropics (50% for IASI and 25% for TANSO in TropS at the annual scale). Moreover, TANSO-FTS is better than the other two observing systems at retrieving the CH₄ anomalies in the northern mid-latitudes (75% in MidN at the annual scale) probably arising from its higher density of observations there. CH₄ anomalies from boreal regions are not detected by any of the three observing systems at any temporal scale.

5.4.5.2 *Correlations with temperature and soil moisture*

The correlation between methane flux derived from SURF and temperature and soil moisture is displayed in Figure 5.16. It shows a strong negative correlation between interannual fluxes and soil moisture ($r^2 \cdot \text{sign}(r) = -0.64$) at the global and annual scales and a weaker positive correlation with temperature ($r^2 \cdot \text{sign}(r) = 0.38$) at the same resolution. Most correlations are weak, generally peaking where the previous test of detectability also peaks like in region Northern Africa ($r^2 \cdot \text{sign}(r) = -0.62$ with soil moisture) and in region East Asia ($r^2 \cdot \text{sign}(r) = -0.69$ with soil moisture). This suggests that whatever their strength in reality, correlations are not much seen with the current surface measurements. Still, since our prior does not contain any information about CH₄ interannual variability, the correlations that are seen between CH₄ anomalies from SURF and temperature are induced solely by the measurements. The correlations with soil moisture are also generated by the inversion at the global scale, in MidN and in North American Boreal, Northern Africa, Eastern Europe and East Asia. At the monthly scale, correlations

with the raw fluxes (rather than with their monthly interannual anomalies) are much larger (not shown) but they are driven by the underlying seasonal cycle which is not our focus.

5.4.6 *Discussion*

Interannual variability in the CH₄ cycle is largely dominated by three climate regions. Two of them are responsible for wetland, rice paddies and fire emissions : the Tropics and the Boreal regions. The third one, Eurasia, encompassing Eastern Europe and Russia (below 50°N), is responsible for most anthropogenic emissions.

The CH₄ anomalies are mainly detected in the Tropics by all the observing systems but this depends on the time-scale. On the one hand, the CH₄ anomalies are well detected at the annual scale in regions East Asia for SURF and in Northern Africa for TANSO. The need to perform gross averages to extract a signal from the inversion was intuited by [Bergamaschi et al., 2013], who used CH₄ anomalies over two multi-annual periods and over large latitude bands to describe the CH₄ recent trend. On the other hand, CH₄ anomalies are also well detected at the 6-monthly scale in Indonesia and in the South American Tropical region for TANSO and IASI where dry and wet seasons are more apparent. Otherwise, the CH₄ anomalies remain in general weak in our study especially because few climatic events happened during the 2008-2011 period. However, the three observing systems consistently detect a strong positive anomaly in the South American Temperate region in 2010 induced by a severe drought in Amazonia corresponding to a strong negative anomaly in the soil moisture time-series. We also found two peaks in the time series of SURF anomalies (see Figure 5.19) which seem to be correlated with the El Nino events that happened in 2002-2003 and in 2005-2006. Moreover, the SURF anomalies time-series indicate that the recent increase of methane global emissions comes from the Northern Hemisphere, especially from the Tropics and to a lesser extent from the mid-latitudes, which is consistent with [Bergamaschi et al., 2013] .

Wetland and rice paddies emissions dominate the regions identified by the signal-to-noise criterion. We therefore expect that the inverted emissions are related to soil moisture and temperature in these regions. We verified this feature for the SURF simulation, which covers 12 years. We found strong negative correlations with soil moisture in Northern Africa and East Asia but weaker correlations with temperature. Given the modest length of the time series, some correlations may be fortuitous. Therefore, to simplify the

interpretation of these correlations, they are compared to critical values from tables of Bravais-Pearson correlation coefficient. For soil moisture, our significance test confirms the correlations, even at the annual scale. Moreover, strong correlations over Northern Africa and East Asia may not be related to the Niger and Gange basins, respectively, for which [Bloom et al., 2010] also found strong correlations between CH_4 concentrations and groundwater. Indeed, these correlations with soil moisture are here negative suggesting that the anomalies observed respectively in Northern Africa and in East Asia have different origins like, respectively, fire emissions or emissions related to a change in rice paddies practices [Kai et al., 2011]. We still take this consistency of the correlation study and the signal-to-noise ratio study for SURF as an indication of the robustness of the latter. For temperature, the significance test is less clear and suggests that the linear hypothesis is too simple in this case. Indeed, the relation between CH_4 concentrations and temperature found for instance by [Bloom et al., 2010] is log-linear. However, when we translate this non-linearity to CH_4 flux anomalies, the correlations obtained for temperature are not significantly larger even when we use rank statistics (which do not depend on exact functional forms). We conclude that the response of fluxes to temperature is only marginally detectable by the current surface measurements or is more complex than proposed here (the effect of temperature and soil moisture on CH_4 emissions is indirect, mediated by changes in bacterial activity and vegetation composition [Christensen, 2010]).

CH_4 variability is to a lesser extent sensitive to the oxidizing capacity of the atmosphere, which is largely controlled by OH concentrations. Given its short lifetime in the atmosphere, the OH variability is particularly difficult to monitor. Our multi-species inversion system acknowledges this uncertainty by allowing the OH concentrations to vary in large latitude bands during the synergistic assimilation of CH_4 and MCF measurements. Final (optimized) OH concentrations are still uncertain by about 5%, an uncertainty which is accounted for in the uncertainty of the inverted CH_4 emissions and of their interannual variations as reported here.

Boreal regions are critical for the CH_4 cycle but their anomalies are not detected by any of the observing systems tested here. Indeed, anomalies in the North American Boreal and Eurasian Boreal regions are weak (less than 1.5 Tg/yr) because the fluxes remain close to our prior fluxes, that do not contain interannual information. However, by aggregating at larger time-scales than the annual one, some anomalies become visible. For example, CH_4 anomalies are larger than the inversion noise in the North American Boreal region after 5-year averages for SURF and in region Eurasian Boreal for 10-year averages

for TANSO (theoretical tests not shown). For a zonal mean (60°N–90°N), the anomalies are detectable from 4-year averages (not shown). The situation in high latitudes should only improve when active measurement techniques are available like with the Methane Remote Sensing Lidar Mission (MERLIN [Ehret et al., 2008]).

5.4.7 Corrélations non linéaires

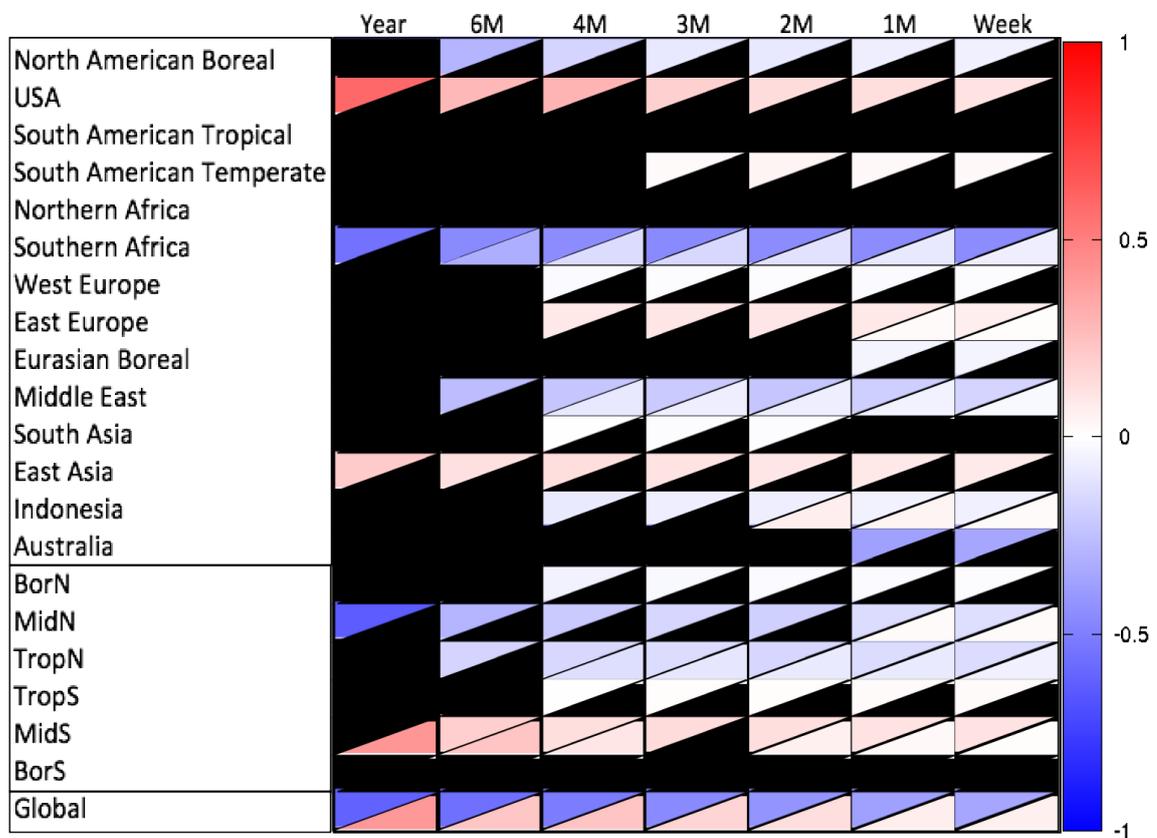


FIGURE 5.17 – Corrélations non linéaires des anomalies de CH₄ (SURF) avec l’humidité du sol (coin supérieur gauche de la cellule) et la température (coin inférieur droit de la cellule).

Sur la figure 5.17, on présente les corrélations non linéaires entre les anomalies de CH₄ et les anomalies de température (coin bas droit) et d’humidité du sol (coin haut gauche). Pour ce faire, on a utilisé le facteur de corrélation

de Spearman qui permet de mettre en évidence si une quelconque relation linéaire existe entre deux variables. Ce test met en évidence l'existence d'une relation entre les anomalies de CH_4 et l'humidité du sol pour d'autres régions que celles qui ont été mises en évidence avec le test de corrélations linéaires comme la région Afrique du Sud ou encore les USA. Toutefois, les corrélations entre les anomalies de CH_4 et de température sont toujours aussi peu significatives. La relation entre les flux de CH_4 et la température semble être plus complexe et il est possible que des facteurs indirects entrent en jeu comme la composition organique du sol par exemple.

5.5 Conclusions

On cherche à établir une relation entre les anomalies de CH_4 et la température et l'humidité du sol en s'inspirant de l'étude de [Bloom et al., 2010] basé sur l'étude des concentrations de CH_4 . Si la variabilité interannuelle des concentrations de CH_4 est beaucoup étudiée [Dlugokencky et al., 2003, Bergamaschi et al., 2013], celle des flux de CH_4 l'est beaucoup moins. De ce fait, on a croisé les résultats de deux tests, l'un statistique et l'autre physique afin d'améliorer notre connaissance sur l'interannualité des flux de CH_4 . À l'étude des corrélations, on a ajouté un critère de significativité dépendant du degré de liberté des séries temporelles des éléments pris en compte, ce qui revient à prendre en compte l'incertitude des corrélations elles-mêmes. Le deuxième test permet d'évaluer les échelles spatio-temporelles pour lesquelles les systèmes d'observations réussissent à détecter les anomalies de CH_4 .

Les anomalies de méthane sont en général assez faibles car aucun événement climatique majeur n'est survenu durant notre période d'étude (2008-2011). Cependant, les trois systèmes d'observations étudiés parviennent à détecter ces anomalies en particulier pour certaines régions tropicales comme l'Afrique du Nord et l'Asie de l'Est. IASI parvient également à détecter des anomalies semi-annuelles notamment en Indonésie.

Un résultat important découlant de cette étude réside dans les régions mises en relief simultanément par les deux tests. En effet, certaines régions des Tropiques comme l'Asie de l'Est et l'Afrique du Sud présentent à la fois des anomalies de CH_4 qui sont détectées par les différents systèmes d'observations et qui semblent être liées à des anomalies d'humidité du sol. Ces résultats suggèrent que le signal observé provient de bassins importants comme celui du Gange et celui du Niger. Toutefois, les corrélations observées avec l'humidité du sol dans ces régions est négative et ne coïncide pas avec des émissions de

zones humides. L'augmentation des émissions en Afrique du Nord pourrait être corrélée à l'augmentation des émissions de feux de biomasse tandis que l'augmentation observée en Asie de l'Est pourrait être liée à un changement de pratique dans la riziculture. Par ailleurs, les anomalies semi-annuelles détectées par IASI semblent corrélées à des événements El Nino survenus en 2002 et 2005 (voir Figure 5.18). Il n'est pas surprenant que IASI ne détecte pas tous les événements El Nino notamment parce que leur influence sur le climat et la biosphère est complexe.

De plus, on observe des corrélations positives et significatives avec l'humidité du sol dans les latitudes boréales pour la région Amérique du Nord boréale alors que les anomalies dans ces régions ne sont détectées par aucun système d'observation. Ce résultat peut s'expliquer par un manque de contrainte dans les hautes latitudes ou par des anomalies trop faibles sur notre période d'étude. On espère d'ailleurs que de futurs instruments comme MERLIN ou SENTINEL-5P permettront d'obtenir de plus amples informations sur les zones humides des hautes latitudes mais aussi sur les émissions liées à la fonte du pergélisol, susceptibles d'émettre de grandes quantités de méthane lors de périodes de réchauffement.

Par ailleurs, cette étude a également mis en évidence que l'augmentation récente du méthane provient majoritairement des terres des latitudes tropicales de l'hémisphère nord et dans une moindre mesure des moyennes latitudes nord.

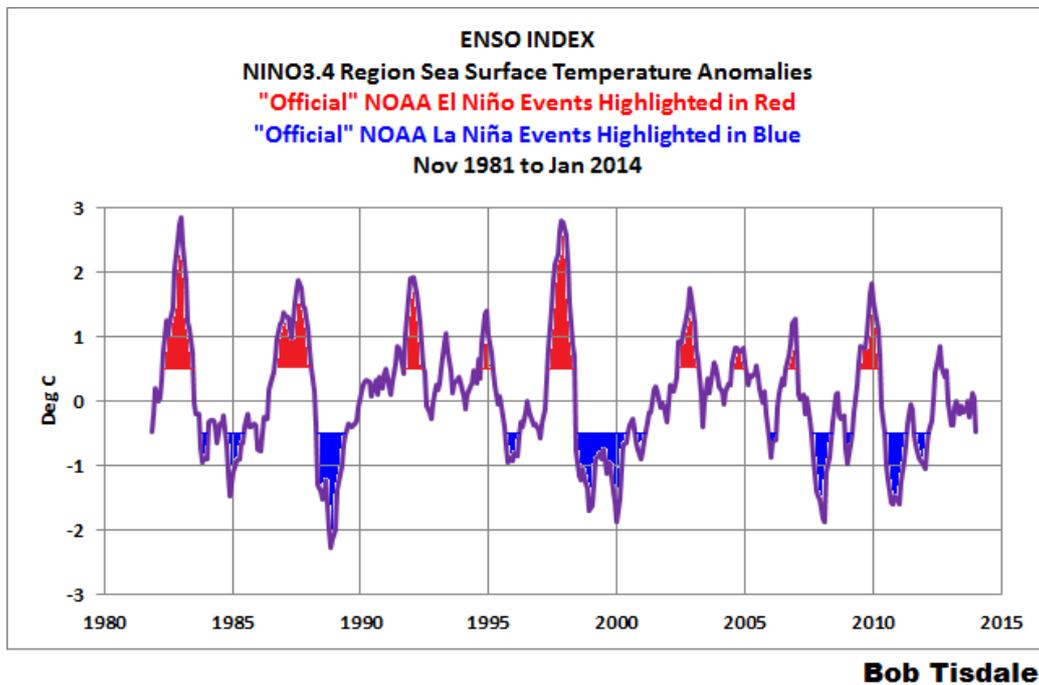


FIGURE 5.18 – Événements El Nino et La Nina survenus entre 1982 et 2014 (D’après Bob Tisdale).

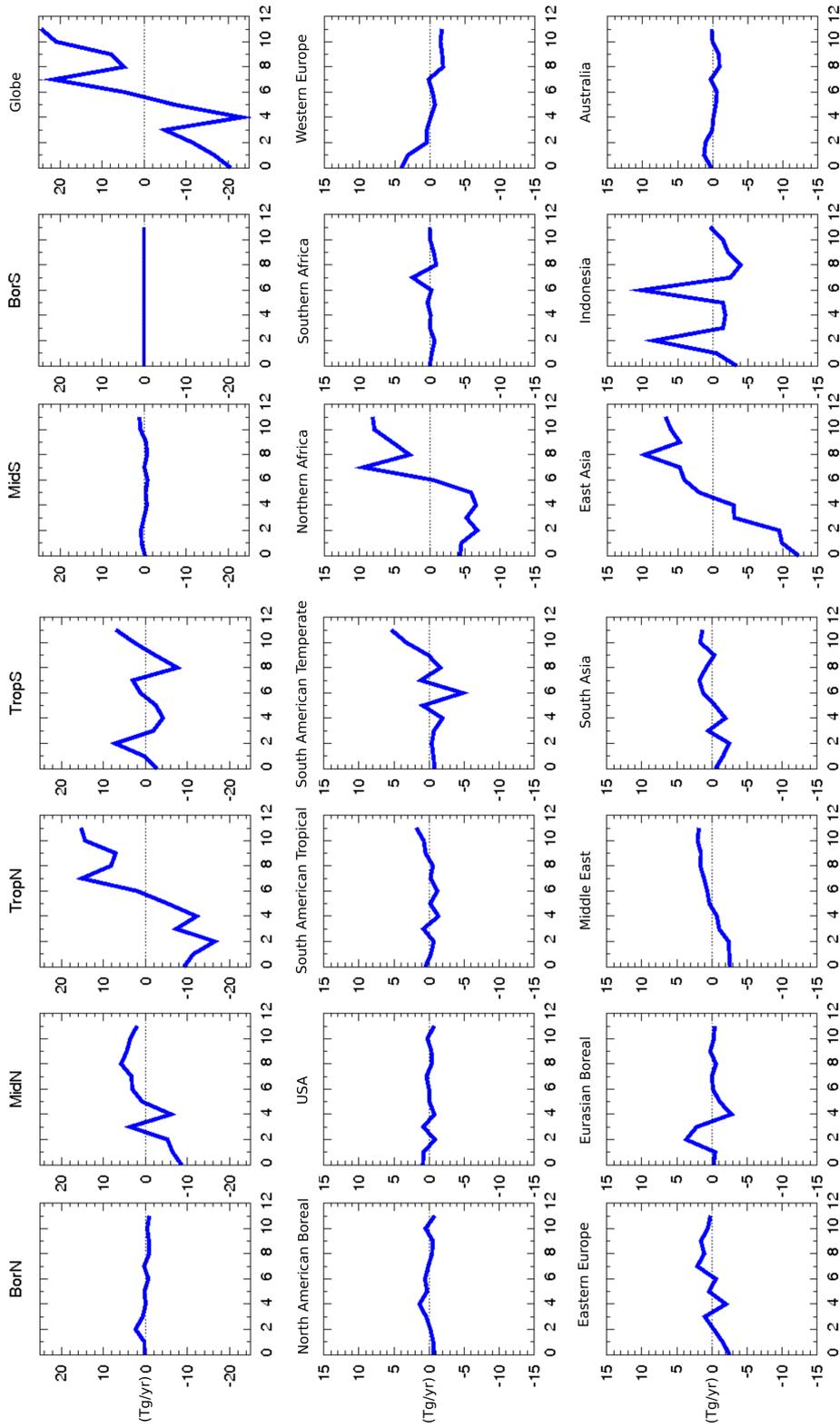


FIGURE 5.19 – Anomalies de CH_4 (Tg/an) pour l'inversion SURF entre 2000 et 2010. Ces anomalies sont présentées pour les 6 bandes de latitude et pour le globe (première ligne) ainsi que pour les régions sous-continentales.

CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Le méthane est un gaz à effet de serre puissant puisqu'il possède à la fois un effet direct (émissions de surface) et un effet indirect (impact sur l'ozone) sur le réchauffement climatique. Pourtant, l'évolution de sa tendance récente reste mal comprise et son interprétation est toujours débattue. L'objectif de ma thèse consistait à exploiter les mesures satellitaires de concentrations atmosphériques de CH_4 afin d'améliorer notre compréhension de la tendance du CH_4 et à quantifier l'apport d'information de ces instruments embarqués sur notre connaissance des flux de méthane.

Au début de ma thèse, la majorité des études cherchant à quantifier l'évolution du méthane reposait sur l'exploitation des mesures de stations de surface. Deux types d'applications étaient alors menées en parallèle à partir des observations de concentrations atmosphériques de CH_4 . D'une part, les observations étaient assimilées dans des systèmes d'inversion afin de retrouver les émissions de CH_4 à des résolutions spatiales qui dépendent elles-mêmes de l'approche utilisée. À partir d'une approche analytique, [Bousquet et al., 2011] ont estimé les émissions de CH_4 à l'échelle de la région sous continentale alors que [Bergamaschi et al., 2009] se sont basés sur une approche variationnelle permettant de fournir une estimation de ces émissions à la résolution du point de grille. D'autre part, un autre type d'application ne réalisait pas d'inversions mais exploitait les mesures de surface de concentrations de CH_4 et un modèle de transport pour étudier la tendance, la différence inter-hémisphérique et les émissions de CH_4 [Dlugokencky et al., 1994, Dlugokencky et al., 2003].

L'utilisation des mesures satellitaires pour ce type d'étude restait marginal malgré la disponibilité de plusieurs instruments.

De 2002 à 2008, SCIAMACHY a été le seul instrument à fournir des colonnes totales de CH_4 . À mon arrivée, des travaux utilisant les observations de SCIAMACHY avaient déjà été réalisés au LSCE mais les seuls travaux

publiés utilisant les mesures de cet instrument étaient ceux du JRC (Joint Research Centre) [Bergamaschi et al., 2009]. Ces derniers n'accordaient d'ailleurs qu'une confiance modérée aux observations satellitaires et combinaient systématiquement les observations de SCIAMACHY à celles des stations de surface pour leur retirer un biais.

En 2009, plus d'un an avant mon arrivée au LSCE, les mesures de colonnes totales de CH_4 faites par SCIAMACHY étaient complétées par celles de TANSO-FTS mais les produits ne sont pas disponibles immédiatement et évoluent continuellement [Butz et al., 2010]. Ainsi, au cours de ma thèse, j'ai utilisé trois versions différentes du produit TANSO-FTS dont un jeu de données officiel du NIES (National Institute for Environmental Studies) [Yokota et al., 2009] et deux versions du produit de l'université de Leicester [Parker et al., 2011]. À mon arrivée, la méthode du substitut [Frankenberg et al., 2006] pour représenter le chemin optique était majoritairement utilisée. Cependant, une approche purement physique a été développée pour estimer simultanément les colonnes de CH_4 et de CO_2 mesurées dans des fenêtres spectrales proches par les nouveaux instruments satellitaires. [Schepers et al., 2012] a montré que les deux méthodes sont de qualité comparable mais que la méthode purement physique présente toutefois un biais mondial plus important que la méthode du substitut.

À partir de 2007, IASI mesure des colonnes partielles de CH_4 avec une sensibilité particulière pour la moyenne et la haute troposphère. Toutefois, ces mesures n'avaient jamais été exploitées dans des inversions, tout comme celles des instruments AIRS (Atmospheric InfraRed Sounder) et TES (Tropospheric Emission Spectrometer) qui observaient le CH_4 depuis respectivement fin 2002 et mi-2004. Mon étude a été la première à exploiter les données de IASI- CH_4 pour l'inversion des flux de méthane.

Parce que les instruments satellitaires possèdent des caractéristiques qui leurs sont propres (résolutions spatiale, verticale, spectrale et temporelle, précision), la comparaison de leurs observations n'est pas directe. [Rodgers and Connor, 2003] présentent une méthode consistant à combiner les profils et les fonctions de lissage des instruments satellitaires afin de comparer de façon rigoureuse leurs colonnes totales. D'autre part, les observations des instruments satellitaires peuvent être indépendamment assimilées dans un système d'inversion dans l'optique de comparer les sorties de modèles [Cressot et al., 2014]. Pour notre étude, nous avons utilisé la deuxième approche et avons comparé les émissions de CH_4 a posteriori ainsi que les concentrations de CH_4 optimisées par le système inverse PYVAR-LMDz-

SACS.

Afin de comparer les différents systèmes d'observation et dans une moindre mesure de quantifier l'apport d'information de chaque système, nous avons évalué la cohérence statistique entre les flux de CH₄ optimisés à partir de leurs observations respectives. Nous avons utilisé un système d'inversion basé sur une approche variationnelle. Or, pour ce type d'étude, la question du calcul des barres d'erreurs a longtemps posé problème. Historiquement, du fait des limitations des moyens de calculs, les études variationnelles antérieures ne calculent pas explicitement de barres d'erreurs associées aux résultats d'inversion lorsque l'opérateur d'observation est non linéaire, ce qui arrive lorsqu'on optimise les concentrations d'OH en parallèle avec les émissions de CH₄ ou lorsqu'on optimise le logarithme des émissions [Bergamaschi et al., 2009]. À la place, ils réalisent différents tests de sensibilité faisant varier les paramètres d'entrées pour évaluer la robustesse de leurs résultats. Toutefois, l'évolution des moyens de calculs a rendu possible l'estimation de ces barres d'erreurs par implémentation de méthodes d'ensembles d'inversions introduites par [Chevallier, 2007] pour le CO₂. Ainsi, les supercalculateurs du CCRT m'ont permis de réaliser massivement des inversions et de mettre en œuvre des simulations basées sur l'approche de Monte-Carlo pour le calcul des incertitudes.

J'ai utilisé l'approche de Monte-Carlo couplée au système d'inversion variationnel pour exploiter les mesures de trois instruments satellitaires (TANSO-FTS, SCIAMACHY et IASI). Ainsi, la première partie de ma thèse s'est intéressée à la comparaison de ces trois instruments pour l'estimation des flux annuels de CH₄ et à l'exploitation du réseau de surface pour évaluer ces produits satellitaires.

L'évaluation de la cohérence statistique entre les émissions de CH₄ a posteriori générées par les différents systèmes d'observation est basée sur la cohérence à ± 2 écart-types de leurs barres d'erreurs. Dans un tel contexte, la bonne représentation des erreurs a posteriori (σ_a) repose sur une bonne caractérisation des erreurs prescrites en entrée du système (σ_o et σ_b). Afin de se rapprocher d'un système statistiquement cohérent, on utilise la méthode objective de [Desroziers et al., 2005] qui consiste à diagnostiquer puis régler les variances des erreurs d'entrée.

Cette étude sur les flux annuels de CH₄ a mis en évidence le fait que TANSO-FTS apporte une contrainte forte sur le globe. En effet, les résultats d'inversions utilisant cet instrument ont peu varié parmi tous nos tests que l'on règle les statistiques d'erreurs ou que l'on modifie la sélection des obser-

vations ou que l'on ajoute une correction de biais. D'autre part, la réduction d'incertitudes sur les flux annuels y compris dans les hautes latitudes est significative. Cet instrument se démarque pour son excellent accord avec les stations de surface non seulement en termes de bilan annuel de CH_4 . IASI fournit une bonne densité d'information dans les Tropiques mais l'exploitation de ses observations gagnerait à être couplées à la surface pour contraindre les hautes latitudes. En revanche, SCIAMACHY n'a pas fourni de bilans annuels de CH_4 cohérents avec les autres systèmes d'observation y compris avec des variances d'erreurs ajustées par une méthode objective. Ceci est probablement dû à la dégradation progressive de cet instrument, en fin de vie pour nos années d'études, et à une structure d'erreurs difficile à modéliser.

Cette étude nous a également permis de réconcilier les mesures satellitaires (à l'exception de SCIAMACHY) et de surface, ce qui constitue un résultat important puisque les systèmes d'observation ne mesurent pas exactement la même quantité. En effet, les instruments satellitaires mesurent des colonnes (totales ou partielles) et sont sensibles à différentes couches de l'atmosphère suivant leur sensibilité verticale alors que les stations de surface n'accèdent qu'à la partie la plus basse de l'atmosphère.

Par ailleurs, les diagnostics de [Desroziers et al., 2005] reposent sur des hypothèses particulières notamment celle de l'absence de biais dans les statistiques d'erreurs, l'absence de corrélation entre les erreurs de l'a priori et celles des observations. Nous avons utilisé ces diagnostics bien que notre étude sorte du cadre de ces hypothèses. Même avec un réglage des erreurs grossier (un facteur d'échelle pour ajuster les erreurs sur tout le globe), ces diagnostics ont non seulement amélioré la cohérence entre les bilans annuels de méthane (mondiaux et régionaux) mais aussi la cohérence avec une information indépendante provenant des mesures de surface.

La deuxième partie de ma thèse a été axée sur l'étude de la variabilité interannuelle des flux de CH_4 et de la quantification de leurs incertitudes afin d'évaluer la capacité des différents systèmes d'observation à détecter les anomalies de flux de CH_4 .

Alors que la variabilité interannuelle de la concentration de CH_4 a été beaucoup étudiée ([Dentener et al., 2003, Dlugokencky et al., 2003]) pour l'explication de la tendance du CH_4 , peu d'études se sont intéressées aux barres d'erreurs associées à la variabilité interannuelle des flux de CH_4 . De plus, comme la variabilité des émissions du méthane provient majoritairement des émissions des zones humides [Bousquet et al., 2011], on combine l'étude de

la capacité de détection des anomalies de CH_4 à l'étude des corrélations des flux de CH_4 avec deux paramètres climatiques (la température et l'humidité du sol) pour isoler la composante des émissions provenant des zones humides et tenter d'améliorer notre connaissance sur la tendance récente du méthane.

Les trois systèmes d'observation (TANSO-FTS, IASI et le réseau de surface) sont capables de détecter les anomalies de CH_4 là où les corrélations avec la température et l'humidité du sol sont maximales, c'est-à-dire en Afrique du Nord et en Asie de l'Est. Si ces deux régions comportent des bassins importants, respectivement celui du Niger et celui du Gange, les corrélations observées avec l'humidité du sol sont négatives et ne coïncident pas avec des émissions de zones humides. En effet, les anomalies de CH_4 détectées par TANSO-FTS et le réseau de surface, respectivement en Afrique du Nord et en Asie de l'Est, suggèrent respectivement, une augmentation des émissions de feux de biomasse et un changement de pratique dans la riziculture. IASI détecte également de fortes anomalies de CH_4 en Indonésie qui semblent corrélées à des événements El Nino.

Par ailleurs, cette étude suggère que la récente augmentation des émissions du méthane provient majoritairement des terres des tropiques nord et dans une moindre mesure des moyennes latitudes de l'hémisphère nord.

Toutefois, au cours de mon étude sur les flux annuels de méthane et leur variabilité interannuelle, nous nous sommes heurtés à certaines limites qui ouvrent d'autres perspectives de recherche.

Ma thèse s'inscrit dans l'optique générale au LSCE de réaliser des inversions multi-contraintes et multi-satellitaires pour la chaîne d'oxydation des hydrocarbures. Si l'on s'en tient au méthane, l'intérêt d'un tel système complexe est surtout lié à la modélisation d'OH car les autres molécules de la chaîne d'oxydation du méthane (CO et HCHO) sont également produites et détruites par OH dans la troposphère.

On a également mis en évidence que les différentes inversions réalisées ne permettent pas d'améliorer notre connaissance du puits troposphérique du CH_4 par OH. Ce résultat suggère soit que les champs d'OH récupérés sont déjà de très bonne qualité, soit plus vraisemblablement que l'optimisation d'OH sur quatre bandes de latitude à partir des mesures de surface du MCF n'est efficace. D'une part, une seule station observe la concentration atmosphérique du MCF dans la bande tropicale sud, ce qui est insuffisant pour contraindre OH dans ces régions. D'autre part, depuis les restrictions imposées par le pro-

tole de Montréal, la concentration du MCF a diminué de façon exponentielle et est à ce jour résiduelle. À ce jour, la concentration du MCF est probablement insuffisante pour contraindre OH. Des travaux en cours cherchent de nouvelles molécules pouvant être utilisées à long terme pour remplacer le MCF, par exemple le HFC-134a proposé par [Fortems-Cheiney et al., 2013].

Les sondages satellitaires sont sujets à des biais car d'autres variables atmosphériques comme la couverture nuageuse, la diffusion des aérosols ou encore la présence de vapeur d'eau interfèrent avec le signal. [Bergamaschi et al., 2009] identifient un biais en fonction de la latitude dans les sondages de SCIAMACHY. Dans notre étude, nous mettons également en évidence un biais non négligeable en fonction de la masse d'air sur le trajet optique dans les sondages de SCIAMACHY. En revanche, ce même biais est négligeable dans les sondages de TANSO-FTS. Toutefois, la présence de biais complique l'implémentation des diagnostics de [Desroziers et al., 2005] qui posent des hypothèses très strictes notamment le caractère non biaisé des variables aléatoires (vecteur d'innovation et autres résidus). Nous n'avons pas exploité les diagnostics sur les variances de l'analyse (σ_a) dans cette étude car celles-ci sont relativement faibles et la présence de biais conduit dans certains cas à l'obtention de valeurs négatives pour les variances diagnostiquées.

Cette étude met en évidence une bonne cohérence entre les instruments satellitaires et les stations de surface en termes de bilans annuels de méthane. Toutefois, les incertitudes qui accompagnent ces estimations de flux de CH_4 restent importantes (par exemple 11 Tg/an d'erreurs pour l'Afrique du Nord). Par ailleurs, les erreurs des modèles semblent aujourd'hui être le principal facteur limitant. En effet, la modélisation de la physique de la stratosphère n'est pas optimale avec la version de LMDz que j'utilise. Des travaux de [Locatelli et al., 2013] tentent d'améliorer la représentativité des modèles en améliorant la résolution du modèle en passant de 19 à 39 niveaux verticaux et en augmentant la résolution horizontale, ainsi qu'en améliorant la représentation de la physique avec un changement du schéma de convection et l'ajout d'un modèle des thermiques.

De plus, on constate un manque de contraintes concernant les hautes latitudes. On évite d'utiliser les sondages satellitaires dans ces régions à cause d'un rapport signal à bruit faible mais aussi car ces sondages sont mal représentés dans les modèles à cause d'une mauvaise représentation de la stratosphère [Bergamaschi et al., 2009]. Toutefois, l'amélioration de la modélisation du transport dans la stratosphère couplée à la préparation de missions (MERLIN, SENTINEL-5P) visant à améliorer l'observation des hautes latitudes devrait

permettre d’apporter de nouvelles contraintes dans ces régions et, de ce fait, d’améliorer notre connaissance sur les émissions de méthane notamment celles provenant de la fonte du pergélisol.

L’explication de la tendance du méthane repose sur une bonne compréhension des processus. Afin de pouvoir séparer les différentes sources du méthane, on utilise d’autres molécules afin d’ajouter une contrainte comme le monoxyde de carbone pour les feux de biomasse, l’isotope $^{14}\text{C-CH}_4$ ou l’éthane pour les émissions des énergies fossiles. Dans notre cas, on essaie de coupler les anomalies de flux de méthane à deux paramètres climatique impliqués dans les émissions des zones humides : la température et l’humidité du sol. Initialement, cette étude devait conduire à la mise en place d’une paramétrisation simple permettant de modéliser les émissions des zones humides à partir de données climatiques. Une telle paramétrisation n’a pu être réalisée car les corrélations mises en évidence entre les anomalies de flux de CH_4 et les paramètres climatiques ne concernent que des régions particulières du globe (en Afrique du Nord et en Asie de l’Est) et ne sont pas forcément reliées aux émissions des zones humides.

Notre étude sur l’interannualité des flux de méthane à partir de l’observation satellitaire a été limitée par la non disponibilité des flux de masse pour notre version de LMDz à partir de 2012, empêchant ainsi la réalisation d’inversions plus longues. Toutefois, les séries temporelles des instruments satellitaires s’allongeant, leur exploitation permettrait également d’améliorer notre connaissance sur la variabilité des flux de CH_4 . Par exemple, les instruments IASI à bord de MetOp-A, MetOp-B et prochainement MetOp-C devraient garantir l’obtention d’une longue série temporelle jusqu’en 2020 soit 14 ans de données.

Dans notre étude, on s’est intéressé à la détection par satellite des émissions à grande échelle (mondiale et sous continentale). Toutefois, on peut se demander dans quelle mesure les satellites permettent de détecter des émissions à l’échelle plus locale. [Berchet et al., 2014] ont réalisé une inversion basée sur des mesures de surface afin d’estimer les émissions de CH_4 de la Sibérie à une échelle fine ($1^\circ \times 1^\circ$). Ils montrent que les mesures de GOSAT, utilisées pour l’évaluation des résultats, ne permettent pas de détecter les pics d’émissions d’origine anthropique. En revanche, [Schneising et al., 2014] ont mis en évidence la capacité de SCIAMACHY à détecter des fuites de gaz provenant des réseaux domestiques.

BIBLIOGRAPHIE

- [Allen et al., 2013] Allen, D. T., Torres, V. M., Thomas, J., Sullivan, D. W., Harrison, M., Hendler, A., Herndon, S. C., Kolb, C. E., Fraser, M. P., Hill, A. D., et al. (2013). Measurements of methane emissions at natural gas production sites in the united states. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 110(44) :17768–17773.
- [Artuso et al., 2007] Artuso, F., Chamard, P., Piacentino, S., Di Sarra, A., Meloni, D., Monteleone, F., Sferlazzo, D. M., and Thiery, F. (2007). Atmospheric methane in the mediterranean : analysis of measurements at the island of lampedusa during 1995–2005. *Atmospheric Environment*, 41(18) :3877–3888.
- [Aydin et al., 2011] Aydin, M., Verhulst, K. R., Saltzman, E. S., Battle, M. O., Montzka, S. A., Blake, D. R., Tang, Q., and Prather, M. J. (2011). Recent decreases in fossil-fuel emissions of ethane and methane derived from firn air. *Nature*, 476(7359) :198–201.
- [Beerling et al., 2009] Beerling, D., Berner, R. A., Mackenzie, F. T., Harfoot, M. B., and Pyle, J. A. (2009). Methane and the CH₄ related greenhouse effect over the past 400 million years. *American Journal of Science*, 309(2) :97–113.
- [Berchet et al., 2014] Berchet, A., Pison, I., Chevallier, F., Paris, J.-D., Bousquet, P., Bonne, J.-L., Arshinov, M. Y., Belan, B. D., Cressot, C., Davydov, D. K., and others (2014). Natural and anthropogenic methane fluxes in eurasia : a meso-scale quantification by generalized atmospheric inversion. *Biogeosciences Discussions*, 11(10) :14587–14637.
- [Bergamaschi, P.C.] Bergamaschi, Personal Communication.
- [Bergamaschi et al., 2007] Bergamaschi, P., Frankenberg, C., Meirink, J., Krol, M., Dentener, F., Wagner, T., Platt, U., Kaplan, J., Körner, S.,

- Heimann, M., Dlugokencky, E., and Goede, A. D. (2007). Satellite cartography of atmospheric methane from SCIAMACHY on board ENVISAT : 2. evaluation based on inverse model simulations. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, 112 :D02304/1–D02304/26.
- [Bergamaschi et al., 2009] Bergamaschi, P., Frankenberg, C., Meirink, J., Krol, M., Villani, M., Houweling, S., Dentener, F., Dlugokencky, E., Miller, J., Gatti, L., Engel, A., and Levin, I. (2009). Inverse modeling of global and regional CH₄ emissions using SCIAMACHY satellite retrievals. *Journal of Geophysical Research*, 114(D22) :D22301.
- [Bergamaschi et al., 2010] Bergamaschi, P., Krol, M., Meirink, J. F., Dentener, F., Segers, A., van Aardenne, J., Monni, S., Vermeulen, A. T., Schmidt, M., Ramonet, M., Yver, C., Meinhardt, F., Nisbet, E. G., Fisher, R. E., O’Doherty, S., and Dlugokencky, E. J. (2010). Inverse modeling of european CH₄ emissions 2001–2006. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 115(D22) :D22301.
- [Bergamaschi et al., 2013] Bergamaschi, P., Houweling, S., Segers, A., Krol, M., Frankenberg, C., Scheepmaker, R. A., Dlugokencky, E., Wofsy, S. C., Kort, E. A., Sweeney, C., Schuck, T., Brenninkmeijer, C., Chen, H., Beck, V., and Gerbig, C. (2013). Atmospheric CH₄ in the first decade of the 21st century : Inverse modeling analysis using SCIAMACHY satellite retrievals and NOAA surface measurements. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118(13) :7350–7369.
- [Bingemer and Crutzen, 1987] Bingemer, H. G. and Crutzen, P. J. (1987). The production of methane from solid wastes. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 92(D2) :2181–2187.
- [Bloom et al., 2010] Bloom, A., Palmer, P., Fraser, A., Reay, D., and Frankenberg, C. (2010). Large-scale controls of methanogenesis inferred from methane and gravity spaceborne data. *Science*, 327(5963) :322–325.
- [Bocquet et al., 2011] Bocquet, M., Wu, L., and Chevallier, F. (2011). Bayesian design of control space for optimal assimilation of observations. Part I : Consistent multiscale formalism. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 137(658) :1340–1356.
- [Bogner et al., 1997] Bogner, J. E., Spokas, K. A., and Burton, E. A. (1997). Kinetics of methane oxidation in a landfill cover soil : Temporal variations, a whole-landfill oxidation experiment, and modeling of net CH₄ emissions. *Environmental Science & Technology*, 31(9) :2504–2514.
- [Bousquet et al., 2005] Bousquet, P., Hauglustaine, D., Peylin, P., Carouge, C., and Ciais, P. (2005). Two decades of OH variability as inferred by an

- inversion of atmospheric transport and chemistry of methyl chloroform. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(10) :2635–2656.
- [Bousquet et al., 2006] Bousquet, P., Ciais, P., Miller, J., Dlugokencky, E., Hauglustaine, D., Prigent, C., Van der Werf, G., Peylin, P., Brunke, E., Carouge, C., et al. (2006). Contribution of anthropogenic and natural sources to atmospheric methane variability. *Nature*, 443(7110) :439–443.
- [Bousquet et al., 2011] Bousquet, P., Ringeval, B., Pison, I., Dlugokencky, E. J., Brunke, E. G., Carouge, C., Chevallier, F., Fortems-Cheiney, A., Frankenberg, C., and Hauglustaine, D. A. (2011). Source attribution of the changes in atmospheric methane for 2006-2008. *Atmos. Chem. Phys*, 11(2010) :3689–3700.
- [Brahic, 2010] Brahic, A. (2010). *De feu et de glace, planètes ardentes*. Odile Jacob.
- [Bruhn et al., 2009] Bruhn, D., Mikkelsen, T. N., Øbro, J., Willats, W. G. T., and Ambus, P. (2009). Effects of temperature, ultraviolet radiation and pectin methyl esterase on aerobic methane release from plant material. *Plant Biology*, 11 :43–48.
- [Butenhoff and Khalil, 2007] Butenhoff, C. L. and Khalil, M. A. K. (2007). Global methane emissions from terrestrial plants. *Environmental Science & Technology*, 41(11) :4032–4037.
- [Butz et al., 2010] Butz, A., Hasekamp, O. P., Frankenberg, C., Vidot, J., and Aben, I. (2010). CH₄ retrievals from space-based solar backscatter measurements : Performance evaluation against simulated aerosol and cirrus loaded scenes. *Journal of Geophysical Research*, 115(D24) :D24302.
- [Chapnik et al., 2006] Chapnik, B., Desroziers, G., Rabier, F., and Talagrand, O. (2006). Properties and first application of an error-statistics tuning method in variational assimilation. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 130(601) :2253–2275.
- [Chédin et al., 2003] Chédin, A., Serrar, S., Scott, N. A., Crevoisier, C., and Armante, R. (2003). First global measurement of midtropospheric CO₂ from NOAA polar satellites : Tropical zone. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D18) :4581.
- [Chen and Prinn, 2006] Chen, Y.-H. and Prinn, R. G. (2006). Estimation of atmospheric methane emissions between 1996 and 2001 using a three-dimensional global chemical transport model. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 111(D10) :D10307.
- [Chevallier et al., 2005] Chevallier, F., Fisher, M., Peylin, P., Serrar, S., Bousquet, P., Bréon, F.-M., Chédin, A., and Ciais, P. (2005). Inferring

- CO₂ sources and sinks from satellite observations : Method and application to TOVS data. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 110(D24) :D24309.
- [Chevallier, 2007] Chevallier, F. (2007). Impact of correlated observation errors on inverted CO₂ surface fluxes from OCO measurements. *Geophysical Research Letters*, 34(24) :L24804.
- [Chevallier et al., 2007] Chevallier, F., Bréon, F.-M., and Rayner, P. J. (2007). Contribution of the orbiting carbon observatory to the estimation of CO₂ sources and sinks : Theoretical study in a variational data assimilation framework. *Journal of geophysical research*, 112(D9) :D09307.
- [Chevallier et al., 2010] Chevallier, F., Feng, L., Bösch, H., Palmer, P. I., and Rayner, P. J. (2010). On the impact of transport model errors for the estimation of CO₂ surface fluxes from GOSAT observations. *Geophysical Research Letters*, 37(21) :L21803.
- [Christensen et al., 2003] Christensen, T. R., Ekberg, A., Ström, L., Mastepanov, M., Panikov, N., Öquist, M., Svensson, B. H., Nykänen, H., Martikainen, P. J., and Oskarsson, H. (2003). Factors controlling large scale variations in methane emissions from wetlands. *Geophysical Research Letters*, 30(7).
- [Christensen, 2010] Christensen, T. R. (2010). Methane and climate change (Chapter Wetlands) In Reay, D., Smith, P., and Van Amstel, A. :27–41.
- [Ciais et al., 2013] Ciais, P., Sabine, C., Bala, G., Bopp, L., Brovkin, V., Canadell, J., Chhabra, A., DeFries, R., Galloway, J., Heimann, M., Jones, C., Myneni, R., Piao, S., and Thornton, P. (2013). *Carbon and Other Biogeochemical Cycles*. In : *Climate Change 2013 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*.
- [Connor et al., 2008] Connor, B. J., Boesch, H., Toon, G., Sen, B., Miller, C., and Crisp, D. (2008). Orbiting carbon observatory : Inverse method and prospective error analysis. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 113(D5) :D05305.
- [Cressot et al., 2014] Cressot, C., Chevallier, F., Bousquet, P., Crevoisier, C., Dlugokencky, E. J., Fortems-Cheiney, A., Frankenberg, C., Parker, R., Pison, I., Scheepmaker, R. A., and others (2014). On the consistency between global and regional methane emissions inferred from SCIAMACHY, TANSO-FTS, IASI and surface measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(2) :577–592.
- [Crevoisier et al., 2009] Crevoisier, C., Chédin, A., Matsueda, H., Machida, T., Armante, R., and Scott, N. A. (2009). First year of upper tropospheric

- integrated content of CO₂ from IASI hyperspectral infrared observations. *Atmos. Chem. Phys.*, 9(14) :4797–4810.
- [Crevoisier et al., 2012] Crevoisier, C., Nobileau, D., Armante, R., Crépeau, L., Machida, T., Sawa, Y., Matsueda, H., Schuck, T., Thonat, T., Pernin, J., Scott, N. A., and Chédin, A. (2012). The 2007–2011 evolution of tropical methane in the mid-troposphere as seen from space by MetOp-a/IASI. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 12(9) :23731–23757.
- [Dee et al., 2011] Dee, D. P., Uppala, S. M., Simmons, A. J., Berrisford, P., Poli, P., Kobayashi, S., Andrae, U., Balmaseda, M. A., Balsamo, G., Bauer, P., Bechtold, P., Beljaars, A. C. M., van de Berg, L., Bidlot, J., Bormann, N., Delsol, C., Dragani, R., Fuentes, M., Geer, A. J., Haimberger, L., Healy, S. B., Hersbach, H., Hólm, E. V., Isaksen, L., Kållberg, P., Köhler, M., Matricardi, M., McNally, A. P., Monge-Sanz, B. M., Morcrette, J.-J., Park, B.-K., Peubey, C., de Rosnay, P., Tavolato, C., Thépaut, J.-N., and Vitart, F. (2011). The ERA-interim reanalysis : configuration and performance of the data assimilation system. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 137(656) :553–597.
- [Delmas et al., 2005] Delmas, R., Mégie, G., and Peuch, V. (2005). *Physique et chimie de l’atmosphère*. Belin.
- [Denman et al., 2007] Denman, K. L., Brasseur, G., Chidthaisong, A., Ciais, P., Cox, P. M., Dickinson, R. E., Hauglustaine, D., Heinze, C., Holland, E., and Jacob, D. (2007). Couplings between changes in the climate system and biogeochemistry. *Climate change*, 2007 :541–584.
- [Dentener et al., 2003] Dentener, F., van Weele, M., Krol, M., Houweling, S., and van Velthoven, P. (2003). Trends and inter-annual variability of methane emissions derived from 1979-1993 global CTM simulations. *Atmos. Chem. Phys.*, 3(1) :73–88.
- [Desroziers et al., 2005] Desroziers, G., Berre, L., Chapnik, B., and Poli, P. (2005). Diagnosis of observation, background and analysis-error statistics in observation space. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 131(613) :3385–3396.
- [Dlugokencky et al., 1994] Dlugokencky, E. J., Steele, L. P., Lang, P. M., and Masarie, K. A. (1994). The growth rate and distribution of atmospheric methane. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 99(D8) :17021–17043.
- [Dlugokencky et al., 2003] Dlugokencky, E. J., Houweling, S., Bruhwiler, L., Masarie, K. A., Lang, P. M., Miller, J. B., and Tans, P. P. (2003). Atmospheric methane levels off : Temporary pause or a new steady-state? *Geophysical Research Letters*, 30(19).

- [Dlugokencky et al., 2009] Dlugokencky, E. J., Bruhwiler, L., White, J. W. C., Emmons, L. K., Novelli, P. C., Montzka, S. A., Masarie, K. A., Lang, P. M., Crotwell, A. M., Miller, J. B., and Gatti, L. V. (2009). Observational constraints on recent increases in the atmospheric CH₄ burden. *Geophysical Research Letters*, 36(18).
- [Dlugokencky et al., 2011] Dlugokencky, E. J., Nisbet, E. G., Fisher, R., and Lowry, D. (2011). Global atmospheric methane : budget, changes and dangers. *Philosophical Transactions of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 369(1943) :2058–2072.
- [Ehret et al., 2008] Ehret, G., Kiemle, C., Wirth, M., Amediek, A., Fix, A., and Houweling, S. (2008). Space-borne remote sensing of CO₂, CH₄, and N₂O by integrated path differential absorption lidar : a sensitivity analysis. *Applied Physics B*, 90(3-4) :593–608.
- [Elbern et al., 1997] Elbern, H., Schmidt, H., and Ebel, A. (1997). Variational data assimilation for tropospheric chemistry modeling. *Journal of Geophysical Research*, 102(D13) :15967–15985.
- [Elbern and Schmidt, 1999] Elbern, H. and Schmidt, H. (1999). A four-dimensional variational chemistry data assimilation scheme for eulerian chemistry transport modeling. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 104(D15) :18583–18598.
- [Emanuel and Raymond, 1993] Emanuel, K. A. and Raymond, D. J. (1993). The representation of cumulus convection in numerical models. *Meteorological Monographs*, 24(46) :1–246.
- [EPA, 2010] EPA (2010). Methane and nitrous oxide from natural sources. report EPA 430-R-10-001, EPA.
- [Etcheto et al., 1991] Etcheto, J., Boutin, J., and Merlivat, L. (1991). Seasonal variation of the CO₂ exchange coefficient over the global ocean using satellite wind speed measurements. *Tellus B*, 43(2) :247–255.
- [Etiope and Milkov, 2004] Etiope, G. and Milkov, A. V. (2004). A new estimate of global methane flux from onshore and shallow submarine mud volcanoes to the atmosphere. *Environmental Geology*, 46(8) :997–1002.
- [Evensen, 1994] Evensen, G. (1994). Sequential data assimilation with a nonlinear quasi-geostrophic model using monte carlo methods to forecast error statistics. *Journal of Geophysical Research : Oceans (1978–2012)*, 99(C5) :10143–10162.
- [Fisher and Lary, 1995] Fisher, M. and Lary, D. J. (1995). Lagrangian four-dimensional variational data assimilation of chemical species. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 121(527) :1681–1704.

- [Fisher et al., 1949] Fisher, R. A., Yates, F., and others (1949). Statistical tables for biological, agricultural and medical research. *Statistical tables for biological, agricultural and medical research.*, (3).
- [Fisher, 1963] Fisher, R. (1963). Yates. *Statistical Tables for Biological, Agricultural and Medical research (Oliver and Boyd, London, 1957)* :42.
- [Forster et al., 2007] Forster, P., Ramaswamy, V., Artaxo, P., Bernsten, T., Betts, R., Fahey, D. W., Haywood, J., Lean, J., Lowe, D. C., Myhre, G., Nganga, J., Prinn, R., Raga, G., Schulz, M., and Van Dorland, R. (2007). Changes in atmospheric constituents and in radiative forcing (Chapter 2).
- [Fortems-Cheiney et al., 2011] Fortems-Cheiney, A., Chevallier, F., Pison, I., Bousquet, P., Szopa, S., Deeter, M. N., and Clerbaux, C. (2011). Ten years of CO emissions as seen from measurements of pollution in the troposphere (MOPITT). *Journal of Geophysical Research*, 116(D5) :D05304.
- [Fortems-Cheiney et al., 2013] Fortems-Cheiney, A., Chevallier, F., Saunio, M., Pison, I., Bousquet, P., Cressot, C., Wang, H. J., Yokouchi, Y., and Artuso, F. (2013). HCFC-22 emissions at global and regional scales between 1995 and 2010 : Trends and variability. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118(13) :7379–7388.
- [Francey et al., 1999] Francey, R. J., Steele, L. P., Langenfelds, R. L., and Pak, B. C. (1999). High precision long-term monitoring of radiatively active and related trace gases at surface sites and from aircraft in the southern hemisphere atmosphere. *Journal of the atmospheric sciences*, 56(2) :279–285.
- [Frankenberg et al., 2005] Frankenberg, C., Meirink, J., Van Weele, M., Platt, U., and Wagner, T. (2005). Assessing methane emissions from global space-borne observations. *Science*, 308(5724) :1010–1014.
- [Frankenberg et al., 2006] Frankenberg, C., Meirink, J., Bergamaschi, P., Goede, A., Heimann, M., Körner, S., Platt, U., Van Weele, M., and Wagner, T. (2006). Satellite cartography of atmospheric methane from SCIAMACHY on board ENVISAT : Analysis of the years 2003 and 2004. *Journal of geophysical research*, 111(D7) :D07303.
- [Fung et al., 1991] Fung, I., John, J., Lerner, J., Matthews, E., Prather, M., Steele, L. P., and Fraser, P. J. (1991). Three-dimensional model synthesis of the global methane cycle. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 96(D7) :13033–13065.
- [Gedney et al., 2004] Gedney, N., Cox, P. M., and Huntingford, C. (2004). Climate feedback from wetland methane emissions. *Geophysical Research Letters*, 31(20).

- [Giglio et al., 2010] Giglio, L., Randerson, J. T., van derWerf, G. R., Kasibhatla, P. S., Collatz, G. J., Morton, D. C., and DeFries, R. S. (2010). Assessing variability and long-term trends in burned area by merging multiple satellite fire products. *Biogeosciences*, 7(3).
- [Gilbert and Lemaréchal, 1989] Gilbert, J. C. and Lemaréchal, C. (1989). Some numerical experiments with variable-storage quasi-newton algorithms. *Mathematical programming*, 45(1-3) :407–435.
- [GLOBALVIEW-CH4, 2009] GLOBALVIEW-CH4 (2009). Cooperative atmospheric data integration project - methane. *CD-ROM, NOAA ESRL, Boulder, Colorado*.
- [Gurney et al., 2002] Gurney, K. R., Law, R. M., Denning, A. S., Rayner, P. J., Baker, D., Bousquet, P., Bruhwiler, L., Chen, Y.-H., Ciais, P., Fan, S., Fung, I. Y., Gloor, M., Heimann, M., Higuchi, K., John, J., Maki, T., Maksyutov, S., Masarie, K., Peylin, P., Prather, M., Pak, B. C., Randerson, J., Sarmiento, J., Taguchi, S., Takahashi, T., and Yuen, C.-W. (2002). Towards robust regional estimates of CO₂ sources and sinks using atmospheric transport models. *Nature*, 415(6872) :626–630.
- [Hamill and Snyder, 2000] Hamill, T. M. and Snyder, C. (2000). A hybrid ensemble kalman filter-3d variational analysis scheme. *Monthly Weather Review*, 128(8) :2905–2919.
- [Hauglustaine et al., 2004] Hauglustaine, D., Hourdin, F., Jourdain, L., Filiberti, M., Walters, S., Lamarque, J., and Holland, E. (2004). Interactive chemistry in the laboratoire de météorologie dynamique general circulation model : Description and background tropospheric chemistry evaluation. *J. Geophys. Res*, 109 :4314–4357.
- [Hourdin et al., 2006] Hourdin, F., Musat, I., Bony, S., Braconnot, P., Codron, F., Dufresne, J., Fairhead, L., Filiberti, M., Friedlingstein, P., Grandpeix, J., et al. (2006). The LMDZ4 general circulation model : climate performance and sensitivity to parametrized physics with emphasis on tropical convection. *Climate Dynamics*, 27(7) :787–813.
- [Houweling et al., 1999] Houweling, S., Kaminski, T., Dentener, F., Lelieveld, J., and Heimann, M. (1999). Inverse modeling of methane sources and sinks using the adjoint of a global transport model. *Journal of Geophysical Research*, 104(D21) :26–137.
- [Immig, 1996] Immig, I. (1996). The rumen and hindgut as source of ruminant methanogenesis. *Environmental Monitoring and Assessment*, 42(1-2) :57–72.
- [Jacquinet-Husson et al., 2008] Jacquinet-Husson, N., Scott, N., Chédin, A., Crépeau, L., Armante, R., Capelle, V., Orphal, J., Coustenis, A., Boone,

- C., Poulet-Crovisier, N., et al. (2008). The geisa spectroscopic database : Current and future archive for earth and planetary atmosphere studies. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 109(6) :1043–1059.
- [Jolivel and Allard, 2013] Jolivel, M. and Allard, M. (2013). Thermokarst and export of sediment and organic carbon in the sheldrake river watershed, nunavik, canada. *Journal of Geophysical Research : Earth Surface*, 118(3) :1729–1745.
- [Kai et al., 2011] Kai, F. M., Tyler, S. C., Randerson, J. T., and Blake, D. R. (2011). Reduced methane growth rate explained by decreased northern hemisphere microbial sources. *Nature*, 476(7359) :194–197.
- [Kaminski et al., 2001] Kaminski, T., Rayner, P. J., Heimann, M., and Enting, I. G. (2001). On aggregation errors in atmospheric transport inversions. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 106(D5) :4703–4715.
- [Kanakidou, 1988] Kanakidou, M. (1988). *Contribution à l'étude des sources des hydrocarbures légers non méthaniques dans l'atmosphère*. PhD thesis, Paris 7.
- [Kaplan, 2001] Kaplan, J. O. (2001). *Geophysical Applications of Vegetation Modeling*. PhD thesis, Lund University.
- [Kaplan, 2002] Kaplan, J. O. (2002). Wetlands at the last glacial maximum : Distribution and methane emissions. *Geophysical Research Letters*, 29(6).
- [Keppler et al., 2006] Keppler, F., Hamilton, J. T. G., Braß, M., and Röckmann, T. (2006). Methane emissions from terrestrial plants under aerobic conditions. *Nature*, 439(7073) :187–191.
- [Kirschbaum et al., 2007] Kirschbaum, M. U., Niinemets, U., Bruhn, D., and Winters, A. J. (2007). How important is aerobic methane release by plants. *Functional Plant Science and Biotechnology*, 1(1) :138–145.
- [Kirschke et al., 2013] Kirschke, S., Bousquet, P., Ciais, P., Saunoy, M., Canadell, J. G., Dlugokencky, E. J., Bergamaschi, P., Bergmann, D., Blake, D. R., and Bruhwiler, L. (2013). Three decades of global methane sources and sinks. *Nature Geoscience*, 6(10) :813–823.
- [Klauda and Sandler, 2005] Klauda, J. B. and Sandler, S. I. (2005). Global distribution of methane hydrate in ocean sediment. *Energy & Fuels*, 19(2) :459–470.
- [Koppmann et al., 2005] Koppmann, R., Czapiewski, K. V., and Reid, J. (2005). A review of biomass burning emissions, Part I : gaseous emissions of carbon monoxide, methane, volatile organic compounds, and nitrogen containing compounds. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 5(5) :10455–10516.

- [Kvenvolden et al., 1993] Kvenvolden, K. A., Ginsburg, G. D., and Soloviev, V. A. (1993). Worldwide distribution of subaquatic gas hydrates. *Geo-Marine Letters*, 13(1) :32–40.
- [Kvenvolden and Lorenson, 2001] Kvenvolden, K. A. and Lorenson, T. D. (2001). Natural Gas Hydrates : Occurrence, Distribution, and Detection (Chapter The global occurrence of natural gas hydrate). In Paull, C. K. and Dillon, W. P. :3–18.
- [Lambert and Schmidt, 1993] Lambert, G. and Schmidt, S. (1993). Reevaluation of the oceanic flux of methane : Uncertainties and long term variations. *Chemosphere*, 26(1) :579–589.
- [Lassey et al., 2007] Lassey, K. R., Lowe, D. C., and Smith, A. M. (2007). The atmospheric cycling of radiomethane and the "fossil fraction" of the methane source. *Atmos. Chem. Phys.*, 7(8) :2141–2149.
- [Lawrence and Slater, 2005] Lawrence, D. M. and Slater, A. G. (2005). A projection of severe near-surface permafrost degradation during the 21st century. *Geophysical Research Letters*, 32(24) :L24401.
- [Lelieveld et al., 2004] Lelieveld, J., Dentener, F. J., Peters, W., and Krol, M. C. (2004). On the role of hydroxyl radicals in the self-cleansing capacity of the troposphere. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4(9/10) :2337–2344.
- [Lima et al., 2008] Lima, I. B., Ramos, F. M., Bambace, L. A., and Rosa, R. R. (2008). Methane emissions from large dams as renewable energy resources : a developing nation perspective. *Mitigation and Adaptation Strategies for Global Change*, 13(2) :193–206.
- [Locatelli et al., 2013] Locatelli, R., Bousquet, P., Chevallier, F., Fortems-Cheney, A., Szopa, S., Saunois, M., Agustí-Panareda, A., Bergmann, D., Bian, H., Cameron-Smith, P., Chipperfield, M. P., Gloor, E., Houweling, S., Kawa, S. R., Krol, M., Patra, P. K., Prinn, R. G., Rigby, M., Saito, R., and Wilson, C. (2013). Impact of transport model errors on the global and regional methane emissions estimated by inverse modelling. *Atmos. Chem. Phys.*, 13(19) :9917–9937.
- [Locatelli et al., 2014] Locatelli, R., Bousquet, P., Hourdin, F., Saunois, M., Cozic, A., Couvreux, F., Grandpeix, J.-Y., Lefebvre, M.-P., Rio, C., Bergamaschi, P., et al. (2014). Atmospheric transport and chemistry of trace gases in lmdz5b : evaluation and implications for inverse modelling. *Geoscientific Model Development Discussions*, 7 :4993–5048.
- [Lowe et al., 1991] Lowe, D. C., Brenninkmeijer, C. A. M., Tyler, S. C., and Dlugokencky, E. J. (1991). Determination of the isotopic composition of

- atmospheric methane and its application in the antarctic. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 96(D8) :15455–15467.
- [MacDonald et al., 1998] MacDonald, J. A., Fowler, D., Hargreaves, K. J., Skiba, U., Leith, I. D., and Murray, M. B. (1998). Methane emission rates from a northern wetland ; response to temperature, water table and transport. *Atmospheric Environment*, 32(19) :3219–3227.
- [Masarie and Tans, 1995] Masarie, K. A. and Tans, P. P. (1995). Extension and integration of atmospheric carbon dioxide data into a globally consistent measurement record. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 100(D6) :11593–11610.
- [Matsueda et al., 2004] Matsueda, H., Sawa, Y., Wada, A., Inoue, H. Y., Suda, K., Hirano, Y., Tsuboi, K., and Nishioka, S. (2004). Methane standard gases for atmospheric measurements at the MRI and JMA and intercomparison experiments. *Papers in Meteorology and Geophysics*, 54(3) :91–113.
- [McLeod et al., 2008] McLeod, A. R., Fry, S. C., Loake, G. J., Messenger, D. J., Reay, D. S., Smith, K. A., and Yun, B.-W. (2008). Ultraviolet radiation drives methane emissions from terrestrial plant pectins. *New Phytologist*, 180(1) :124–132.
- [Milkov, 2004] Milkov, A. V. (2004). Global estimates of hydrate-bound gas in marine sediments : how much is really out there? *Earth-Science Reviews*, 66(3–4) :183–197.
- [Monteil et al., 2013] Monteil, G., Houweling, S., Butz, A., Guerlet, S., Schepers, D., Hasekamp, O., Frankenberg, C., Scheepmaker, R., Aben, I., and Röckmann, T. (2013). Comparison of CH₄ inversions based on 15 months of GOSAT and SCIAMACHY observations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118(20) :11807–11823.
- [Montzka et al., 2000] Montzka, S. A., Spivakovsky, C. M., Butler, J. H., Elkins, J. W., Lock, L. T., and Mondeel, D. J. (2000). New observational constraints for atmospheric hydroxyl on global and hemispheric scales. *Science*, 288(5465) :500–503.
- [Montzka, 2011] Montzka, S. A. (2011). Small interannual variability of global atmospheric hydroxyl. *Science*, 331(6013) :67–69.
- [Olivier and Berdowski, 2001] Olivier, J. G. J. and Berdowski, J. J. M. (2001). *Global emission sources and sinks*. Balkema.
- [Olson et al., 1989] Olson, J. S., Stanley, L., Colby, J., and Ohrenschall, M. (1989). Olson world ecosystems (WE1.4).
- [Pan et al., 2014] Pan, D., Tao, L., Sun, K., Golston, L., Zhang, Y., Zhu, T. and Zondlo, M.A. Methane Emissions from Natural Gas Vehicles in Beijing,

- Baoding, and Shijiazhuang, China during CAREBEIJING Field Campaign. (2014). *AGU Fall Meeting Abstracts*, 1 :L08.
- [Parker et al., 2011] Parker, R., Boesch, H., Cogan, A., Fraser, A., Feng, L., Palmer, P. I., Messerschmidt, J., Deutscher, N., Griffith, D. W. T., Notholt, J., Wennberg, P. O., and Wunch, D. (2011). Methane observations from the greenhouse gases observing SATellite : Comparison to ground-based TCCON data and model calculations. *Geophysical Research Letters*, 38(15) :L15807.
- [Patra et al., 2011] Patra, P. K., Houweling, S., Krol, M., Bousquet, P., Belikov, D., Bergmann, D., Bian, H., Cameron-Smith, P., Chipperfield, M. P., and Corbin, K. (2011). TransCom model simulations of CH₄ and related species : linking transport, surface flux and chemical loss with CH₄ variability in the troposphere and lower stratosphere. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(24) :12813–12837.
- [Peters et al., 2005] Peters, W., Miller, J. B., Whitaker, J., Denning, A. S., Hirsch, A., Krol, M. C., Zupanski, D., Bruhwiler, L., and Tans, P. P. (2005). An ensemble data assimilation system to estimate CO₂ surface fluxes from atmospheric trace gas observations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 110(D24) :D24304.
- [Petit et al., 1999] Petit, J. R., Jouzel, J., Raynaud, D., Barkov, N. I., Barnola, J.-M., Basile, I., Bender, M., Chappellaz, J., Davis, M., Delaygue, G., Delmotte, M., Kotlyakov, V. M., Legrand, M., Lipenkov, V. Y., Lorius, C., Pépin, L., Ritz, C., Saltzman, E., and Stievenard, M. (1999). Climate and atmospheric history of the past 420,000 years from the vostok ice core, antarctica. *Nature*, 399(6735) :429–436.
- [Pétron et al., 2013] Pétron, G., Frost, G. J., Trainer, M. K., Miller, B. R., Dlugokencky, E. J., and Tans, P. (2013). Reply to comment on “hydrocarbon emissions characterization in the colorado front range—a pilot study” by michael a. levi. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118(1) :236–242.
- [Pison et al., 2009] Pison, I., Bousquet, P., Chevallier, F., Szopa, S., and Hauglustaine, D. (2009). Multi-species inversion of CH₄, CO and H₂ emissions from surface measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(14) :5281–5297.
- [Pison et al., 2013] Pison, I., Ringeval, B., Bousquet, P., Prigent, C., and Papa, F. (2013). Stable atmospheric methane in the 2000s : key-role of emissions from natural wetlands. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(23) :11609–11623.

- [Prinn et al., 2005] Prinn, R. G., Huang, J., Weiss, R. F., Cunnold, D. M., Fraser, P. J., Simmonds, P. G., McCulloch, A., Harth, C., Reimann, S., Salameh, P., O'Doherty, S., Wang, R. H. J., Porter, L. W., Miller, B. R., and Krummel, P. B. (2005). Evidence for variability of atmospheric hydroxyl radicals over the past quarter century. *Geophysical Research Letters*, 32(7).
- [Ridgwell et al., 1999] Ridgwell, A. J., Marshall, S. J., and Gregson, K. (1999). Consumption of atmospheric methane by soils : A process-based model. *Global Biogeochemical Cycles*, 13(1) :59–70.
- [Rigby et al., 2008] Rigby, M., Prinn, R., Fraser, P., Simmonds, P., Langenfelds, R., Huang, J., Cunnold, D., Steele, L., Krummel, P., Weiss, R., et al. (2008). Renewed growth of atmospheric methane. *Geophysical Research Letters*, 35(22) :L22805.
- [Rodgers and Connor, 2003] Rodgers, C. D. and Connor, B. J. (2003). Intercomparison of remote sounding instruments. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D3) :4116.
- [Sanderson, 1996] Sanderson, M. G. (1996). Biomass of termites and their emissions of methane and carbon dioxide : A global database. *Global Biogeochemical Cycles*, 10(4) :543–557.
- [Sass et al., 1991] Sass, R. L., Fisher, F. M., Turner, F. T., and Jund, M. F. (1991). Methane emission from rice fields as influenced by solar radiation, temperature, and straw incorporation. *Global Biogeochemical Cycles*, 5(4) :335–350.
- [Schepers et al., 2012] Schepers, D., Guerlet, S., Butz, A., Landgraf, J., Frankenberg, C., Hasekamp, O., Blavier, J.-F., Deutscher, N. M., Griffith, D. W. T., Hase, F., Kyro, E., Morino, I., Sherlock, V., Sussmann, R., and Aben, I. (2012). Methane retrievals from greenhouse gases observing satellite (GOSAT) shortwave infrared measurements : Performance comparison of proxy and physics retrieval algorithms. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 117(D10) :D10307.
- [Scheutz et al., 2009] Scheutz, C., Bogner, J., Visscher, A. D., Gebert, J., Hilger, H., Huber-Humer, M., Kjeldsen, P., and Spokas, K. (2009). Microbial methane oxidation processes and technologies for mitigation of landfill gas emissions. *Waste Management & Research*.
- [Schneising et al., 2014] Schneising, O., Burrows, J. P., Dickerson, R. R., Buchwitz, M., Reuter, M., and Bovensmann, H. (2014). Remote sensing of fugitive methane emissions from oil and gas production in north american tight geologic formations. *Earth's Future*, 2(10) :548–558.
- [Shakhova et al., 2010] Shakhova, N., Semiletov, I., Salyuk, A., Yusupov, V., Kosmach, D., and Gustafsson, Ö. (2010). Extensive methane venting to

- the atmosphere from sediments of the east siberian arctic shelf. *Science*, 327(5970) :1246–1250.
- [Shindell et al., 2005] Shindell, D. T., Faluvegi, G., Bell, N., and Schmidt, G. A. (2005). An emissions-based view of climate forcing by methane and tropospheric ozone. *Geophysical Research Letters*, 32(4).
- [Simpson et al., 2012] Simpson, I. J., Sulbaek Andersen, M. P., Meinardi, S., Bruhwiler, L., Blake, N. J., Helmig, D., Rowland, F. S., and Blake, D. R. (2012). Long-term decline of global atmospheric ethane concentrations and implications for methane. *Nature*, 488(7412) :490–494.
- [Sloan, 2003] Sloan, E. D. (2003). Fundamental principles and applications of natural gas hydrates. *Nature*, 426(6964) :353–363.
- [Spahni et al., 2011] Spahni, R., Wania, R., Neef, L., van Weele, M., Pison, I., Bousquet, P., Frankenberg, C., Foster, P. N., Joos, F., Prentice, I. C., and van Velthoven, P. (2011). Constraining global methane emissions and uptake by ecosystems. *Biogeosciences*, 8(6) :1643–1665.
- [Stevenson et al., 2006] Stevenson, D., Dentener, F., Schultz, M., Ellingsen, K., Van Noije, T., Wild, O., Zeng, G., Amann, M., Atherton, C., Bell, N., et al. (2006). Multimodel ensemble simulations of present-day and near-future tropospheric ozone. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 111(D8).
- [Sugimoto et al., 1998] Sugimoto, A., Inoue, T., Kirtibutr, N., and Abe, T. (1998). Methane oxidation by termite mounds estimated by the carbon isotopic composition of methane. *Global Biogeochemical Cycles*, 12(4) :595–605.
- [Talagrand and Courtier, 1987] Talagrand, O. and Courtier, P. (1987). Variational assimilation of meteorological observations with the adjoint vorticity equation. I : Theory. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 113(478) :1311–1328.
- [Tarnocai et al., 2009] Tarnocai, C., Canadell, J. G., Schuur, E. a. G., Kuhry, P., Mazhitova, G., and Zimov, S. (2009). Soil organic carbon pools in the northern circumpolar permafrost region. *Global Biogeochemical Cycles*, 23(2).
- [Tiedtke, 1989] Tiedtke, M. (1989). A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in large-scale models. *Monthly Weather Review*, 117(8) :1779–1800.
- [Tisdale, 2012] Tisdale, B. (2012). Who turned on the heat? - The Unsuspected Global Warming Culprit, El Niño-Southern Oscillation *Wordpress.com*, Ebook.

- [Tollefson, 2012] Tollefson, J. (2012). Air sampling reveals high emissions from gas field. *Nature*, 482(7384) :139–140.
- [Tollefson, 2013] Tollefson, J. (2013). Methane leaks erode green credentials of natural gas. *Nature*, 493(7430) :12–12.
- [Tyler et al., 1997] Tyler, S. C., Bilek, R. S., Sass, R. L., and Fisher, F. M. (1997). Methane oxidation and pathways of production in a texas paddy field deduced from measurements of flux, $\delta^{13}C$, and δd of CH₄. *Global Biogeochemical Cycles*, 11(3) :323–348.
- [van der Werf et al., 2010] van der Werf, G., Randerson, J., Giglio, L., Collatz, G., Mu, M., Kasibhatla, P., Morton, D., DeFries, R., Jin, Y., and van Leeuwen, T. (2010). Global fire emissions and the contribution of deforestation, savanna, forest, agricultural, and peat fires (1997–2009). *Atmos. Chem. Phys.*, 10(23) :11707–11735.
- [Veefkind et al., 2012] Veefkind, J. P., Aben, I., McMullan, K., Förster, H., de Vries, J., Otter, G., Claas, J., Eskes, H. J., de Haan, J. F., Kleipool, Q., van Weele, M., Hasekamp, O., Hoogeveen, R., Landgraf, J., Snel, R., Tol, P., Ingmann, P., Voors, R., Kruizinga, B., Vink, R., Visser, H., and Levelt, P. F. (2012). TROPOMI on the ESA sentinel-5 precursor : A GMES mission for global observations of the atmospheric composition for climate, air quality and ozone layer applications. *Remote Sensing of Environment*, 120 :70–83.
- [Vigano et al., 2008] Vigano, I., van Weelden, H., Holzinger, R., Keppler, F., McLeod, A., and Röckmann, T. (2008). Effect of UV radiation and temperature on the emission of methane from plant biomass and structural components. *Biogeosciences*, 5(3) :937–947.
- [Walter et al., 2001] Walter, B. P., Heimann, M., and Matthews, E. (2001). Modeling modern methane emissions from natural wetlands : 1. model description and results. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres (1984–2012)*, 106(D24) :34189–34206.
- [Watt, 1997] Watt, A. D. (1997). *Forests and Insects*. Springer Science & Business Media.
- [Worthy et al., 2009] Worthy, D. E. J., Chan, E., Ishizawa, M., Chan, D., Poss, C., Dlugokencky, E. J., Maksyutov, S., and Levin, I. (2009). Decreasing anthropogenic methane emissions in europe and siberia inferred from continuous carbon dioxide and methane observations at alert, canada. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 114(D10) :D10301.
- [Yokota et al., 2009] Yokota, T., Yoshida, Y., Eguchi, N., Ota, Y., Tanaka, T., Watanabe, H., and Maksyutov, S. (2009). Global concentrations of

CO₂ and CH₄ retrieved from GOSAT : First preliminary results. *Sola*,
5 :160–163.

ANNEXE **A**

ACRONYMES

Acronyme	Signification
AGAGE	Advanced Global Atmospheric Gases Experiment
AMSU	Advanced Micro-wave Sounder Unit
CCRT	Centre de Calcul Recherche et Technologie
CEPMMT	Centre Européen de Prévision Météorologique à Moyen Terme
CNES	Centre Nationale des Études Spatiales
CSIRO	Commonwealth Scientific and Industrial Research Organisation
CTM	Chemistry Transport Model
ECMWF	European Centre for Medium-range Weather Forecasts
EDGAR	Emission Database for Global Atmospheric Research
ENVISAT	ENVIronmental SATellite
GEISA	Gestion et Étude des Informations Spectroscopiques Atmosphériques
GFED	Global Fire Emission Database
GIEC	Groupe d'Experts Intergouvernemental sur l'Évolution du Climat
GOSAT	Greenhouse gases Observing SATellite
IASI	Interféromètre Atmosphérique de Sondage Infrarouge
INCA	INteraction avec la Chimie et les Aérosols
IPCC	Intergovernmental Panel for Climate Change
IPSL	Institut Pierre Simon Laplace
JRC	Joint Research Centre
LMD	Laboratoire de Météorologie Dynamique
LMDz	Modèle de circulation générale du LMD en version zoomée
LSCE	Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement
MetOp	Meteorological Operational satellites
MERLIN	Methane Remote Sensing Lidar Mission
NASA	National Aeronautics and Space Administration
NIES	National Institute for Environmental Studies
NOAA	National Ocean and Atmosphere Administration
ONU	Organisation des Nations Unies
ONUAA	Organisation des Nations Unies pour l'Alimentation et l'Agriculture
OMM	Organisation Météorologique Mondiale
PYVAR	module d'inversion VARIationnel codé en PYthon
SACS	Simplified Assimilation Chemical System
SCIAMACHY	SCanning Imaging Absorption spectroMter for Atmospheric CHartographY
S-5P	Sentinel-5 Precursor
TANSO-FTS	Thermal and Near infrared Sensor for carbon Observation- Fourier Transform Spectrometer
TIGR	Thermodynamic Initial Guess Guess Retrieval
WDCGG	World Data Center for Greenhouse Gases
WMO	Woldr Meteorological Organization

Résumé

Le méthane est un puissant gaz à effet de serre direct et indirect, dont l'évolution récente reste mal comprise et débattue. L'objectif de ma thèse est l'étude de la capacité des nouvelles mesures du méthane par satellite à quantifier les flux annuels de méthane et leurs variations interannuelles. J'assimile les observations de trois systèmes d'observation satellitaire et du réseau de mesures traditionnelles de surface dans un système d'inversion bayésien variationnel sur des fenêtres temporelles longues cohérentes avec la durée de vie du méthane. Dans un premier temps, je montre que le réglage objectif des statistiques d'erreur de chaque système permet un bon accord entre les estimations des bilans annuels régionaux de méthane obtenus avec TANSO-FTS, IASI et le réseau de surface. Ce résultat permet d'envisager la combinaison de ces mesures pour mieux contraindre les estimations des émissions de méthane. En revanche, les résultats obtenus avec les mesures de SCIAMACHY alors en fin de vie, restent incohérents, probablement à cause d'une structure d'erreur difficile à modéliser. Dans un deuxième temps, je montre que le réseau de surface et IASI détectent la plupart des anomalies de flux de méthane en Afrique du Sud et en Asie de l'Est alors que TANSO-FTS détecte la quasi-totalité des anomalies en Afrique du Nord. De plus, négativement corrélées à l'humidité du sol, les anomalies récentes en Afrique du Nord et en Asie de l'Est suggèrent, respectivement, une augmentation des émissions des feux et un changement de pratique dans la riziculture. Je mets aussi en évidence une contribution majoritaire des terres des basses latitudes de l'hémisphère nord à la tendance récente du méthane.

Abstract

Methane is a powerful greenhouse gas with direct and indirect effect on global warming but its recent trend is misunderstood and still debated. My PhD aims at evaluating the ability of new satellite methane measurements to quantify the methane annual fluxes and their interannual variability. I assimilate the measurements of three satellite observing systems and the traditional observing surface network in a bayesian variational inversion system over long temporal windows consistent with the methane lifetime. First, I show that the tuning of input error statistics of each observing system allows a good agreement between the annual regional methane budgets inferred from TANSO-FTS, IASI and the surface network. This result opens the possibility to combine these measurements to better constrain the methane emission estimates. However, the results inferred from SCIAMACHY measurements acquired at the end of the life of the instrument, remain inconsistent, probably because of an error structure that is difficult to model. Secondly, I show that the surface network and IASI detect the main methane flux anomalies in South Africa and in East Asia whereas TANSO-FTS detects almost all the anomalies in North Africa. Moreover, negatively correlated with soil moisture, the recent anomalies observed in North Africa and in East Asia suggest, respectively, an increase of fire emissions and a change in rice culture practices. I also show that the lands over the Northern Hemisphere low latitudes have a major contribution to the recent methane trend.