



**HAL**  
open science

# Émissions de CO<sub>2</sub> estimées par données satellitaires sur les villes à forte croissance démographique

Alexandre Danjou

► **To cite this version:**

Alexandre Danjou. Émissions de CO<sub>2</sub> estimées par données satellitaires sur les villes à forte croissance démographique. Océan, Atmosphère. Université Paris-Saclay, 2022. Français. NNT : 2022UP-ASJ029 . tel-04042933

**HAL Id: tel-04042933**

**<https://theses.hal.science/tel-04042933v1>**

Submitted on 23 Mar 2023

**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.

# Émissions de CO<sub>2</sub> estimées par données satellitaires sur les villes à forte croissance démographique

*Space-borne CO<sub>2</sub> emissions estimates for fast-growing cities*

## Thèse de doctorat de l'université Paris-Saclay

École doctorale n°129 : sciences de l'environnement d'Île-de-France (SEIF)  
Spécialité de doctorat : Instrumentation, télédétection, observation et  
techniques spatiales pour l'océan, l'atmosphère et le climat  
Graduate School : Géosciences, climat, environnement et planètes. Référent :  
Université de Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines

Thèse préparée dans l'unité de recherche **LSCE** (Université Paris-Saclay, CNRS, CEA, UVSQ), sous  
la direction de **François-Marie BRÉON**, le co-encadrement de **Grégoire BROQUET**, chargé de  
recherche, et de **Thomas LAUVAUX**, professeur.

Thèse soutenue à Paris-Saclay, le 13 décembre 2022, par

**Alexandre DANJOU**

### Composition du jury

Membres du jury avec voix délibérative

**Karine Sartelet**  
Directrice de Recherche, CERA  
**Daniel Jacob**  
Professeur, Harvard University  
**Trissevgeni Stavrakou**  
Cheffe de travaux principale, BIRA-IASB  
**Dominik Brunner**  
Professeur titulaire, EMPA  
**Gaëlle Dufour**  
Directrice de recherche, LISA

Présidente  
Rapporteur & Examineur  
Rapporteuse & Examinatrice  
Examineur  
Examinatrice

**Titre :** Émissions de CO<sub>2</sub> estimées par données satellitaires sur les villes à forte croissance démographique.....

**Mots clés :** CO<sub>2</sub>, ville, panache, satellite

**Résumé :**

Les villes sont responsables de plus de la moitié des émissions de gaz à effet de serre et beaucoup n'ont aujourd'hui pas les infrastructures nécessaires à l'élaboration de leur bilan d'émissions. La mesure des panaches de CO<sub>2</sub> des villes par imagerie satellitaire, couplée à des méthodes d'inversion atmosphérique, pourraient permettre de quantifier les émissions directes de CO<sub>2</sub> des villes, ou a minima détecter des tendances dans leur évolution.

Nous étudions ici la capacité de méthodes d'in-

version de panache à faible temps de calcul à estimer les émissions urbaines. Avec des données synthétiques, nous étudions l'erreur sur l'estimation faite par ces méthodes et sa sensibilité aux conditions d'observation. Nous définissons des critères pour sélectionner les situations où l'estimation est la plus précise. Nous appliquons ensuite nos méthodes aux images d'OCO-3 et validons la pertinence de nos critères, tout en montrant l'importance de l'erreur apparente et en donnant des pistes d'amélioration.

**Titre :** Estimation of urban CO<sub>2</sub> emissions with space-borne data for fast-growing cities.....

**Keywords :** CO<sub>2</sub>, urban, plume, satellite

**Abstract :** Cities are responsible for more than half of the greenhouse gas emissions and many of them do not have the necessary infrastructure to compile their emissions balance. The measurement of CO<sub>2</sub> plumes from cities by satellite imagery, coupled with atmospheric inversion methods, could allow to quantify the direct CO<sub>2</sub> emissions of cities, or at least detect trends in their evolution.

We study here the ability of plume inversion me-

thods with a low computational cost to estimate urban emissions. With synthetic data, we study the error on the estimation made by these methods and its sensitivity to the observation conditions. We define criteria to select the situations where the estimation is the most accurate. We then apply our methods to the OCO-3 images and validate the relevance of our criteria, while showing the importance of the apparent error and giving improvement opportunities.

## Table des matières

<b>1 Flux de CO<sub>2</sub> atmosphérique et cycle du carbone</b>	<b>9</b>
1.1 Évolution de la concentration de CO <sub>2</sub> atmosphérique	9
1.2 Budget de CO <sub>2</sub>	10
1.2.1 Réservoirs de carbone	11
1.2.2 Sources	12
1.2.3 Puits	13
1.2.4 Bilan	14
1.3 Suivi des émissions de CO <sub>2</sub> anthropiques	14
<b>2 Quantification des émissions de CO<sub>2</sub> par satellites à l'échelle locale</b>	<b>17</b>
2.1 Principe de l'observation satellitaire de CO <sub>2</sub>	17
2.2 Missions permettant une quantification des sources anthropiques de CO <sub>2</sub>	18
2.2.1 OCO-2	18
2.2.2 OCO-3	21
2.2.3 CO2M	21
2.2.4 Futures missions	21
2.3 Utilisation pour estimer les émissions des villes	22
2.4 Objectifs et structure de la thèse	23
<b>3 Sélection des méthodes d'inversion de panache</b>	<b>25</b>
3.1 Résumé de l'article	26
3.2 Article	26
3.2.1 Introduction	27
3.2.2 Idealized simulation and experiment protocol	29
3.2.3 Inversion methods	32
3.2.4 Results	38
3.2.5 Discussion	45
3.2.6 Conclusion	49
3.2.7 Author contributions	49
3.2.8 Acknowledgments	50
3.2.9 Annex 1 : Complement on the methodology	50
3.2.10 Annex 2 : Analysis of the different error distributions	55
<b>4 Application préliminaire des méthodes à des données OCO-2 : cas-test sur Lahore</b>	<b>69</b>
4.1 Différence avec les méthodes d'inversion retenues dans le chapitre précédent	69
4.2 Résumé de l'article	70
<b>5 Définition de critères de discrimination des conditions d'observations</b>	<b>71</b>
5.1 Simulations des images de XCO <sub>2</sub> sur un grand ensemble de villes	72
5.1.1 Simulation du transport de CO <sub>2</sub> et traçage des signaux associés aux émissions des villes d'intérêt	73
5.1.2 Génération des pseudo-images	74
5.1.3 Définition des limites des zones ciblées	74

5.2	Méthodes d'inversion et d'analyse . . . . .	76
5.2.1	Description des méthodes d'inversion . . . . .	76
5.2.2	Principe général de l'analyse des sensibilités aux conditions d'observations . . . . .	76
5.2.3	Liste des variables . . . . .	79
5.3	Résultats . . . . .	79
5.3.1	Problème lié à l'extension spatiale des panaches et abandon de l'analyse des composantes de l'erreur . . . . .	79
5.3.2	Résultats généraux et comparaison des méthodes d'inversions . . . . .	81
5.3.3	Analyse préliminaire des sensibilités de l'erreur aux conditions d'observation . . . . .	83
5.3.4	Application de la méthode par arbres de décision aux inversions obtenues avec GP2.. . . .	84
5.3.5	Application aux autres méthodes . . . . .	87
5.4	Discussion . . . . .	88
5.5	Conclusion . . . . .	88
<b>6</b>	<b>Application aux données réelles OCO-3</b>	<b>91</b>
6.1	Description des données utilisées . . . . .	93
6.1.1	Données XCO <sub>2</sub> : SAMs OCO-3 . . . . .	93
6.1.2	Données météo : ERA5 . . . . .	93
6.1.3	Données NO <sub>2</sub> : TROPOMI . . . . .	94
6.1.4	Données émissions : inventaire ODIAC . . . . .	94
6.2	Méthode . . . . .	95
6.2.1	Description des méthodes d'inversion . . . . .	95
6.2.2	Estimation des critères de sélection des SAMs définis au chapitre précédent . . . . .	96
6.2.3	Variables retenues pour l'analyse de la sensibilité de l'écart inversion-inventaire . . . . .	97
6.3	Illustration des différents types de SAMs et comportements des inversions . . . . .	98
6.4	Comparaison des résultats des inversions obtenus avec les pseudo-images du chapitre 5 et avec les SAMs . . . . .	100
6.4.1	Performance du traitement automatique . . . . .	100
6.4.2	Étude de la sensibilité de l'écart inversion-inventaire aux conditions d'observation . . . . .	101
6.4.3	Vérification des critères de sélection définis dans le chapitre précédent . . . . .	103
6.4.4	Étude de nouveaux critères . . . . .	103
6.4.5	Comparaison des sensibilités de l'écart inversion-inventaire aux estimation d'émissions de l'inventaire et de l'inversion . . . . .	105
6.5	Étude des variations temporelles des émissions . . . . .	106
6.6	Focus sur certaines villes . . . . .	106
6.7	Discussion . . . . .	108
6.8	Conclusion . . . . .	110
6.9	Annexe : SAMs utilisées pour les estimations de la section 6.6 . . . . .	110
<b>7</b>	<b>Annexe : Article sur les données OCO-2 à proximité de Lahore</b>	<b>133</b>

## Résumé long

Les villes sont responsables de plus de la moitié des émissions de gaz à effet de serre. Alors que de nombreuses villes se sont engagées sur des trajectoires de réduction d'émissions, beaucoup n'ont pas les infrastructures nécessaires à l'élaboration de leur bilan d'émissions. La mesure des panaches de CO<sub>2</sub> des villes par imagerie satellitaire, couplée à des méthodes d'inversion atmosphérique, pourraient permettre de quantifier les émissions directes de CO<sub>2</sub> des villes, ou tout au moins détecter des tendances dans leur évolution.

OCO-3, avec son mode Snapshot Area Maps (SAMs), est le premier instrument donnant des images 2D ( $\approx 80\text{km} \times 80\text{km}$ ) de la colonne totale de CO<sub>2</sub> à haute résolution ( $\approx 2\text{km} \times 2\text{km}$ ). Ces SAMs ciblent notamment les panaches atmosphériques de CO<sub>2</sub> provenant de villes et de centrales thermiques, dans le but de quantifier leurs émissions. Les méthodes pour estimer ces émissions doivent être fiables et rapides pour traiter toutes les images disponibles (plusieurs milliers pour OCO-3), dont le nombre va augmenter avec les missions CO2M et GeoCarb. Les méthodes d'inversion par calcul direct de flux (Integrated Mass Enhancement, Cross-Sectionnal et Source Pixel) ou avec un modèle de panache gaussien nécessitent peu de temps de calcul. Cette thèse a pour but d'évaluer la précision de ces méthodes d'inversion de panache de CO<sub>2</sub> et d'étudier les cas favorables en termes de cible et de condition d'observation. Ceci est fait dans un cadre théorique (simulations du transport atmosphérique) et en appliquant les méthodes aux SAMs acquis.

Nous quantifions et analysons les différentes sources d'erreurs de ces méthodes en détail en utilisant des pseudo-images satellitaires de panaches, d'abord sur Paris puis sur 31 villes dans le monde. L'erreur de ces méthodes est principalement due aux erreurs sur l'estimation de la concentration de fond (concentration en XCO<sub>2</sub> qui ne provient pas des émissions de la ville) et sur l'estimation du vent effectif qui a transporté le panache. Nous montrons, avec une méthode d'apprentissage par arbre de décision, la sensibilité de l'erreur sur l'estimation des émissions à la variabilité de la direction du vent dans la PBL et au bilan des émissions de la ville. L'ensemble regroupant les pseudo-images pour lesquelles les émissions sont importantes ( $> 2.1\text{ktCO}_2/\text{h}$ ) et la variabilité de la direction du vent faible ( $< 11^\circ$ ) donne un biais et un IQR théorique inférieur à 10% et 60% des émissions, quant celles-ci sont estimées avec la configuration optimale d'inversion avec un panache gaussien.

Nous appliquons enfin nos méthodes aux SAMs d'OCO-3 et montrons que les sensibilités de l'erreur théorique aux 2 paramètres de sélection se retrouvent dans la différence des estimations d'émissions de nos méthodes et d'un inventaire spatialisé (ici ODIAC). Plus de la moitié des SAMs ne sont pas utilisables avec nos méthodes (trop faible nombre de points, faible échantillonnage en aval de la ville,...). Nos estimations d'émissions sont légèrement plus faibles que celles de l'inventaire ODIAC (-10% avec l'inversion utilisant un panache gaussien et après application de notre critère de sélection des SAMs). Nous mettons en évidence une corrélation entre l'écart des estimations inversion-inventaire à l'estimation de l'inventaire sans pouvoir en identifier les raisons. L'IQR de cet écart (191%) est bien plus grand que l'erreur théorique (66%).

Ce travail suggère que l'estimation des émissions de CO<sub>2</sub> urbaines nécessite plus de développement méthodologique pour notamment réduire l'erreur dans l'estimation des concentrations de fond du panache. Cependant, l'erreur sur les champs de vent reste un problème, quelque soit la méthode d'inversion utilisée. Des pistes sont suggérées pour ajouter une couche de sélection aux pseudo-images. Par ailleurs, des images plus fréquentes seront nécessaires pour espérer détecter des tendances dans les émissions des villes à l'échelle pluri-annuelle.



## Liste des acronymes

CS	Cross-Sectionnal (section transverse)
CO2M	CO <sub>2</sub> Monitoring (mission satellitaire européenne dédiée à l'observation des concentrations XCO <sub>2</sub> de l'atmosphère)
ECMWF	European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (centre européen pour les prévisions météorologiques à moyen terme)
ERA5	5 <sup>ème</sup> génération des réanalyses ECMWF
GES	Gaz à Effet de Serre
GP	Gaussian Plume (panache gaussien)
IME	Integrated Mass Enhancement (intégration de l'accroissement de la masse)
IQR	InterQuartile Range (écart inter-quartile)
MAE	Mean Absolute Error (moyenne des valeurs absolues de l'erreur)
OCO	Orbiting Carbon Observatory (noms de missions satellitaires américaines dédiées à l'observation des concentrations XCO <sub>2</sub> de l'atmosphère)
ODIAC	Open-source Data Inventory for Anthropogenic CO <sub>2</sub> (inventaire spatialisé des émissions de CO <sub>2</sub> anthropiques)
OLAM	Ocean-Land-Atmosphere Model (modèle de transport atmosphérique)
PBL	Planetary Boundary Layer (couche limite planétaire)
PIB	Produit Intérieur Brut
SAM	Snapshot Area Map (nom des images OCO-3 de concentration de XCO <sub>2</sub> )
TCCON	Total Carbon Column Observing Network (réseau d'observation au sol des concentrations en XCO <sub>2</sub> de l'atmosphère)
TROPOMI	TROPOspheric Monitoring Instrument (instrument satellitaire mesurant, entre autres, la concentration en NO <sub>2</sub> dans la troposphère)
WRF	Weather Research and Forecasting (modèle météorologique)





# 1 - Flux de CO<sub>2</sub> atmosphérique et cycle du carbone

Cette thèse est centrée sur l'étude des émissions urbaines de CO<sub>2</sub> à l'aide d'images satellitaires. Ces deux premiers chapitres introductifs présentent le cycle du carbone avec un focus sur les échanges de CO<sub>2</sub> concernant l'atmosphère pour montrer la part des villes dans ces échanges (chapitre 1) et l'état actuel de l'observation spatiale du CO<sub>2</sub> atmosphérique à l'échelle des villes (chapitre 2).

Les émissions anthropiques de dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>) ont perturbé le cycle du carbone sur la Terre, et ceci de manière importante depuis la révolution industrielle. La moitié du dioxyde de carbone émis par les êtres humains a été absorbé par les océans et la végétation, l'autre moitié est restée dans l'atmosphère ([Friedlingstein et al., 2020]). Cette perturbation anthropique et les différents échanges de CO<sub>2</sub> entre l'atmosphère et les deux autres principaux réservoirs de carbone (océans et continents) sont aujourd'hui bien quantifiés à l'échelle planétaire et pluri-annuelle. Cependant, plusieurs questions suscitent toujours d'importants travaux de recherche : (i) l'évolution et la variabilité spatio-temporelle des puits biogéniques et océaniques, pour pouvoir prévoir leur comportement futur et (ii) l'attribution précise (spatialement et temporellement) des émissions anthropiques aux différents acteurs économiques afin de mieux cibler les efforts de réduction de ces émissions dans le contexte de la lutte contre le changement climatique. Parmi ces acteurs économiques, les villes jouent un rôle de premier plan car elles représentent une majorité de la population (55% en 2018 selon [UNDESA, 2018]) et de l'activité économique, donc une part importante des émissions de CO<sub>2</sub>.

Ce premier chapitre introductif présente rapidement le cycle du carbone en s'intéressant spécifiquement au CO<sub>2</sub> (flux, évolution,...) et en portant une attention particulière aux émetteurs anthropiques et aux rôles des villes. La première partie décrit l'augmentation de la concentration de CO<sub>2</sub> atmosphérique depuis l'ère industrielle avec un bref rappel de son impact sur le système Terre (sectoin 1.1). Nous présenterons ensuite le bilan des flux de CO<sub>2</sub> et leur impact sur les différents réservoirs de carbone (section 1.2), en énumérant les différentes sources et les différents puits avec leurs ordres de grandeur. Dans la dernière partie, nous nous intéresserons aux émissions anthropiques et plus particulièrement aux émissions des villes (section 1.3), sujet de cette thèse.

## 1.1 . Évolution de la concentration de CO<sub>2</sub> atmosphérique

L'accumulation du CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère est déterminée par l'équilibre entre les émissions anthropiques, les absorptions anthropiques et la dynamique physique et biogéochimique des sources et des puits de carbone sur terre et dans l'océan. Cette accumulation est provoquée par les êtres humains et notamment par la combustion de ressources fossiles (charbon, pétrole, gaz), la production de ciment et le changement d'usage des sols ([Canadell et al., 2021]). Entre 1850 et 2020, cette concentration a augmenté de 47%, passant de 285ppm<sup>1</sup> à 411ppm (cf figure 1.1). La concentration de CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère est plus haute qu'elle n'a jamais été dans les 800 000 dernières années et le taux d'accumulation du CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère, *i.e.* la vitesse à laquelle le CO<sub>2</sub> s'y accumule, est 10 fois plus important sur la période 1900-2019 qu'il ne l'a jamais été sur les 800 000 dernières années. Cette période de 800 000 ans est le maximum auquel nous pouvons remonter avec les carottes de glace.

Cette augmentation de la concentration en CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère est la cause principale du réchauffement climatique actuel. En effet, le CO<sub>2</sub> est un gaz absorbant dans l'infrarouge, zone de longueurs d'onde à laquelle la Terre émet (déperdition de chaleur). La capacité du système Terre à se refroidir est donc diminuée par ce gaz, ce phénomène est qualifiée d'effet de serre. Les principaux gaz à effet de serre (GES) sont la vapeur d'eau, le dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>), le méthane (CH<sub>4</sub>), le protoxyde d'azote (N<sub>2</sub>O) et les gaz fluorés. La concentration des trois derniers

---

1. partie par millions : 1ppm équivaut à une molécule de CO<sub>2</sub> pour un million de molécules d'air

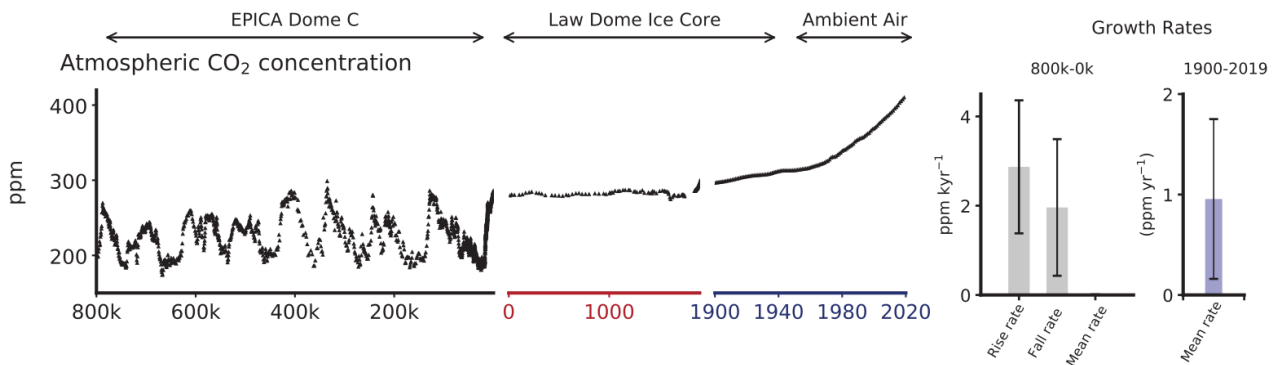


Figure 1.1 – Concentrations atmosphériques de CO<sub>2</sub> dans les bulles d'air et les cristaux de clathrate dans les carottes de glace (800 000 avant notre ère à 1990 de notre ère). Les données des carottes de glace sont superposées aux observations atmosphériques pour la période allant de 1958 à aujourd'hui. Les panneaux de droite montre les taux de croissance pour différentes périodes : à l'échelle millénaire pour les périodes -800 000 à 0 ans, 0 à 1900 ans (panneau du milieu) et à l'échelle annuelle pour la période 1900 à 2017 ans. Les données pour la période -800 000 - 0 sont utilisées à partir des carottes de glace Vostok, EPICA, Dome C et WAIS; les données après 0 an proviennent principalement de l'analyse des carottes de glace de Law Dome. Les observations de surface pour toutes les espèces proviennent du réseau de recherche coopératif de la NOAA.

a augmenté, à l'instar du CO<sub>2</sub>, depuis la première révolution industrielle. Le CO<sub>2</sub> est ainsi responsable de plus de la moitié du forçage radiatif actuel ([Forster et al., 2021]). Mais son impact ne se limite pas qu'à l'effet de serre. En effet, l'absorption du CO<sub>2</sub> par les océans provoque une acidification de l'océan, nocive pour la faune et la flore marine ([Orr et al., 2005, Jarraud and Steiner, 2012]).

Les émissions globales de GES de la dernière décennie sont approximativement égales à la quantité de CO<sub>2</sub> estimée que nous pouvons nous permettre d'émettre tout en limitant le réchauffement à 1.5°C, seuil des Accords de Paris. En effet, un seuil de 110±60GtC permettrait de rester en dessous de 1.5°C avec une probabilité de 67% (140GtC pour une probabilité de 50%). En supposant des émissions constantes au niveau de 2019, ce montant serait atteint en 2027 (2021-2034). Ces estimations sont celles du dernier rapport du GIEC ([Dhakal et al., 2022]) et sont valables pour 2019. En 2020 et 2021, les émissions de CO<sub>2</sub> ont été estimées à 9.3GtC et 9.9GtC, ce qui réduit d'autant le budget restant. Cependant, cette augmentation du CO<sub>2</sub> rejeté dans l'atmosphère par les êtres humains a été contrebalancée par une augmentation de l'absorption du CO<sub>2</sub> par les océans et par la biomasse. La fraction des émissions qui reste dans l'atmosphère a été stable au cours des dernières décennies autour de 44%, malgré une très importante variabilité inter-annuelle (plusieurs dizaines de pourcents [Canadell et al., 2021]). Sans ces puits, la concentration de CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère serait aujourd'hui de 600ppm.

## 1.2 . Budget de CO<sub>2</sub>

Cette section détaille les flux de CO<sub>2</sub> entre les différents réservoirs et l'atmosphère. Tous les chiffres donnés dans cette section proviennent du rapport publié en 2020 par le Global Carbon project [Friedlingstein et al., 2020], qui constitue une des sources majeures d'information utilisée par le dernier rapport du GIEC. Les émissions de CO<sub>2</sub> d'origine fossile sont basées principalement sur des statistiques énergétiques (consommation et production) ainsi que sur des données de production du ciment, sur des données d'utilisation des sols, et sur des modèles capables de convertir ces données en émissions de CO<sub>2</sub>. Le puits de CO<sub>2</sub> océanique et le puits de CO<sub>2</sub> terrestre sont estimés à l'aide de modèles de processus biogéochimiques à l'échelle planétaire. Comme ces puits restent incertains, leur quantification est contrainte par des mesures de concentrations atmosphériques du CO<sub>2</sub> issues d'un réseau mondial maintenu par *National Atmospheric and Oceanic Administration* (NOAA) et *Scripps Institution of Oceanography* (SIO), calibré aux

standards de l'Organisation Mondiale de la Météorologie<sup>2</sup>. La concentration atmosphérique globale de CO<sub>2</sub> est mesurée directement à partir de stations éloignées des zones d'émission ou d'absorption (stations océaniques et côtières).

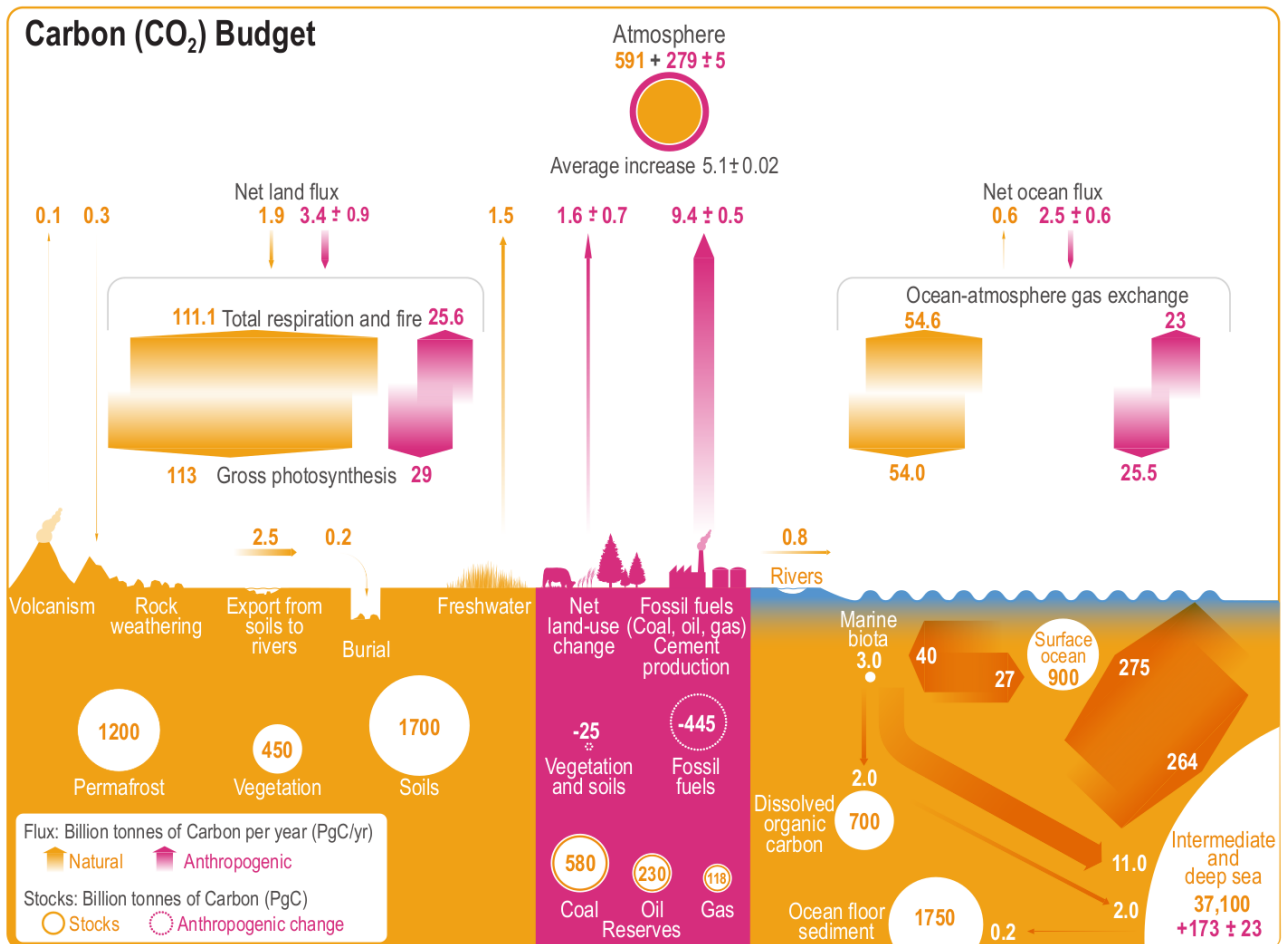
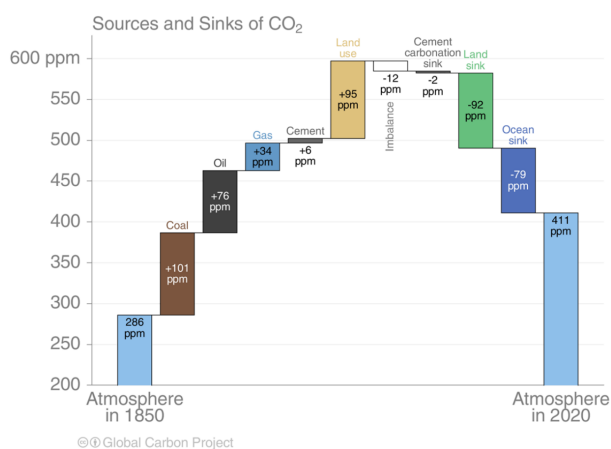


Figure 1.2 – Budget global du carbone pour le CO<sub>2</sub> sur la période 2010–2019. Les flèches jaunes représentent les flux annuels de carbone (en PgC/an) associés au cycle naturel du carbone, estimés pour la période précédant l'ère industrielle, vers 1750. Les flèches roses représentent les flux anthropiques moyennés sur la période 2010-2019. Le taux d'accumulation du carbone dans l'atmosphère est égal aux émissions nettes liées au changement d'affectation des terres, plus les émissions de combustibles fossiles, moins les puits nets des terres et des océans (plus un léger déséquilibre budgétaire). Les cercles avec des chiffres jaunes représentent les stocks de carbone préindustriels en PgC. Les cercles avec des chiffres roses représentent les changements anthropiques de ces stocks (flux anthropiques cumulés) depuis 1750. Figure issue du rapport du GIEC [Canadell et al., 2021] (fig 5.12).

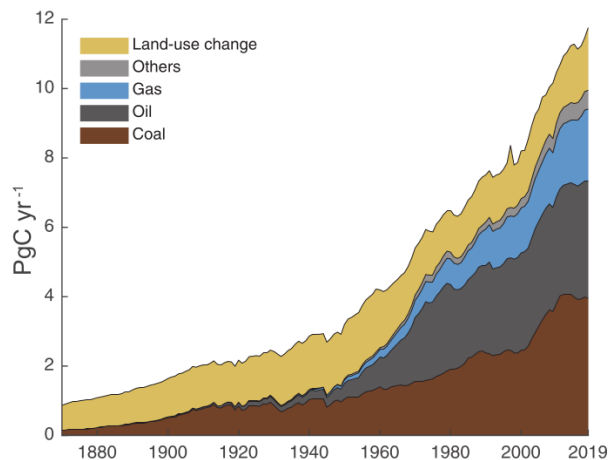
### 1.2.1 . Réservoirs de carbone

On peut distinguer 4 grands types de réservoir de carbone : la biosphère terrestre (végétation, animaux, permafrost, sols et eaux douces), les océans (carbone organique du vivant marin et carbone inorganique), l'atmosphère et les réserves fossiles (charbon, gaz, pétrole). Nous donnons ici les chiffres correspondant à l'état estimé des réserves avant les -importantes- perturbations humaines de l'ère industrielle, ainsi que les perturbations estimées pour chaque réservoir.

2. <https://gml.noaa.gov/ccgg/trends/global.html>



(a) Illustration des différentes contributions cumulatives au budget total de carbone depuis 1850. Le déséquilibre (*imbalance*) représente l'écart dans notre compréhension actuelle des sources et des puits.



(b) Tendances historiques des émissions anthropiques de CO<sub>2</sub> pour la période de 1870 à 2019, les "autres" représentant le flaring et les émissions de carbonates pendant la fabrication du ciment. Image tirée de [Friedlingstein et al., 2020]

Figure 1.3 – Illustrations de la répartition des émissions suivant leurs sources, d'un point de vue de la destination finale du carbone (figure de droite) et d'un point de vue historique (figure de gauche).

Le principal réservoir est l'océan avec 40 450 GtC. Ce carbone est principalement stocké dans les couches intermédiaires et profondes de l'océan (37 100 GtC). Comme le montre la figure 1.2, les échanges à l'intérieur de l'océan, entre les différentes couches d'une part, et entre le carbone organique et inorganique d'autre part, sont très importants. Mais nous ne les détaillerons pas ici, étant intéressés par les flux de CO<sub>2</sub> qui concernent l'atmosphère. Les émissions de CO<sub>2</sub> humaines ont amené le stockage de  $173 \pm 23$  GtC de carbone supplémentaire dans les océans. Le deuxième réservoir est la biosphère continentale (3 350 GtC) dans laquelle nous incluons la végétation (450 GtC), le permafrost (1 200 GtC) et les sols (1 700 GtC). Les activités humaines ont provoqué une diminution nette de stock de -25 GtC. Le troisième réservoir en quantité de carbone stocké est les réserves fossiles (estimées à 928 GtC avant l'ère industrielle) avec le charbon (580 GtC), le pétrole (230 GtC) et le gaz (118 GtC), dont le stock a diminué de 445 GtC. Enfin vient l'atmosphère (591 GtC), dont la réserve de carbone a augmenté de  $279 \pm 5$  GtC.

Les échanges entre ces différents réservoirs, et notamment les échanges concernant l'atmosphère, reposent sur de nombreux processus d'absorption et d'émission dont l'ampleur dépasse les émissions fossiles à des échelles de temps courtes (sub-annuelles). Une compréhension de ces échanges et leur ordre de grandeur sont donc nécessaires pour mieux comprendre leur rôle dans l'accumulation atmosphérique observée sur le long terme. Ces différents flux de carbone se combinent aux émissions anthropiques, sujet central de cette thèse, et compliquent la détection des émissions urbaines, impactée par la variabilité des concentrations atmosphériques.

## 1.2.2 . Sources

### 1.2.2.1 . Humaines

Les émissions anthropiques peuvent être séparées en deux catégories, suivant le réservoir de carbone qu'elles affectent : (i) l'usage, et le changement d'usage, des sols (carbone stocké dans la biosphère terrestre) et (ii) les émissions de carbone fossile. Depuis 1750, la première catégorie (qui inclue l'usage des sols, le changement dans leur usage et les activités forestières) a émis  $255 \pm 70$  GtC (incertitude  $\pm 1\sigma$ ). La deuxième catégorie regroupe les émissions dues à la combustion des réserves fossiles (charbon, pétrole, gaz), les émissions dues aux carbonates fossiles du ciment et de la fabrication des engrais et produits chimiques. Cette seconde catégorie est prépondérante dans le total historique des émissions avec  $455 \pm 20$  GtC émises. Comme le montre la figure 1.3a, les émissions de cette catégorie proviennent majoritairement de la combustion du charbon, suivi du pétrole et du gaz.

Au début de l'ère industrielle, le changement d'usage des sols était la source d'émissions prédominante (cf figure 1.3b). Au fil des décennies, de nouvelles sources d'énergie sont venues s'ajouter (charbon, puis pétrole, puis gaz), sans pour autant engendrer une diminution des émissions des sources historiques. Les émissions de CO<sub>2</sub> fossile ont en effet augmenté continûment depuis le début de l'ère industrielle, en dehors des périodes de ralentissement économique due aux crises économiques mondiales ou aux guerres. Cependant, aucune tendance à long terme ne ressort pour les émissions dues au changement d'usage des sols.

Sur la période 1750-2019, 64% des émissions sont d'origine fossile et 36% viennent du changement d'usage des sols, ce qui représentent respectivement des émissions de 445±20 GtC et 255±70GtC. La part fossile de ces émissions augmenté au cours des décennies jusqu'à atteindre 86% des émissions anthropiques sur la dernière décennies (2010-2019). Les émissions de CO<sub>2</sub> fossile ont augmenté de 1.2%/an durant cette décennie, avec des émissions moyennes de 9.6±0.5GtC/an (9.4±0.5GtC/an en incluant le puits de carbone dû au ciment<sup>3</sup>). Pour comparaison, les émissions moyennes étaient de seulement 3.0±0.2GtC/an pour la décennie 1960-1969. La figure 1.3b montre que les émissions fossiles ont continuellement augmenté, avec une possible stabilisation pour le charbon ces dernières années. En 2019, les émissions provenant du charbon ont diminué de 1.8% par rapport à 2018, tandis que les émissions provenant du pétrole, du gaz naturel et du ciment ont augmenté de 0.8%, 2.0% et 3.2%, respectivement.

### 1.2.2.2 . Naturelles

Le cycle du carbone et sa répartition au sein des différents réservoirs sur Terre est dynamique et complexe. De nombreux processus biogéochimiques sont à l'origine des échanges entre réservoirs ainsi qu'au sein même de chaque réservoir. Nous nous limiterons ici à décrire les échanges les plus importants entre l'atmosphère et les autres réservoirs. Nous ne parlerons donc pas des échanges de CO<sub>2</sub> entre les eaux océaniques de surface et les eaux profondes par exemple, bien que ce flux soit le plus important (cf figure 1.2). Les flux indiqués dans cette section sont les flux moyens annuels sur la décennie 2010-2019.

La source la plus importante d'émissions de CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère est issue de la biosphère terrestre (cf figure 1.2). La respiration des plantes, dite autotrophique, la respiration hétérotrophique des sols, ainsi que les feux de biomasse sont à eux seuls responsables de 137GtC/an. Ces émissions biogéniques sont environ dix fois plus importantes que les émissions anthropiques. On note également les émissions issues des eaux douces, comptabilisées dans la biosphère terrestre, bien qu'elles restent relativement faibles (1.5 GtC/an).

Les échanges océan-atmosphère représentent la deuxième source de CO<sub>2</sub> de l'atmosphère, et plus précisément depuis les zones équatoriales et polaires où les océans libèrent environ 78GtC/an, contrairement aux hautes latitudes qui absorbent l'excédent de CO<sub>2</sub> atmosphérique ([Takahashi et al., 1997]). Ces émissions sont liées à l'équilibre entre la pression partielle de CO<sub>2</sub> de l'océan superficiel et celle de l'atmosphère. Cette interaction dépend de la solubilité du CO<sub>2</sub>, elle-même dépendante de la température de l'eau. La pression partielle de CO<sub>2</sub> dans l'eau est gouvernée principalement par les réactions chimiques au sein de l'océan : formation de bicarbonate ([Orr et al., 2005]), par la photosynthèse et la respiration des êtres vivants, et par la production de coquilles en carbonate de calcium par certains organismes ([Fabry, 2008]).

Enfin, les éruptions volcaniques, qui transfèrent du CO<sub>2</sub> des réserves géologiques à l'atmosphère, sont responsables de 0.1 à 0.4GtC/an ([Marty and Tolstikhin, 1998]), soit 100 fois moins que les émissions fossiles.

### 1.2.3 . Puits

#### 1.2.3.1 . Naturels

Le flux le plus important retirant du CO<sub>2</sub> de l'atmosphère (puits) est, comme dans la sous-section précédente, entre la biosphère et l'atmosphère. Cette absorption se fait par la photosynthèse, processus qui permet à des organismes

---

3. L'hydroxyde de calcium (basique) contenu dans le ciment réagit au cours du temps avec le dioxyde de carbone (acide) de l'atmosphère. Cette réaction chimique naturelle (appelée carbonatation) est la réaction inverse de la calcination du calcaire qui a donné naissance au ciment.

de synthétiser de la matière organique en utilisant l'énergie lumineuse, de l'eau et du CO<sub>2</sub>. La photosynthèse, par la croissance des plantes principalement, est responsable de l'absorption de 113GtC/an de l'atmosphère. Cette absorption est renforcée par l'augmentation du CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère qui s'échange plus facilement dans les stomates des plantes [Liu et al., 2019].

Le deuxième phénomène absorbant du CO<sub>2</sub> de l'atmosphère vient des échanges océan-atmosphère (54GtC/an). Cette absorption est, comme dans la sous-section précédente, liée à l'équilibre entre la pression partielle de CO<sub>2</sub> dans l'océan et dans l'atmosphère. Le processus est le même, sauf qu'ici l'absorption se produit quand la pression partielle de CO<sub>2</sub> dans l'océan est trop faible par rapport à celle que commande l'équilibre de la pression de CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère. L'absorption se produit principalement aux moyennes latitudes où la température de l'eau est basse et la circulation océanique entraîne en profondeur le CO<sub>2</sub> dissous.

Le dernier phénomène est la météorisation des roches au contact de l'atmosphère (0.3GtC/an). La météorisation est l'ensemble des processus mécaniques, physico-chimiques ou biologiques de réduction élémentaire des rochers et minéraux à la surface de la Terre par les agents météoriques (eau, gaz atmosphériques, variations de température...), mécaniques ou biologiques. Le type de météorisation qui conduit à la captation du CO<sub>2</sub> est la réaction chimique entre certaines roches (notamment silicates, calcaire...) et le CO<sub>2</sub>. Ces réactions sont différentes suivant le type de roche impliqué.

#### 1.2.4 . Bilan

Les processus naturels émetteurs et absorbants décrits dans les 2 sections précédentes sont quantitativement proches, produisant des flux nets de l'ordre de quelques pourcents par rapport aux processus sous-jacents. La différence des flux dus à la photosynthèse et la respiration est de -1.9GtC/an, la différence pour l'océan de +0.6GtC/an, les émissions des eaux douces de +1.5GtC/an, du volcanisme de +0.1GtC et de l'absorption par la météorisation de -0.3GtC/an (cf figure 1.2). Ces flux s'additionnent pour atteindre une conservation de la masse totale, donc un flux nul à l'échelle du globe.

A ces flux naturels s'ajoutent les flux anthropiques dus aux 11.0±1.2GtC/an émis vers l'atmosphère (combustion des énergies fossiles et changement d'occupation des sols). Ces émissions engendrent une absorption additionnelle de CO<sub>2</sub> (en violet sur la figure 1.2) par la biosphère terrestre de -3.4±0.9GtC/an et de -2.5±0.6GtC/an par les océans, phénomène que nous avons déjà brièvement évoqué dans la section 1.1. L'absorption additionnelle par la biosphère terrestre est due aux effets combinés sur la croissance des plantes (fertilisation par l'augmentation du CO<sub>2</sub> et les intrants d'azote ([Ciais et al., 2019]), ainsi que par les effets du changement climatique qui augmentent la durée de la période de croissance des plantes dans les régions tempérées et boréales de l'hémisphère nord ([Graven et al., 2013])). L'absorption additionnelle par les océans est due à l'augmentation de la pression partielle de CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère. Cette augmentation des puits limite à hauteur de 50% l'accumulation de CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère, avec une augmentation de la concentration en CO<sub>2</sub> de 2.4±0.01ppm/an sur la décennie 2010-2019<sup>4</sup>.

La perturbation de ces échanges a ainsi pour effet une diminution du stock de carbone dans la biosphère terrestre (-25GtC dans la végétation et les sols, à comparer au 2150GtC du stock initial), du fait du changement d'usage des sols, et dans les réserves fossiles (-445GtC à comparer au 928GtC du stock initial) et une augmentation du stock dans les océans, notamment dans ses couches intermédiaires et profondes (+173GtC±23GtC à comparer au 37100GtC du stock initial), et dans l'atmosphère (+279GtC±5GtC à comparer au 591GtC du stock initial).

### 1.3 . Suivi des émissions de CO<sub>2</sub> anthropiques

Les inventaires d'émissions de CO<sub>2</sub> fossile quantifient les émissions de CO<sub>2</sub> pour un intervalle de temps donné et des limites géographiques données. Cette quantification peut concerner un ou plusieurs secteurs, un ou plusieurs

---

4. [https://gml.noaa.gov/ccgg/trends/gl\\_gr.html](https://gml.noaa.gov/ccgg/trends/gl_gr.html)

types de ressource fossile. Les inventaires sont réalisés en utilisant les données de production utilisant des matériaux fossiles ou les données de consommation ou encore des données sur l'activité économique. Les inventaires reportés par les pays pour les émissions annuelles sur leur sol dans le cadre de l'UNFCCC sont considérés comme ayant une incertitude de 4% pour les pays développés. Ces inventaires sont à l'échelle nationale et annuelle. A plus fine échelle, et notamment à l'échelle des villes, les incertitudes sont beaucoup plus grandes.

Les grandes métropoles représentent plus de la moitié des émissions fossiles à l'échelle planétaire ([Lwasa et al., 2021]), mais couvrent seulement 2% de la surface du globe. L'estimation des émissions urbaines se fait à plusieurs niveaux, soit par les services des municipalités, soit par la désagrégation d'inventaires nationaux [Gurney et al., 2012]. Pour les villes établissant directement leur bilan d'émissions, l'interprétation de ces bilans est souvent difficile du fait des nombreux cadrages existants (comptabiliser seulement les émissions directes dans les limites géographiques, avec ou sans la chaîne d'approvisionnement de la ville, en incluant ou non la consommation au sein de la ville par les ménages et/ou les entreprises...). Ces bilans sont souvent des mélanges entre les niveaux d'émissions de scope 1 (directes sur le territoire), 2 (production d'énergie hors du territoire) et 3 (émissions indirectes des activités hors-territoire). [Gurney et al., 2021] ont montré que, une fois les différences de cadrage corrigées, les bilans d'émissions des inventaires de 50 villes des États-Unis montraient des différences de 18.3% (intervalle de -145.5% à +63.5%) en comparant les chiffres publiés avec les estimations de l'inventaire spatialisé Vulcan [Gurney et al., 2020]. Ces différences importantes proviennent de l'absence de certains secteurs (fuel domestique, industries), de la sous-estimation du trafic routier, du transport maritime et de l'aviation. Pour les villes ne faisant pas de bilans, les bilans d'émissions peuvent être réalisés à partir d'inventaires spatialisés comme Vulcan qui couvre les États-Unis à des résolutions horaire et kilométrique ; ou ODIAC (désagrégation par imagerie satellitaire) dont la couverture est mondiale. Cependant, du fait des méthodes utilisées pour attribuer localement ces émissions nationales, ces inventaires ont des incertitudes très élevées à l'échelle locale. [Gurney et al., 2020] a montré que la différence entre ODIAC et Vulcan pour les États-Unis était de l'ordre de 6% des émissions estimées par Vulcan, mais que la moyenne des valeurs absolues de la différence entre les 2 inventaires à l'échelle du pixel (1km\*1km) était de 104%.

Les inventaires à l'échelle de la ville vont prendre de plus en plus d'importance dans le futur du fait de la part des émissions des villes dans les émissions globales. En 2020, l'empreinte des villes (*i.e.* le bilan des émissions des villes (scope 3) à l'échelle globale et pour tous les gaz à effet de serre confondus est estimée à 67-72% des émissions globales de gaz à effet de serre (hors aviation, transport maritime et sources biogéniques [Lwasa et al., 2021]). Ce chiffre cache de grandes disparités entre les régions du monde, tant du point de vue des bilans d'émissions que de leurs évolutions. La part des émissions urbaines dans les émissions totales de GES augmentent cependant pour toutes les régions du monde, avec une augmentation de 28 à 38% en Afrique de 2000 à 2015, 46 à 54% en Asie et dans les pays en développement du Pacifique, 62 à 72% dans les pays développés,... Cette part pourrait continuer d'augmenter avec l'urbanisation des populations, de 55% en 2018 et prévu à 68% en 2050, augmentation de l'urbanisation qui devrait majoritairement se situer en Afrique et en Asie. L'expansion des terres urbaines et des demandes d'infrastructures et de services contribuent elles aussi à l'augmentation de cette part, mais l'ampleur de cette augmentation va fortement dépendre des efforts d'atténuation des villes et des pays.

Les villes sont donc des acteurs majeurs de la lutte contre le changement climatique. Beaucoup de villes dans le monde se sont engagées à réduire leurs émissions, notamment à travers le réseau de la Convention mondiale des maires qui regroupe 10 000 villes<sup>5</sup>. Mais les inventaires urbains restent incertains et non-standardisés à l'échelle mondiale. L'efficacité des politiques climatiques est donc difficilement quantifiable, ni comparable, sans l'apport extérieur de standards (protocoles d'inventaires) ou de mesures indépendantes.

Parmi les différentes méthodes envisageables, la mesure satellitaire pourrait apporter des informations à grande échelle, contrairement aux réseaux de mesures au sol, et réaliser ainsi la quantification et le suivi des inventaires urbains. Cependant, de nombreuses questions techniques et scientifiques restent en suspens, de l'instrumentation

---

5. <https://www.covenantofmayors.eu>



jusqu'à la production de bilans chiffrés.

## 2 - Quantification des émissions de CO<sub>2</sub> par satellites à l'échelle locale

Les molécules de CO<sub>2</sub> provenant des émissions anthropiques des villes sont transportées par le vent et forment un panache sous le vent de la ville. L'accroissement en CO<sub>2</sub> dans la colonne atmosphérique (XCO<sub>2</sub>) du fait de ce panache est de l'ordre du ppm et la largeur de ce panache est de l'ordre de quelques dizaine de kilomètres, selon les dimensions de la zone urbaine. Ces accroissements en CO<sub>2</sub> dus aux émissions anthropiques locales se fondent dans des gradients de concentration de XCO<sub>2</sub>, gradients qui vont de l'échelle du kilomètres à la centaine de kilomètres, dus aux flux biogéniques ou à d'autres sources anthropiques situés dans une zone plus large autour de la métropole (jusqu'à une centaine de kilomètres). Pour quantifier les émissions urbaines à partir de données satellitaires, les instruments utilisés doivent pouvoir détecter ces gradients, et estimer suffisamment précisément cet accroissement depuis la zone d'émission jusqu'à une distance suffisante pour déterminer un panache bi-dimensionnel dans le plan horizontal. Nous avons donc besoin de satellites ayant des résolution et précision plus fines que la dizaine de kilomètres et que le ppm. Dans la suite de ce chapitre, nous décrivons le principe de l'observation satellitaire (section 2.1) et les missions actuelles et planifiées permettant l'observation des variations du CO<sub>2</sub> à l'échelle locale (section 2.2). Nous ferons ensuite une rapide revue des études dédiées à la quantification des émissions de CO<sub>2</sub> urbaines par satellite (section 2.3). Nous finirons ce chapitre par décrire comment cette thèse s'inscrit dans ces problématiques et ce qu'elle vise à apporter (section 2.4).

### 2.1 . Principe de l'observation satellitaire de CO<sub>2</sub>

L'observation du CO<sub>2</sub> atmosphérique par satellite se fait via la mesure d'un signal lumineux venant de l'atmosphère, principalement la réflexion des rayons solaires par la surface de la Terre. Le signal électrique provenant du détecteur est produit par les photons qui l'atteignent, et l'intensité de ce signal électrique est lié à l'intensité (au nombre de photons) du signal lumineux. Avant d'arriver au détecteur, les photons vont être filtrés via un montage optique, pour ne conserver que certaines plages de longueur d'onde, typiquement autour de longueurs d'onde d'absorption des molécules d'intérêt (CO<sub>2</sub> et O<sub>2</sub> comme nous allons le voir par la suite). Les instruments actuels dédiés au suivi du CO<sub>2</sub>, "passifs" (mesurant un signal lumineux provenant d'un autre corps, contrairement à un LIDAR par exemple) mesurent en proche infrarouge (de 700 à 2500nm) l'intensité des rayons lumineux émanant du Soleil et réfléchis par la Terre. Par exemple, pour une bande d'absorption du CO<sub>2</sub>, les photons provenant du Soleil traverse toute ou partie de l'atmosphère et sont en partie absorbés par les molécules de CO<sub>2</sub>. Ils sont ensuite réfléchis par la surface de la Terre (ou par des molécules de l'atmosphère telles que des aérosols ou des nuages), et retraversent toute ou une partie de l'atmosphère. Ils sont donc en partie absorbés une deuxième fois par les molécules de CO<sub>2</sub> présentes dans l'atmosphère, avant de finalement atteindre l'instrument spatial. L'intensité du signal lumineux arrivant sur le détecteur de l'instrument dépend alors du nombre de particules de CO<sub>2</sub> rencontrées et donc de la concentration en CO<sub>2</sub> de l'atmosphère. Cependant, ce signal lumineux ne dépend pas que de la concentration en CO<sub>2</sub> mais aussi de l'angle solaire zénithal, de la pression de surface, de la température et humidité de l'air, de la géométrie de l'instrument,... Un paramètre important pour relier la concentration de CO<sub>2</sub> à l'intensité du signal lumineux arrivant sur le détecteur est le trajet suivi par celui-ci. En l'absence de nuages, les aérosols et la topographie du terrain rendent l'estimation de ce chemin difficile et sont donc une source importante d'erreur dans le calcul de la concentration en CO<sub>2</sub>. Ces erreurs peuvent être réduites en s'intéressant à la fraction molaire de la colonne de CO<sub>2</sub> par rapport à l'air sec (XCO<sub>2</sub>), qui permet de compenser les erreurs liées au trajet optique. Cette fraction molaire est égale à  $0.2095 \cdot (\text{colonne CO}_2) / (\text{colonne O}_2)$ , où 0.2095 est la fraction molaire de O<sub>2</sub>, et colonne indique la quantité de la molécule d'intérêt dans la colonne d'air. Les erreurs faites sur le trajet optique sont présentes dans les 2 colonnes et se compensent donc.

Les instruments auxquels nous nous intéressons (OCO-2/3, CO<sub>2</sub>M, cf section 2.2) ont des détecteurs pour 2 bandes d'absorption du CO<sub>2</sub> en proche infrarouge (1.61μm et 2.06 μm) et pour la bande d'absorption de l'O<sub>2</sub> à 0.765μm. La bande d'absorption de CO<sub>2</sub> à 1.61μm présente 3 avantages majeurs par rapport aux autres bandes d'absorption du CO<sub>2</sub> : elle se situe dans une région où les autres gaz de l'atmosphère absorbent peu, peu de raies sont saturés dans les conditions d'observations (l'absorption augmente donc linéairement avec la quantité de CO<sub>2</sub>) et les émissions thermiques de l'atmosphère et de l'instrument sont négligeables à ces fréquences. Cependant, cette bande et celle de O<sub>2</sub> sont sensibles à la diffusion par les aérosols mais à des niveaux différents. La deuxième bande du CO<sub>2</sub> (à 2.06μm, dont les lignes d'absorption sont saturées) est donc utilisé en complément pour apporter une information supplémentaire sur les aérosols et la concentration en CO<sub>2</sub> (grâce aux ailes des raies spectrales). Pour résumer, trois canaux de mesure sont utilisés : le canal autour de 1.61μm donne la mesure la plus sensible à la quantité de CO<sub>2</sub>, le canal autour de 0.765μm donne des informations sur les nuages, les aérosols et la masse de l'atmosphère traversée, et le canal autour de 2.06μm apporte des informations complémentaires sur les propriétés optiques des aérosols et la quantité de CO<sub>2</sub> ([Crisp et al., 2004]).

Aujourd'hui et pour les données des instruments OCO délivrées par la NASA, la concentration XCO<sub>2</sub> est calculée en faisant une inversion bayésienne d'un modèle radiatif qui utilise les informations fournies par les 3 bandes et des données météorologiques, des propriétés de la surface et de l'instrument. En effet, les équations de transfert radiatif sont non-linéaires par rapport à certaines quantités d'intérêt et l'inversion ne peut pas être faite analytiquement. Plus de détails sont donnés dans la section suivante avec l'exemple de OCO-2. Notons cependant que d'autres méthodes sont étudiées pour obtenir la concentration en XCO<sub>2</sub> à partir des informations spectrales, comme une approche par réseau de neurones développé dans [David et al., 2021].

## 2.2 . Missions permettant une quantification des sources anthropiques de CO<sub>2</sub>

Les premiers instruments (SCIAMACHY sur le satellite ENVISAT et GOSAT) mesurant le CO<sub>2</sub> dans le proche infrarouge observent la concentration atmosphérique de CO<sub>2</sub> pour mieux estimer les puits naturels de CO<sub>2</sub> à grande échelle et fournir des informations sur les variations à grandes échelles du CO<sub>2</sub>. Leur résolution spatiale et leur précision sur les données de XCO<sub>2</sub> sont relativement faibles (voir figure 2.1). Ces caractéristiques, et notamment leur précision, ne sont pas adaptées à la mesure des émissions des zones urbaines (panaches urbains) dont les dimensions sont de l'ordre de la dizaine de kilomètres et le signal de l'ordre de 1ppm ([Broquet et al., 2018]).

OCO-2, à l'origine dédié là aussi à la contrainte des flux de CO<sub>2</sub> à grande échelle, a une résolution spatiale de l'ordre de 2km et une précision de l'ordre de 1ppm, ce qui lui a permis d'être utilisé pour estimer les émissions des villes ([Lei et al., 2021, Reuter et al., 2019, Wu et al., 2018, Yang et al., 2020, Ye et al., 2020]). Les parutions de ces études sont concomitantes à cette thèse. Depuis, la mission OCO-3 a été lancée avec un mode de mesure spécifique (Snapshot Area Mode) pour estimer les émissions des villes, et d'autres missions dédiées à la détection des panaches de CO<sub>2</sub> issues des villes sont actuellement en développement. Nous allons ici décrire les caractéristiques de ces instruments et de la mission CO<sub>2</sub>M, prochaine mission européenne qui est en partie dédiée à l'estimation des émissions de CO<sub>2</sub> des villes.

### 2.2.1 . OCO-2

OCO-2 (Orbiting Carbon Observatory-2) est le premier satellite mis en orbite par la NASA dédié à la mesure de CO<sub>2</sub> atmosphérique. Le satellite a été lancé le 2 juillet 2014 et les premières données collectées le 6 août 2014. Il est toujours en activité à ce jour (octobre 2022). Il fait partie de la "Afternoon Constellation" (A-train) qui comprend d'autres satellites focalisés sur l'étude de l'atmosphère comme MODIS ou CALIOP, satellites qui peuvent être utilisés pour vérifier les données de OCO-2 sur les nuages et les radiances ([Taylor et al., 2016]).

L'orbite d'OCO-2 est héliosynchrone avec une heure de passage à l'équateur à 13h30 sur un orbite ascendante.

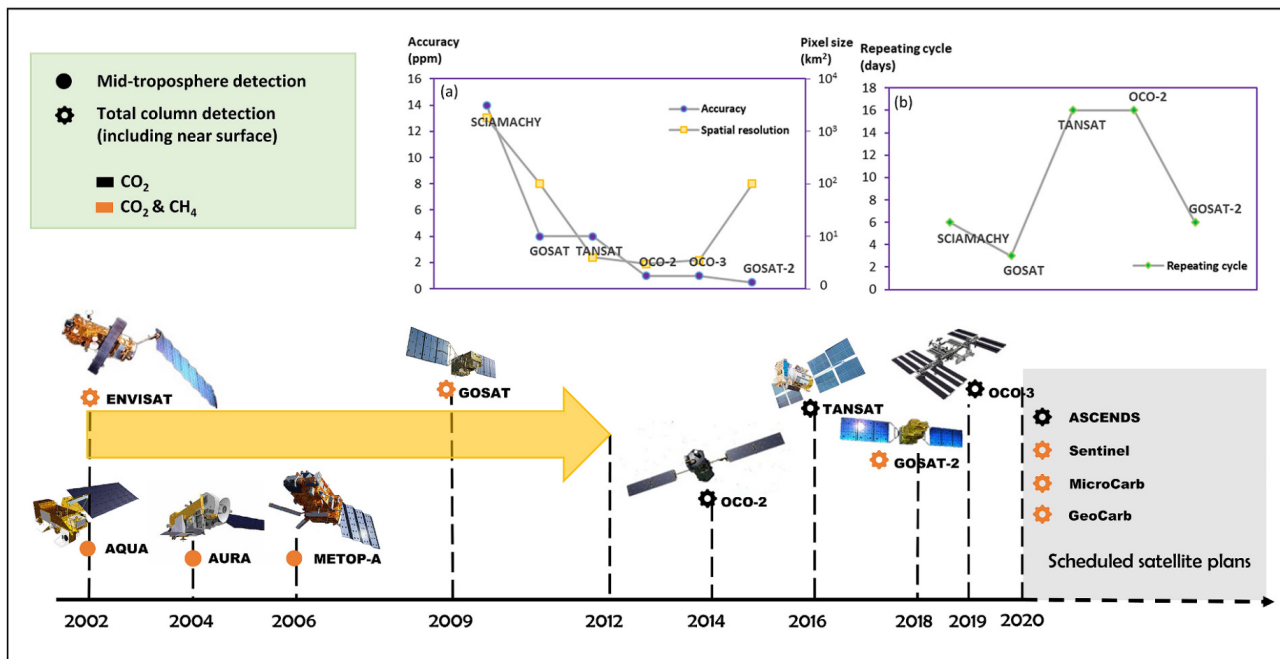


Figure 2.1 – Calendrier de lancement des satellites pour la détection du CO<sub>2</sub>, y compris les satellites prévus. (a) et (b) montrent les précisions, résolutions spatiales et cycles de répétition de satellites actuels et précédents pour la détection du CO<sub>2</sub> (mesure de la colonne totale de XCO<sub>2</sub>). (Figure prise dans Guanna Pan et al. 2020, The potential of CO<sub>2</sub> satellite monitoring for climate governance : A review, <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2020.111423>.)

Les pixels sont de l'ordre de 1.25km perpendiculairement à la trace du satellite et 2.4km le long de celle-ci. Les côtés des pixels font toujours la même taille, mais leur forme, suivant l'orientation du satellite qui change le long de l'orbite, évolue de quasi rectangulaire à des losanges très allongés. La fauchée (les 8 pixels de mesure) n'est plus perpendiculaire à la trace : l'orientation par rapport à cette trace définit la largeur de la fauchée (qui peut aller jusqu'à une dizaine de kilomètres). Le temps de revisite du satellite est de 16 jours.

OCO-2 dispose de 3 modes de mesure : *nadir*, *glint* et *cible*. En mode *nadir*, le satellite pointe l'instrument de mesure vers son nadir (point de la Terre à la verticale du satellite) quand il est du côté éclairé de la Terre. Les observations en mode *nadir* ne sont prises, pour des question de ratio signal sur bruit de mesure, que quand l'angle zénithal solaire à la surface est inférieur à 85°. Le mode *nadir* donne la plus haute résolution spatiale (de 0.3 à 3km<sup>2</sup>), mais a un faible rapport signal-sur-bruit au dessus de l'océan et au-dessus des zones couvertes de neige et de glace, où la réflectance en proche infrarouge est faible. En mode *glint*, le satellite pointe l'instrument vers l'endroit où le soleil "se reflète" (*glint* en anglais), c'est-à-dire l'endroit où les rayons du Soleil sont réfléchis spéculairement (*i.e.* comme par un miroir, à la différence d'une réflexion diffuse) par la surface. Ce mode est utilisé au-dessus des océans où, contrairement au mode *nadir*, le mode *glint* permet d'avoir un signal suffisant pour faire une estimation de la colonne de XCO<sub>2</sub> atmosphérique. Les observations en mode *glint* ne peuvent être prises que quand l'angle zénithal solaire à la surface est inférieur à 75°. En mode *cible*, l'instrument est pointé vers une cible stationnaire à la surface quand elle entre dans son champ de vue à l'horizon, et il reste pointé sur cette cible jusqu'à ce qu'elle en ressorte. Certaines de ces cibles sont notamment des sites TCCON (Total Carbon Column Observing Network), où se situent des spectromètres par transformée de Fourier à haute résolution, et servent à valider l'algorithme d'inversion radiatif et détecter ses biais. [Worden et al., 2017] ont estimé la précision et l'exactitude des mesures de XCO<sub>2</sub> par OCO-2 à 0.75 et 0.65ppm pour les mesures au dessus du sol (*glint* et *nadir*) en analysant les données OCO-2 (version 7), tout en précisant que ces estimations sont des bornes inférieures, car ne pouvant pas prendre en compte les biais

systématiques. L'erreur de mesure est donc du même ordre de grandeur que le signal caractéristique des villes que l'on cible, ce qui rend l'estimation des émissions difficile.

Figure 2.2 – Description du vecteur d'état

Name	Quantities	A priori value	A priori $1\sigma$ error	Notes
CO <sub>2</sub>	20 <sup>1</sup>	Model Climatology	Fixed matrix <sup>2</sup>	Mole Fraction wrt. dry air
Surface Pressure	1	ECMWF	4 hPa	
Temperature Offset	1	0 K	5 K	Offset to prior temperature profile
Water Vapor Scale Factor	1	1.0	0.5	Multiplier to prior specific humidity profile
Aerosol Profiles: Two aerosol types, cloud water, & cloud ice	4 × 20 <sup>1</sup>	Fixed Profile per type	ln(10) (diagonal)	ln (Optical Depth <sup>3</sup> per unit pressure)
Albedo	3	from spectra <sup>4</sup>	1.0	Albedo at band center
Albedo Slope	3	0.0	0.0005 per cm <sup>-1</sup>	
Wind Speed	1	7.0 m s <sup>-1</sup>	3.3 m s <sup>-1</sup>	Over-water only
Dispersion Offset per band	3	from spectra <sup>4</sup>	0.5 cm <sup>-1</sup>	

<sup>1</sup> Profile quantities contain 20 or fewer elements, depending on the surface pressure. <sup>2</sup> See Fig. 2 and text for details. <sup>3</sup> Optical Depth at 0.755  $\mu\text{m}$ . <sup>4</sup> Estimated directly from observed spectrum; see text for details.

Pour passer du signal électrique fourni par le détecteur à la valeur de XCO<sub>2</sub>, plusieurs étapes sont nécessaires. Nous allons décrire ici les étapes suivies pour obtenir les concentrations en CO<sub>2</sub> sur la colonne (XCO<sub>2</sub>) fournies par la NASA pour les missions OCO-2 et OCO-3 (ainsi que GOSAT ACOS) et utilisés dans cette thèse. La première étape consiste à transformer le signal électrique (données L0) en un spectre de radiance calibré (données L1B). A ce stade, un pré-tri est effectué pour retirer les données de mauvaise qualité (faible signal, problème avec l'instrument,...) et les pixels nuageux. En effet, les mesures au dessus de nuages génèrent des colonnes partielles dont la hauteur est incertaine, voire des mesures erronées si la couverture nuageuse est partielle. Une inversion bayésienne est ensuite effectuée pour obtenir un profil de concentration de CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère pour chaque pixel. Le principe d'une inversion bayésienne est de calculer l'état le plus probable d'un système à partir d'un état a priori de ce système et des observations qu'y ont pu en être faites. A l'aide d'un modèle, des observations théoriques sont calculées à partir de l'état a priori du système. Ces observations théoriques sont comparés aux observation réelles et le vecteur d'état est corrigé en conséquence. Dans notre cas, le vecteur d'observations contient les données L1B (*i.e.* les spectres des 3 bandes d'intérêt). Les paramètres du vecteur d'état sont donnés dans la figure 2.2. Pour obtenir le profil de CO<sub>2</sub>, l'atmosphère est découpée en 20 niveaux régulièrement espacés en pression et une estimation de la fraction molaire de CO<sub>2</sub> par rapport à celle de l'air est effectuée à chaque niveau. Le modèle utilisé pour passer du vecteur d'état au vecteur d'observations, quant à lui, prend en entrée le vecteur d'état, mais aussi des informations sur l'instrument au moment de la mesure, et sur la géométrie d'observation. Le modèle regroupe des modèles du Soleil, de l'atmosphère, de transfert radiatif et de l'instrument. Une fois le profil de CO<sub>2</sub> obtenu, l'estimation de XCO<sub>2</sub> est calculée en moyennant ces valeurs de CO<sub>2</sub>, pondérées par la pression sèche locale. L'algorithme est décrit de manière détaillé dans [Crisp et al., 2014] et une version résumée -et claire- (utilisée pour réaliser ce paragraphe) peut être trouvée dans [O'Dell et al., 2012]. Les données XCO<sub>2</sub> calculées ainsi sont ensuite comparés aux mesures TCCON et des correction de biais sont appliquées. Ces données corrigées sont celles fournies dans les fichiers *OCO2\_L2\_Lite\_FP* que nous utiliserons dans le chapitre 4, et dans les fichiers *OCO3\_L2\_Lite\_FP* pour les données OCO-3 dans le chapitre 6.

### 2.2.2 . OCO-3

OCO-3 (Orbiting Carbon Observatory 3), dont le spectromètre est une copie de celui d'OCO-2, a été installé sur la station spatiale internationale (ISS) en avril 2019 et devrait en être retiré en janvier 2023. Il fournit des données de concentration moyenne XCO<sub>2</sub> dans l'atmosphère. Ses caractéristiques sont similaires à celles de OCO-2 à quelques différences près, dues à la configuration physique de l'instrument sur l'ISS et de l'orbite différente de l'ISS. La taille des pixels et la précision de l'instrument sont inchangées, mais la plage de latitude où des données peuvent être acquises est plus faible (approximativement les latitudes inférieures à 52°). Une différence fondamentale est l'heure locale de mesure qui peut varier (entre 10h et 16h en temps local), l'ISS n'étant pas un satellite héliosynchrone. L'algorithme utilisé pour traiter les données est le même que pour OCO-2 et les autres modes d'observations restent inchangés.

L'innovation majeure de cet instrument est l'ajout d'un miroir de pointage (pointing mirror assembly, PMA) qui permet de pointer des endroits spécifiques et réaliser des images 2D (Snapshot Area Map, SAM) de ≈80km\*80km à haute résolution (≈2km\*2km). Ce nouveau mode d'acquisition permet de cibler plus particulièrement les zones d'émissions anthropiques (zones urbaines, centrales thermiques). Ces images sont le point de départ du sujet de cette thèse : pour la première fois, nous avons un jeu de données (plusieurs milliers d'images en octobre 2022) important qui nous permet de vérifier la possibilité de quantifier les émissions urbaines depuis l'espace.

### 2.2.3 . CO2M

CO2M est une mission de l'agence spatiale européenne et du programme Copernicus de l'union européenne, la première à cibler explicitement les émissions anthropiques de CO<sub>2</sub> à grandes et fines échelles [Broquet et al., 2018, Pillai et al., 2016]. Elle prendra la forme d'une constellation de satellites identiques, opérant pour au moins 7 ans, et dont le lancement est prévu à partir de 2025. La mission mesurera en parallèle la colonne de XCO<sub>2</sub>, celle de NO<sub>2</sub> pour identifier les panaches de sources anthropiques [Kuhlmann et al., 2021], celle des aérosols grâce à un polarimètre multi-angle, et les nuages avec un imageur de nuages à haute résolution spatiale à trois bandes.

La mesure de XCO<sub>2</sub> sera faite en utilisant les 3 mêmes bandes que les missions OCO. La précision visée est inférieure à 0.7ppm et l'exactitude inférieure à 0.5ppm. Pour ce qui est des caractéristiques spatiales de l'échantillonnage, la fauchée devrait être supérieure à 200km et la résolution attendue de 2x3km. Par rapport aux missions OCO, la résolution et la précision sont sensiblement les mêmes, mais les images beaucoup plus larges. Ceci devrait permettre de mieux couvrir le panache des villes, par rapport aux SAMs de OCO-3 qui sont parfois plus petites que la ville visée. De plus, les mesures conjointes des aérosols et des nuages, non présentes pour les missions OCO, devraient permettre de mieux contraindre l'algorithme d'inversion et d'améliorer ainsi les estimations de XCO<sub>2</sub>. La mesure conjointe de NO<sub>2</sub> devrait, quant à elle, aider à la définition des limites des panaches de CO<sub>2</sub> urbains, les panaches de NO<sub>2</sub> étant plus visible que ceux de CO<sub>2</sub> (pas de concentration de fond). Dans les faits, cette amélioration de la détection du panache grâce à la mesure du NO<sub>2</sub> est un sujet de recherche. Le rapport émissions de NO<sub>2</sub> sur émissions de CO<sub>2</sub> n'étant pas le même suivant les secteurs d'activité, il en résulte que les principales sources de NO<sub>2</sub> dans une ville ne sont pas forcément les principales sources de CO<sub>2</sub> dans cette ville et les 2 panaches ne sont pas forcément coïncidant.

### 2.2.4 . Futures missions

2 satellites, GOSAT-GW (développé au Japon<sup>1</sup>) et MicroCarb (développé en France<sup>2</sup>), seront lancés dans les prochaines années et auront un "city mode", similaire au mode SAM de OCO-3, qui leur permettra d'acquérir des images de XCO-2 de 90km\*90km (GOSAT-GW) et 40km\*40km (MicroCarb) à ≈2km\*2km de résolution. Un des intérêts de MicroCarb est l'ajout d'une bande de mesure pour le dioxygène qui devrait améliorer la précision des observations de XCO<sub>2</sub>.

---

1. [https://www.nies.go.jp/soc/doc/IWGGMS-18/0/2-2\\_Denis\\_Jouglelet.pdf](https://www.nies.go.jp/soc/doc/IWGGMS-18/0/2-2_Denis_Jouglelet.pdf)

2. [https://www.nies.go.jp/soc/doc/IWGGMS-18/0/2-6\\_Hiroshi\\_Tanimoto.pdf](https://www.nies.go.jp/soc/doc/IWGGMS-18/0/2-6_Hiroshi_Tanimoto.pdf)

Le satellite GeoCarb, dont le lancement est prévu pour 2025, est une mission de la NASA dédiée à la compréhension du cycle du carbone. Elle observera les concentrations de dioxyde de carbone mais aussi de monoxyde de carbone et méthane. La particularité de cette mission par rapport aux autres présentées ici est que le satellite qui l'hébergera sera géostationnaire. Les observations se feront donc au-dessus des Amériques avec des revisites au moins quotidiennes. La résolution attendue sera cependant plus faible que celle des missions OCO, avec une résolution horizontale au sol de 5 à 10km<sup>3</sup>.

Enfin, CarbonMapper, mission américaine lancée à partir de 2023, devrait fournir des observations de XCO<sub>2</sub> à une résolution de 30m grâce à une constellation de satellites<sup>4</sup>.

### 2.3 . Utilisation pour estimer les émissions des villes

Les missions satellites mesurant le CO<sub>2</sub> dans la basse Troposphère (GOSAT, OCO-2) ont été utilisées pour mesurer l'évolution de la concentration en CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère et pour estimer les flux de surface à l'échelle continentale ([Houweling et al., 2015, Crowell et al., 2019]) ainsi que leurs évolutions temporelles. L'estimation des flux de surface a été généralement faite par inversion atmosphérique, en reprenant le formalisme des méthodes d'assimilation de données météorologiques et en l'appliquant aux observations de CO<sub>2</sub> atmosphérique. Les modèles météorologiques (tel que WRF, [Skamarock et al., 2008]) sont utilisés en ajoutant des traceurs passifs permettant de suivre le mixage des flux de CO<sub>2</sub> surfacique dans l'atmosphère. L'utilisateur fournit au modèle les flux de surface dont il souhaite connaître le transport dans l'atmosphère au cours du temps et le modèle va calculer la distribution spatiale et temporelle de la concentration atmosphérique des molécules (ici du CO<sub>2</sub>) provenant des flux de surface fournis comme données d'entrée. Le résultat de la modélisation est ensuite comparé aux observations satellitaires ou au sol (ref, ref) pour affiner les flux de CO<sub>2</sub> surfacique.

Dans les années 2010, les premières études tentant d'estimer les émissions de CO<sub>2</sub> urbaines avec des mesures de concentrations atmosphérique apparaissent. [Bréon et al., 2015, Lauvaux et al., 2016, Stauffer et al., 2016] utilisent les données de réseau de tours au sol dans et autour des villes, [Broquet et al., 2018, Pillai et al., 2016] étudient le potentiel d'imageurs à haute résolution ( $\approx 2\text{km} \times 2\text{km}$ ) pour estimer les émissions urbaines. Toutes ces études utilisent le formalisme bayésien et essaient d'optimiser le profil temporel des émissions avec leur vecteur d'état, sauf [Pillai et al., 2016] dont le vecteur d'état ne contient que les émissions globales instantanées et le niveau de concentration de fond. Malgré des résultats intéressants, les estimations avec des réseaux de capteurs au sol sont difficiles à mettre en place à grande échelle du fait de la densité du réseau nécessaire, du coût des capteurs ainsi que celui de leur calibration et leur maintenance [Kort et al., 2012]. De plus, les erreurs de transport sont une source majeure d'incertitudes à l'échelle urbaine ([Lian et al., 2021]).

OCO-2, par ses mesures à haute résolution (1.5km\*2.5km) jamais vu jusqu'alors pour le CO<sub>2</sub>, a permis aux premières études estimant les émissions de villes avec des données satellitaires de voir le jour à la fin de la décennie 2010. [Lei et al., 2021, Wu et al., 2020, Yang et al., 2020, Ye et al., 2020] utilisent eux aussi le formalisme bayésien et des modèles de transport pour estimer les émissions des villes qu'elles ciblent avec les données OCO-2. Cependant, leur vecteur d'état n'a dans les faits qu'une dimension, car ces études ne cherchent qu'à obtenir un bilan d'émissions pour la ville et non un profil temporel ou une décomposition spatiale/sectorielle. Ceci s'explique par l'échantillonnage assez étroit d'OCO-2 (une dizaine de kilomètres), échantillonnage qui peut donc difficilement contraindre un profil temporel ou sectoriel. Cependant, même avec des imageurs 2D, pouvoir obtenir un profil temporel semble difficile ([Broquet et al., 2018]). En effet, le panache mesuré ne correspond que aux émissions émis dans les quelques précédentes. Les émissions nocturnes, par exemple, ne seront jamais estimables via des mesures satellitaires. Au delà de la pertinence relative du formalisme bayésien pour ces estimations, là aussi cette méthode

---

3. <https://www.ou.edu/geocarb>

4. [https://www.nies.go.jp/soc/doc/IWGGMS-18/0/5-4\\_Riley\\_Duren.pdf](https://www.nies.go.jp/soc/doc/IWGGMS-18/0/5-4_Riley_Duren.pdf)

est difficilement déployable à grande échelle car elle demanderait de faire tourner, pour chaque ville, des modèles de transport très coûteux en temps de calcul. De plus, les performances de ces modèles ne sont pas très bonnes à fine échelle ([Feng et al., 2016, Lian et al., 2018]).

D'autres études ont ainsi pris le parti d'abandonner ce formalisme bayésien ([Chevallier et al., 2020, Chevallier et al., 2022, Nassar et al., 2017, Reuter et al., 2019, Zheng et al., 2020]) et les modèles de transport coûteux pour estimer les émissions des zones urbaines et des centrales thermiques en utilisant des méthodes plus simples, avec des panaches gaussien, des bilans de masse ou des calculs direct de flux. Ces méthodes à faible temps de calcul, d'abord utilisées dans la communauté de la pollution atmosphérique (ref, ref), ont été utilisées dans les années 2010 pour l'estimation d'émissions de gaz à effet de serre avec des campagnes de mesure par avion [Cambaliza et al., 2015, Krings et al., 2011, Krings et al., 2013, Frankenberg et al., 2016], puis avec des données satellitaires pour l'estimation de fuite de méthane par [Varon et al., 2019, Varon et al., 2020]. Ces trois dernières années, l'évaluation ([Kuhlmann et al., 2019, Kuhlmann et al., 2020]), et l'utilisation de ces méthodes avec les données OCO-2 ([Chevallier et al., 2020, Chevallier et al., 2022, Zheng et al., 2020]) se sont développées. Cependant, les hypothèses nécessaires à ces méthodes sont fortes, ce qui peut limiter leur application. Une meilleure évaluation de ces méthodes est donc nécessaire.

c'est-à-dire générées avec une modèle de transport, par opposition aux données "réelles" qui, dans la suite, désignent les données issues d'observation (de OCO-2/3 pour les champs de XCO<sub>2</sub>) ou de réanalyses météorologiques (pour les données de vents, de pressions,..). Les images de concentration en XCO<sub>2</sub> obtenues avec ces données synthétiques sont appelées "pseudo-images" pour éviter toute confusion avec les SAMs "réels" d'OCO-3.

## 2.4 . Objectifs et structure de la thèse

Le but originel de cette thèse était d'estimer les émissions de CO<sub>2</sub> des villes en développement à partir des SAMs d'OCO-3. Le faible nombre de SAMs exploitable par ville nous a fait revoir cet objectif, le but étant alors de participer à l'amélioration des méthodes d'inversion de panache pour estimer les émissions de CO<sub>2</sub> urbaines à partir d'images satellites de champ de XCO<sub>2</sub>. Cela passe par l'étude du potentiel des missions existantes (OCO-2/3) et prévue à court terme (CO2M).

Pour faire cela, la première étape (chapitre 3) est de sélectionner les méthodes qui seront utilisées, et de comprendre précisément leurs comportements afin de pouvoir interpréter de manière éclairée les résultats que nous aurons quand nous traiterons les SAMs. Comme nous souhaitons évaluer les émissions d'un grand nombre (a priori plusieurs dizaines) de villes, nous faisons le choix de nous focaliser sur des méthodes à faible temps de calcul. Cette sélection est faite en utilisant des données synthétiques de champ de CO<sub>2</sub> et de champs météorologiques.

Une fois que cette première étape était déjà bien avancée et que nous avons des premières tendances sur les méthodes que nous souhaitons garder, nous avons appliqué une version adaptée (voir chapitre 4) de ces méthodes aux données OCO-2 à proximité de Lahore pour nous confronter aux données réelles.

Après avoir vu l'importance des conditions d'observations dans l'étude avec les données OCO-2 autour de Lahore, nous nous sommes intéressés à la sensibilité de l'erreur sur l'estimation aux conditions d'observations (voir chapitre 5) en utilisant les méthodes sélectionnés lors de l'étude avec les données synthétiques de Paris. Le but est ici de pouvoir quantifier l'erreur associée à l'estimation en fonction des conditions d'observation de l'image (conditions météorologiques, caractéristiques de la ville, diagnostiques sur l'image,..). Cette étude est réalisé avec des données synthétiques pour 31 mégapoles dans le monde. A partir des sensibilités de l'erreur au conditions d'observations (conditions météorologiques, caractéristiques de la ville, de la pseudo-image,..), nous définissons des critères de sélection des pseudo-images et quantifions l'erreur sur l'estimation des émissions associée aux groupes de pseudo-images ainsi formées. Nous avons ainsi des critères objectifs pour sélectionner les conditions les plus favorables à une inversion par nos méthodes.

Le comportement et les performances de nos méthodes ayant été étudiées en détail avec des données synthétiques,



nous appliquons enfin nos méthodes à la totalité des SAMS d'OCO-3 disponibles (voir chapitre 6). Nous revisitons les conclusions des chapitres précédents, et en particulier la pertinence des critères de sélection définis. Nous évaluons la réussite de l'automatisation de nos méthodes et la pertinence des critères de sélection, ainsi que des sensibilités de l'erreur aux conditions d'observations, identifiés dans le chapitre précédent et nous évaluons finalement la possibilité de suivre l'évolution des émissions urbaines avec nos méthodes à faible temps de calcul.

### 3 – Sélection des méthodes d'inversion de panache

Pour sélectionner les méthodes d'inversion de panache à faible temps de calcul, nous les étudions de manière détaillée en les appliquant à un jeu de données synthétiques. Ces données sont issues de simulations de transport de CO<sub>2</sub> couvrant la ville de Paris, ville densément peuplée et qui a été souvent prise comme cas-test au sein du laboratoire dans les années passées ([Bréon et al., 2015, Broquet et al., 2018, Lian et al., 2018, Lian et al., 2019, Lian et al., 2020, Lian et al., 2021, Staufer et al., 2016, Santaren et al., 2021]). Les simulations utilisées ont été notamment évaluées en détail dans [Lian et al., 2018, Lian et al., 2019, Lian et al., 2020, Lian et al., 2021].

Les méthodes que nous allons étudier sont choisies grâce à une revue préalable des méthodes à faible temps de calcul utilisées dans la communauté du CO<sub>2</sub> pour l'estimation des émissions urbaines ([Kuhlmann et al., 2019, Reuter et al., 2019, Zheng et al., 2019]) et aussi de sources ponctuelles (centrale thermiques [Nassar et al., 2017], volcans [Schwandner et al., 2017]) ainsi que dans d'autres communautés : celle du méthane ([Buchwitz et al., 2017, Frankenberg et al., 2016, Varon et al., 2018, Varon et al., 2019]) principalement, du SO<sub>2</sub> ([Fioletov et al., 2011]) et aussi avec des données non satellitaires ([Bovensmann et al., 2010, Cambaliza et al., 2014, Krings et al., 2011]). La plupart des méthodes rencontrées lors de cette revue ont été testées dans ce chapitre.

Les méthodes d'inversion choisies suivent toutes les mêmes étapes : (i) la définition des limites du panache, (ii) l'estimation des concentrations de fond et la séparation du signal de la ville de celui du fond, (iii) l'identification de l'axe central du panache, (iv) l'estimation de la vitesse et de la direction du vent effectif, (v) la définition des limites de la zone ciblée et enfin (vi) l'estimation des émissions qui correspondent à la zone ciblée. Nous regardons de façon générale le comportement des méthodes d'inversion pour identifier leurs configurations optimales. L'intérêt de travailler avec des données synthétiques est que nous connaissons parfaitement les émissions ayant engendrées les pseudo-images que nous étudions et pouvons ainsi calculer exactement l'erreur des méthodes testées lors de l'estimation des émissions. En outre, comme nous connaissons parfaitement les champs de concentration de CO<sub>2</sub> et les champs de vent, nous sommes en mesure d'enlever certaines sources d'erreur, comme par exemple celle liée à la définition des limites du panache (étape(i)). Ainsi, pour définir les meilleures configurations d'inversion, nous tirons partie de cette connaissance exacte pour réaliser plusieurs inversions où les différentes sources d'erreurs (erreur dans le champ de vent, dans la définition des limites du panaches,...) sont ajoutées séparément. Nous pouvons ainsi quantifier les différentes composantes de l'erreur.

Pour sélectionner nos méthodes, nous nous sommes principalement basés sur l'étude de [Varon et al., 2018] concernant les méthodes d'estimation des émissions et avons plus largement exploré la littérature pour les autres étapes de la chaîne d'inversion ([Hakkarainen et al., 2016, Kuhlmann et al., 2020, Ye et al., 2020], cf section 3.2.9). Les méthodes utilisées et décrites dans ce chapitre et dans cette thèse en général ont été entièrement codées à partir des informations contenues dans les articles dont elles sont tirées, avec parfois des adaptations à notre contexte particulier. Le codage a été effectué en orienté-objet, avec un module pour transformer les sorties WRF en pseudo-images, des modules pour chaque étape de la chaîne d'inversion. Ceci a été fait afin de pouvoir facilement ajouter des méthodes alternatives pour chaque étape de l'inversion, mais aussi afin de pouvoir utiliser le même code avec un autre jeu de pseudo-images (autre ville, autre modèle de transport,...), avec des vraies images satellites (OCO-2, OCO-3 et le futur CO<sub>2</sub>M) et avec d'autres espèces chimiques.

Cette étude a été détaillée dans un article soumis à la revue *Remote Sensing of Environment* le 12 avril 2022 avec comme liste d'auteurs : Alexandre Danjou, Grégoire Broquet, Jinghui Lian, François-Marie Bréon et Thomas Lauvaux. Il est actuellement en révision. Nous présentons un résumé en français des principales conclusions avant de mettre l'article tel qu'il a été soumis.

#### 3.1 . Résumé de l'article

Question : Quelles sont les caractéristiques (biais, écart-type et sensibilité de l'erreur) des méthodes à faible temps de calcul quand elles sont optimisées pour un imageur dédié au CO<sub>2</sub> urbain ?

Nous présentons dans cet article une comparaison des différentes méthodes à faible temps de calcul pour l'estimation des émissions de CO<sub>2</sub> urbaines en utilisant des pseudo-images satellitaires de XCO<sub>2</sub> pour la ville de Paris. Après avoir détaillé les données et le modèle utilisés pour générer nos pseudo-images, nous présentons les différentes méthodes testées pour chaque étape de l'inversion.

Nous analysons tout d'abord les méthodes d'estimation des émissions (étape (vi) de la méthode d'inversion) en supposant le signal de la ville parfaitement connu ainsi que le vent qui l'a créé (pas de concentration de fond, vent 3D parfaitement connu). Nous montrons que toutes les méthodes sélectionnées (Cross-sectional method, Integrated Mass Enhancement Method, Source Pixel method, méthodes basées sur un modèle gaussien, cf section 3.2.4.1) sont semblables et que l'erreur sur l'estimation des émissions dans ce contexte idéal est très faible (biais inférieur à 2% et IQR *-InterQuartile Range-* inférieur à 15%). Nous analysons ensuite les résultats obtenus avec les différentes méthodes testées pour chaque étape de l'inversion pour ne retenir qu'une méthode par étape (cf section 3.2.4.2). Nous montrons ainsi que l'erreur sur l'estimation des émissions avec une image réaliste, et dans la configuration optimale de la méthode d'inversion, est inférieure à 10% en terme de biais, et de l'ordre de 75% en terme d'IQR. L'erreur est principalement due aux étapes d'estimation de la concentration de fond et d'estimation du vent effectif (cf section 3.2.4.4). Les méthodes d'inversion utilisant la méthode Source Pixel pour l'estimation des émissions sont mises de côté, n'ayant pas trouvé de méthode d'estimation du vent effectif suffisamment précise pour la zone d'analyse particulière à la méthode Source Pixel. Nous montrons en outre que l'erreur sur l'estimation des émissions est sensible à la variabilité spatiale de la direction du vent et à la variabilité spatiale de la concentration de fond dans l'image. Un filtrage des pseudo-images basé sur ces 2 paramètres permet de réduire l'IQR de 20% (passage de 94% à 74% pour GP2) en enlevant 43% des images (cf section 3.2.4.3). Nous élargissons ensuite cette étude à des pseudo-images générées à partir d'échantillonnage de missions satellites en cours (OCO-3 et 2). Cela nous permet de voir l'avantage de l'imageur OCO-3 comparé au satellite OCO-2, qui a une plus fine fauchée (cf section 3.2.4.5).

Nous finissons cette étude en discutant l'influence des erreurs dans le champ de vent 3D sur l'erreur sur les émissions, la variabilité intra-annuel des résultats due à la variabilité des paramètres (variabilité spatiale de la direction du vent et de la concentration de fond dans l'image) influençant l'estimation des émissions et enfin en discutant l'importance des sources d'erreurs non prise en compte dans l'article.

### 3.2 . Article

**Abstract** There is a growing interest in estimating urban CO<sub>2</sub> emission from space-borne imagery of XCO<sub>2</sub>. Here, we evaluate computationally-light methods (mass-balance approaches and inversions of Gaussian plume models) for estimating emissions with Paris, France, as an example. This evaluation is based on the application of those methods to synthetic high-resolution images of the XCO<sub>2</sub> field in the Paris area, either with hypothetical 165km\*200km images at 1km\*1km resolution or using more realistic ≈2km resolution sampling by OCO-2 and OCO-3. Our work quantifies and analyzes the different sources of error when applying these methods and the corresponding pre-processing steps in details. We start with ideal test cases with a perfect knowledge of the background concentration field, to the driving effective wind and area of the plume from Paris, and without measurement noise in the images. Then we introduce sources of errors associated to these patterns step by step. With the best configuration for the different methods, and when accounting for these sources of errors, we obtain total errors with little bias (<10% of the actual emissions) and a relatively large interquartile range (≈75% of the actual emissions). Overall, the different methods that are tested show similar skills for the emission calculation. The two main sources of uncertainty are the estimates of the background concentration and the effective wind speed. The error distribution is sensitive to meteorological conditions (mainly to the spatial variability of the wind direction) and to the variability of the background XCO<sub>2</sub>

field. Using OCO-2-like or OCO-3-like samplings, rather than hypothetical 200-km wide images at 1km resolution, leads to an increase of the random uncertainty but not of the error biases.

### 3.2.1 . Introduction

Urban areas encompass more than half of the global population, hence a large fraction of fossil fuel emissions [UNDESA, 2018]. Many cities across the globe decided to take their part in GHG emission reduction (e.g., Covenant of Mayors). To assess their reduction pathway, they monitor their emissions (both direct -e.g., from vehicle traffic in the city- and indirect -e.g., from road transport or power plants supplying the city but outside her boundaries) through Self-Reported Inventories (SRI's). However, a recent comparison between published SRI's of US cities and Vulcan inventory by [Gurney et al., 2021] showed large discrepancies between these two datasets, despite a geographic alignment of the city boundaries and emission sectors, gases, and scope. This pointed out the inaccuracy of the emission evaluation in most SRI's. In principle, measuring the CO<sub>2</sub> emissions of cities via atmospheric data could provide accurate information to support those SRI's. Studies such as [Bréon et al., 2015] or [Lauvaux et al., 2016] have initiated the assessment of the potential of urban ground-based sensors network to quantify CO<sub>2</sub> emissions at city scale, but the required network density ([Kort et al., 2013]), the cost of the sensors as well as the calibration and maintenance protocols make this solution difficult to deploy at large-scale ([Wu et al., 2018]). On the opposite, satellites allow for global coverage and are thus more promising to reach large-scale mitigation goals. However, they require adequate observation sampling and to overcome some specific challenges for the inversion of the city emissions ([Ciais et al., 2015]). Current missions dedicated to monitoring CO<sub>2</sub> use passive instruments measuring the absorption of reflected sunlight in the short wave infrared (SWIR). [id=reviewer1]Such measurements are used to derive the column-average dry air mole fraction of CO<sub>2</sub> (XCO<sub>2</sub>). Such measurements are used to derive the dry air mole fraction of CO<sub>2</sub> in vertical columns of the atmosphere, denoted total column concentrations (XCO<sub>2</sub>). No space mission fully dedicated to urban emission calculation have yet been launched. Space-borne data from the Orbiting Carbon Observatory-2 (OCO-2) mission of NASA/JPL, however, offers a first and unique dataset allowing us to assess the potential of such an approach ([Chevallier et al., 2022, Lei et al., 2021, Wu et al., 2020, Ye et al., 2017, Zheng et al., 2020]).

OCO-2 was initially dedicated to large-scale monitoring of CO<sub>2</sub> natural fluxes. It has a narrow swath on the ground (<10km) and provides high-resolution measurements (1.25km\*2.5km in nadir mode ; [Eldering et al., 2017]). At such high resolution, OCO-2 captures local enhancements of CO<sub>2</sub> concentrations when the satellite swath crosses the plume emitted from a city or a large point source. Enhancements detected with OCO-2 allow emissions estimates by converting the concentration enhancements into emission estimates via atmospheric inversion or mass balance approaches. Atmospheric inversion approaches are based on the comparison between observed enhancements and those simulated by atmospheric models. While traditional atmospheric inversion approaches use computationally expensive Eulerian or Lagrangian models ([Wu et al., 2018, Ye et al., 2017]), the specific process of plume observations can rely on simpler models (like Gaussian plume models ([Krings et al., 2011])). In contrast, direct flux integration techniques, which are generally called "mass-balance methods", rely on the direct multiplication of these enhancements by the wind to obtain an emission estimate of the city ([Zheng et al., 2020]). The use of broad images rather than thin cross-sections of city plumes increases the robustness of urban emission calculation [Santaren et al., 2021]. Indeed, XCO<sub>2</sub> imagers increase our capability (i) to determine the exact plume location, (ii) to evaluate the simulated meteorological conditions produced by re-analysis products or dedicated atmospheric transport simulations and (iii) offer more samples to quantify the plume XCO<sub>2</sub> enhancement, which mitigates the impact of measurement noise and background variations from meteorological conditions or from other sources and sinks. Future satellite missions will provide high-resolution observations within large-swaths [Santaren et al., 2020]. Despite its moderate extent of about 80km\*80km, the Snapshot Area Map (SAM) mode of OCO-3, onboard the International Space Station [Eldering et al., 2019], is the first attempt to deliver such imagery at ≈2km resolution using the the pointing capability of the instrument. Thus OCO-3 is considered as a demonstrator of the future high-resolution imagers like the CO2M

constellation ([Kuhlmann et al., 2021]). This study analyzes the potential of such imagery for the monitoring of CO<sub>2</sub> emissions from urban centers.

Past studies have examined the potential to monitor urban emissions with XCO<sub>2</sub> large-swath imagers using inversion models which relied on traditional Bayesian frameworks and complex mesoscale Eulerian or Lagrangian atmospheric transport models ([Broquet et al., 2018, Pillai et al., 2016]). These studies focused primarily on the propagation of errors associated with satellite data into emission estimates. Transport model errors in such inversion frameworks are often represented by unbiased random noise, spatially uncorrelated ([Rayner et al., 2019]). There are only a few inversion systems which offers the opportunity to adjust the atmospheric transport in parallel with the emissions due to the complexity implied by such a concept [Liu et al., 2012]. However, due to uncertainties in the meteorological fields, in the emission vertical injection profile and in vertical motion at high spatial and temporal resolutions, atmospheric transport can be responsible for significant mismatches between simulated and observed plumes (incorrect location, shape or magnitude of XCO<sub>2</sub> enhancements from cities). For example, [Ye et al., 2017] pointed out such mismatch between the locations of the XCO<sub>2</sub> enhancements simulated by the Weather Research and Forecasting (WRF)-Chem model [Skamarock et al., 2008], compared to city plumes observed by OCO-2. Consequently, transport errors introduce large uncertainties and even biases in emissions estimates. Inversion of simplified transport models (like Gaussian models) or direct flux integration techniques are less computationally expensive and offer a more flexible representation of the atmospheric transport compared to mesoscale models. They allow for adjustment of the plume shape and direction while inferring the local city emissions ([Nassar et al., 2017]). These inversion methods rely on pre-calculated wind fields and do not require expensive atmospheric transport modeling to process satellite XCO<sub>2</sub> data ([Zheng et al., 2020]). Light computational approaches are able to process large amounts of plume images, enabling monitoring of many cities across the globe, at high temporal frequency and over multiple years ([Chevallier et al., 2020]).

In this study, we assess the potential of XCO<sub>2</sub> images to quantify urban CO<sub>2</sub> emissions by comparing the most commonly-used computationally-light methods. Our evaluation uses synthetic pseudo-observations over the Paris region, simulated on the basis of a high-resolution inventory of fossil fuel emissions [Lian et al., 2022], biogenic fluxes from a simplified vegetation model, and a Eulerian mesoscale atmospheric transport model. We compare three variants of a Gaussian plume model (GP) to several direct flux integration techniques in the following : Integrated Mass Enhancement (IME), source pixel (SP), and cross-sectional (CS) methods. Some studies have applied such methods to quantify urban CO<sub>2</sub> emissions based on pseudo XCO<sub>2</sub> images [Kuhlmann et al., 2020] or based on observed XCO<sub>2</sub> plume cross-sections from OCO-2 ([Chevallier et al., 2020, Reuter et al., 2019, Zheng et al., 2020]). However, these methods have never been fully evaluated nor compared using various configuration options. We intend here to maximize their performances, highlighting the optimal methods and parameters under various meteorological conditions. We focus on a specific area, the Paris metropolitan region, considering three types of observation modes. Our main mode assumes a 1 km resolution imagery over an area of 165x200 km. The two other observation modes correspond to OCO-2 tracks and OCO-3 SAMs.

[Varon et al., 2018] evaluated the potential of the methods studied here to estimate stationary CH<sub>4</sub> emissions from industrial point sources based on XCH<sub>4</sub> images at <1 km resolution. However, the requirements for the estimation of urban CO<sub>2</sub> emission based on XCO<sub>2</sub> imagers, with a sampling similar to CO2M, can differ from those highlighted by [Varon et al., 2018]. At city scale, emissions come from a wider area compared to point sources and show a more complex spatial distributions. Current XCO<sub>2</sub> images have a broader coverage than XCH<sub>4</sub> images in [Varon et al., 2018] but also a coarser spatial resolution. We also examined pre-processing steps : mainly the computation of the effective wind speed (i.e., the average wind driving the location and shape of the XCO<sub>2</sub> plume) and the detection in the XCO<sub>2</sub> image of the targeted plume enhancements and of the corresponding XCO<sub>2</sub> background.

Section 2 presents the model and the pseudo data used for our tests ; section 3 describes the different configurations for the inversion chain with the different pre-processing steps and associated methods. Section 4 evaluates the

results given by the different configurations and highlights the optimal ones. Finally, section 5 discusses the results, the potential errors not taken into account and the perspectives for the light inversion methods.

### 3.2.2 . Idealized simulation and experiment protocol

#### 3.2.2.1 . General description of the experiments

We evaluate the estimation methods, including pre-processing steps, based on a large ensemble of pseudo-images of XCO<sub>2</sub> centered on Paris, considering the full simulation or limited to the actual XCO<sub>2</sub> sampling from the OCO missions. These experiments aim at retrieving the emissions at the time of the satellite overpass from the core urban area of Paris that covers Paris and most of its suburban area (see section 3.2.2.2 for a precise definition of these geographical areas). This core urban area is best-suited for satellite detection compared to the administrative boundaries, corresponding to the analysis of the atmospheric plumes within the region (due to detection limits). The city center is taken as the point of coordinates 48° 51'12" N 2° 20'55" E.

The Paris metropolitan area is located in the center of the northern half of France, in a vast sedimentary basin with limited topography, about 150km away from the coast of the English Channel. The region encompasses about 10% of the national CO<sub>2</sub> emissions (sources : Origins.earth inventory, see section 3.2.2.2 and CITEPA, see <https://www.citepa.org/fr/2021-co2/>, last access March 17th 2022) and 11% of its population (6.8 millions) over a limited surface (0.1% of its surface). Paris is located in a region with limited topography (≈100 m altitude range), quite isolated from other major emitters. Combined with the high population density and the relatively high compactness of the urbanization, the urban area of Paris generates atmospheric plumes that are sharp and distinct, hence convenient to detect compared to other large metropolitan areas, despite the absence of power plants or major emitting industry in the area ([Santaren et al., 2021]). However, the urban enhancements hardly exceed 1 ppm locally, and are generally smaller than the random noise of current instruments. Their average over the plume area that will be used for the analysis (see section 3.2.3.1) is generally less than 0.2 ppm.

The idealized XCO<sub>2</sub> data used in this study were simulated using WRF-Chem model simulations from December 1<sup>st</sup> 2019 to April 30<sup>th</sup> 2020. For each day during this period, we extract the resulting XCO<sub>2</sub> hourly fields between 10 :00 and 16 :00 (local time is used hereafter) to simulate XCO<sub>2</sub> images for each observation mode. We conduct an ensemble of experiments on each of the corresponding 1064 pseudo-images (152 days x 7 hours) for each observation mode. The timing for the extraction of the images varies in order to increase the number of weather conditions represented in the ensemble of tests, but restrained to daytime only. To date, all space-borne instruments dedicated to monitoring CO<sub>2</sub> concentrations collect passive measurements of the reflected sunlight and thus provide daytime observations. While sun-synchronous missions like CO2M will provide images at fixed local time, SAMs by OCO-3 onboard the ISS can be taken at various local times [Eldering et al., 2019].

#### 3.2.2.2 . Model configuration

We used high-resolution simulations of hourly atmospheric CO<sub>2</sub> concentrations by WRF-Chem V3.9.1 based on the configuration described in [Lian et al., 2019, Lian et al., 2021, Lian et al., 2022]. The WRF model configuration uses a one-way nesting approach across three domains (D01, D02, and D03) at 25, 5, and 1 km horizontal resolution respectively, in which the innermost domain (D03, shown in Figure 3.1) covers the Île-de-France (IdF) region. IdF corresponds to an administrative area that includes the Paris urban core and its surrounding, extending beyond Paris' suburbs. The surface physics schemes in our simulation include the Building Effect Parameterization (BEP, [Martilli et al., 2002]) which is a multi-layer urban canopy model, evaluated in [Lian et al., 2021]. To simulate turbulent motions in the Planetary Boundary Layer (PBL), we used the Mellor-Yamada-Janjic (MYJ) scheme ([Janjic, 1990, Janjic, 1994]). The configuration of [Lian et al., 2022] is used for the simulations from December 1<sup>st</sup> 2019 to April 30<sup>th</sup> 2020. The ERA-5 ECMWF re-analysis fields at 0.75°\*0.75° horizontal resolution are used as meteorological forcing (initial and boundary conditions). The CO<sub>2</sub> boundary conditions correspond to interpolated fields of the analysis product of the Copernicus Atmosphere Monitoring System (CAMS ; [Inness et al., 2019]). The

biogenic CO<sub>2</sub> fluxes are calculated online in WRF-Chem by the diagnostic biosphere Vegetation Photosynthesis and Respiration Model (VPRM) ([Ahmadov et al., 2007, Ahmadov et al., 2009, Mahadevan et al., 2008]).

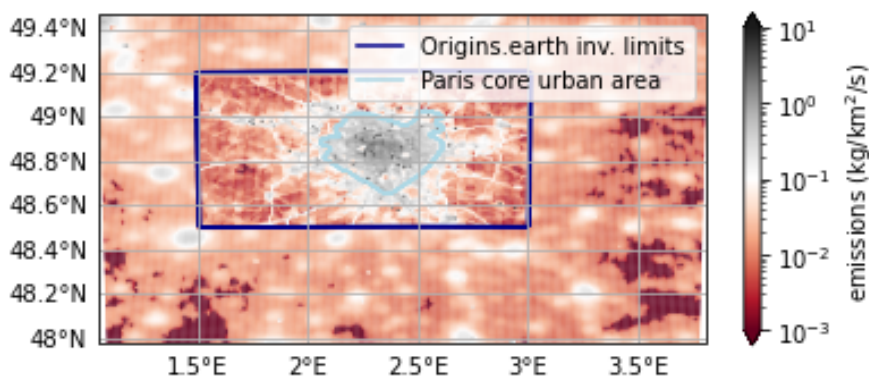


Figure 3.1 – Illustration of the spatial splitting of the WRF tracers with the emissions on 9/12/2019 at 1pm. The dark blue rectangle delimits the used of the ODIAC (outside) and Origins.earth (inside) inventories. The light blue line show the limits of the Paris core urban area.

A combination of the high-resolution inventory produced by Origins.earth over IdF and the global Open-source Data Inventory for Anthropogenic CO<sub>2</sub> (ODIAC) inventories ([Oda et al., 2019]) is used to simulate fossil fuel emissions over the entire simulation domain. Figure 3.1 shows the spatial extent of the high-resolution inventory which covers most of the metropolitan area.

The Origins.earth bottom-up inventory provides direct (Scope 1) hourly gridded CO<sub>2</sub> emissions over Paris for six activity sectors (transportation, residential, tertiary, industry including cement, energy, and waste) at the hourly time scale and at 1km spatial resolution as described in [Lian et al., 2022]. The IdF total fossil fuel emissions are scaled to the reported emissions from the french official climate agency (CITEPA). The Origins.earth inventory has been coupled to WRF-Chem and evaluated against CO<sub>2</sub> concentration data from six ground-based stations (high-precision Picarro CRDS CO<sub>2</sub> analyzers including WMO/NOAA international calibration standards) located across the Paris metropolitan region [Lian et al., 2021], confirming that our idealized simulations can reproduce the observed gradients over the Paris area.

ODIAC is a global gridded inventory of fossil fuel emissions at 1x1km spatial resolution and one-month temporal resolution based on power plant profiles and space-borne observations of nighttime lights [Oda et al., 2018]. Temporal downscaling was applied to ODIAC using the TIMES daily and hourly coefficients [Nassar et al., 2013a] to introduce high-frequency variations in fossil fuel emissions at hourly scale.

We separated further the Paris core urban area (delimited by the light blue line in figure 3.1) from the rest of D03 to evaluate the possibility of retrieving its emissions. This core urban area is defined, in practice, by the 1-km resolution grid cells with an urban fraction greater than 0.5 according to the Corine Land Cover (<https://land.copernicus.eu/pan-european/corine-land-cover>) dataset which has a resolution of 100m. In our final analysis, the enhancements from the core urban area corresponds to the plume targeted by the inversion chain. Background CO<sub>2</sub> corresponds to the remaining contributors, i.e. signals originating from outside the core urban area but within D03, from all biogenic fluxes within D03, and from variations caused by varying lateral boundary conditions.

These WRF-Chem simulations provide the "true" CO<sub>2</sub> and meteorological fields. Among these "true" fields, wind, pressure and potential temperature are assumed to be known along the different steps of the inversions. Because they remain difficult to quantify precisely, we have neglected emissions uncertainties due to errors in meteorological variables. We nevertheless discuss in Section 3.2.5.1 the potential impact of wind errors on our uncertainty estimates by adding noise to our deterministic model simulation.

The true  $\text{CO}_2$ , relative humidity and pressure fields are used to compute the true  $\text{XCO}_2$  fields. The computation of the  $\text{XCO}_2$  value at longitude  $lon$  and latitude  $lat$  follows the simplification proposed by [Broquet et al., 2018] to overcome the problem of the partial coverage of the vertical column by the WRF-Chem model :  $\text{XCO}_2(lon, lat) = \frac{1}{P_{dry}^{surf}} \left( \int_{P_{dry}^{surf}}^{P_{dry}^{top}} \text{CO}_2(lon, lat, P_{dry}) dP_{dry} + \langle \text{CO}_2(P_{dry}^{top}) \rangle_{d03} * P_{dry}^{top} \right)$  where  $P_{dry}$  is the dry air pressure,  $P_{dry}^{surf}$  the dry air surface pressure,  $P_{dry}^{top}$  ( $\approx 50\text{hPa}$ ) the pressure ceiling of the model and  $\text{CO}_2$  the  $\text{CO}_2$  dry air mole fraction. The second term of the integral assumes that the portion of the vertical columns of the atmosphere above the top of the WRF-Chem air column corresponds to a homogeneous  $\text{CO}_2$  concentration of  $\langle \text{CO}_2(P_{dry}^{top}) \rangle_{d03}$  (the mean  $\text{CO}_2$  concentration at the top of the model over domain 3). The actual assumption is that the variations in the upper-atmosphere are small and occur over large spatial scales, and thus that they do not significantly impact local signals in satellite images, dominated by the influence of the regional surface fluxes. Following [Broquet et al., 2018] and [Santaren et al., 2021], we also assume in this equation that the uniform vertical weighting function is a good approximation of the actual  $\text{CO}_2$  column-averaging kernels associated to actual  $\text{XCO}_2$  data. Other realistic choices of the vertical weighting function would not significantly impact this paper analysis and results.

### 3.2.2.3 . Satellite pseudo-images

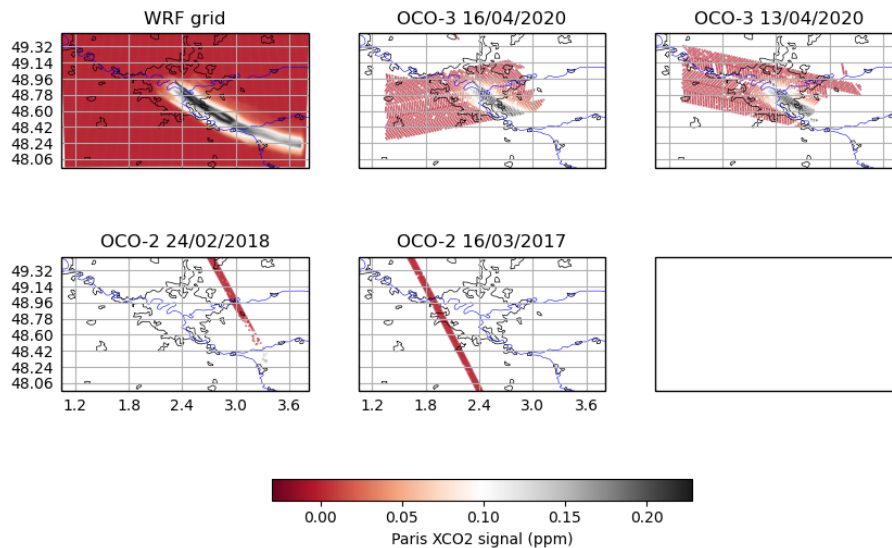


Figure 3.2 – Illustration of the different tracks used on the  $\text{XCO}_2$  anthropogenic signal of Paris obtain with WRF for 09/12/2019.

Five different sampling patterns are used following three types of satellite observation. First, we use the entire WRF-Chem orthonormal grid at 1km resolution for D03, which ignores the potential loss of data due to clouds, and which represents a more favorable configuration than that of the future  $\text{CO}_2\text{M}$  mission. This full sampling entirely exploits the spatial information on  $\text{XCO}_2$  from the model simulation at the observation time. Second, we use column samples corresponding to actual observation coverage patterns, selecting cases with a limited loss of data due to clouds and quality control from the OCO missions. We note here that we do not apply gap-filling techniques to account for such a loss when using direct flux integration techniques (see sections 3.2.4.5 and 3.2.5.3). We selected two typical tracks over the area from OCO-2 (ref dataset OCO-2) at approximately  $1.4\text{km}^2$  resolution and two SAMs from OCO3 (ref dataset OCO3) at approximately  $3.7\text{km}^2$  resolution (cf Fig 3.2 and Table 3.1).

All the corresponding pseudo-images are extracted from the true  $\text{XCO}_2$  1-km resolution field at the different sampling times detailed in section 3.2.2.1.



Table 3.1 – Main characteristics of the different samplings used to generated the XCO<sub>2</sub> pseudo-images.

	Resolution	Size	Dist. to city	Mission	Date
1km <sup>2</sup> ref. sampling	1km <sup>2</sup>	165x200 px	above	None	-
oco2_180224	≈1.5km <sup>2</sup>	533 px	46km	OCO-2	24/02/2018
oco2_140316	≈1.3km <sup>2</sup>	897 px	25km	OCO-2	16/03/2014
oco3_160413	≈3.6km <sup>2</sup>	2063 px	above	OCO-3	13/04/2016
oco3_160416	≈3.7km <sup>2</sup>	2003 px	above	OCO-3	16/04/2016

We impose an additional noise on XCO<sub>2</sub> pseudo-data to represent measurement errors, using a Gaussian noise with 0.7 ppm standard deviation. This value corresponds to the targeted precision for an XCO<sub>2</sub> single sounding of the CO2M mission [Sierk et al., 2021], similar to the current precision of OCO-2 XCO<sub>2</sub> measurements (see [Worden et al., 2017]). We choose not to study the effect of spatial error correlations on the inversion skills since the characterization of these errors has not been documented ([Santaren et al., 2020]).

### 3.2.3 . Inversion methods

The different inversion methods we test here, i.e. the IME, CS and SP methods, and the three versions of the GP inversions (GP1, GP2 and GP3), share sequences of all or some of the following pre-processing steps (Table 3.2) : (i) the definition of the plume area (section 3.2.3.6), (ii) the identification of the background field and the separation of the plume signature from the background (section 3.2.3.3), (iii) the identification of the plume centerline (section 3.2.3.4), (iv) the estimation of the effective wind speed and direction (section 3.2.3.6) and (v) the estimation of the area of the urban emissions which corresponds to the detected plume, i.e. the "footprint" of this detected plume (section 3.2.3.8) before (vi) the "emission calculation", i.e. the derivation of the fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions of the core urban area of Paris based on these different parameters (section 3.2.3.7). We test different techniques for a given step, trying to identify those that are the most accurate or that provide the most suitable inputs for the emission calculation. The following sections provide some general insights about these techniques and the different parameters used for their application. More detailed descriptions of their implementation and of these parameters can be found in the Supp. Mat. 3.2.9.1.

Table 3.2 – Summary of the pre-processing steps needed for the different emission computation methods. Green color indicates that the pre-processing step is needed, red that it is not.

	CS	IME	GP1	GP2	GP3	SP
(i) plume definition	Green	Green	Green	Green	Green	Red
(ii) background calculation	Green	Green	Green	Green	Green	Green
(iii) plume centerline detection	Green	Green	Red	Red	Green	Red
(iv) effective wind	Green	Green	Green	Green	Green	Green
(v) emission zone definition	Green	Green	Green	Green	Green	Red

#### 3.2.3.1 . Definition of the plume area

The true plume area is defined as the set of observation pixels where the true XCO<sub>2</sub> signal from the core urban area is superior to 10<sup>-6</sup> ppm. This threshold has been set empirically considering the shape and average (≈ 0.1ppm) of the signal from Paris in the WRF-Chem simulations. We test two types of methods to identify the plume area when the true plume area is unknown.

The first type of plume definition methods are denoted *test-based methods* and are adapted from the technique used by [Kuhlmann et al., 2019] and [Varon et al., 2018]. It relies on applying a statistical z-test to the XCO<sub>2</sub> image to identify observation pixels for which the relatively high values are probably associated with the plume. Our specific implementation of these methods follows five sub-steps (see the Supp. Mat. 3.2.9.1) : (i) a preliminary estimate and removal of the background concentration on the image ; for this computation, we test 4 options which are different in terms of area of analysis, or in terms of computation of the background in this area (they are denoted : 'bckgp\_mean',

'bckgp\_med', 'bckgp\_2df' and 'bckgp\_upw', since being based on the application to the XCO<sub>2</sub> field of respectively a mean, a median, a planar fit or a mean restricted to an area upwind to the city); then, for each pixel of the image resulting from this removal (ii) a smoothing of its neighborhood (using three different smoothing scales : 10, 20 and 30km, and three different types of smoothing using uniform, wiener and gaussian functions), and (iii) a labeling of the pixel if the statistical z-test indicates that it bears a local enhancement due to that of the true XCO<sub>2</sub> field rather than to the observation noise; finally (iv) a clustering of the labeled pixels with a selection of the cluster corresponding the best to the plume from Paris and (v) a restriction of this cluster to its portion downwind of the city.

The second type of method directly relies on the direction of the mean wind in the PBL above the core urban area (without analyzing the XCO<sub>2</sub> field) and is denoted wind-based method. The plume area is defined as the area comprised within  $\pm 22.5^\circ$  from the direction of the mean wind downwind to the city core urban area. This angle is quite arbitrarily fixed as a compromise between a value sufficiently large to entirely cover curved plumes and sufficiently low to support a suitable derivation of the background (see section 3.2.3.3).

The errors from the different pre-processing steps result in errors in the emission estimates during the final emission calculation. The error in the emission estimates due to errors in the plume definition is evaluated under three different conditions : (i) when knowing perfectly the background field (in which case there is no need to derive its preliminary estimate) (ii) in the absence of noise in the image and (iii) in "realistic" conditions for which we need a preliminary estimate of the background and where noise is affecting the image. The idealistic conditions of (i) and (ii) allow us to separately evaluate the impacts of the noise and the background for the plume definition. The experiments in conditions (iii) provide an estimate of their combination.

### 3.2.3.2 . Analysis zone

The direct flux integration techniques, the methods based on the Gaussian plume model, and the corresponding computation of the effective wind are applied to a subpart of the plume area called *analysis zone*. On the one hand, as most CO<sub>2</sub> emissions lie at the surface, and because the vertical mixing is not instantaneous in the PBL, there is a larger concentration of CO<sub>2</sub> near the surface than upper in the PBL, when focusing on area close to the city. This can, for example, perturb the estimation of the effective wind for method that assumes that CO<sub>2</sub> is well-mixed within the PBL. On the other hand, the parts of the plume far from the city correspond to emissions that occurred hours before the satellite overpass. Consequently, both emissions and winds are more likely to vary during that long time window. Our analysis is hampered by the assumption of stationarity, a requirement for all estimation methods with an impact that depends, again, on the methods.

We test different types of analysis zone to assess these potential sources of problems and their impact on the different types of estimation techniques : (i) the whole plume area (denoted 'city-∞') (ii) the restriction of the plume area to distances larger than 20 km downwind to the city center ('20km-∞') (iii) the restriction of the plume area to distances shorter than 40 km ('city-40km') or 60 km ('city-60km') downwind to the city center (iv) the restriction of the plume area to distances comprised between 20 km and 40 km ('20km-40km') or 60 km ('20km-60 km') downwind to the city center. We note here that the SP method does not rely on a definition of the plume area : the analysis zone is defined as the square of length  $L_{SP} = 40\text{km}$  centered on the city center, which is called the "source area".

### 3.2.3.3 . Background estimation

Six methods ( $m_i$ ) are tested to estimate the background values ( $XCO_{2,m_i}$ ), each method corresponding to either different plumes (detected following one of the methods described in section 3.2.3.1) or to the source area when applying the SP method (see Supp. Mat. 3.2.9.2). Some of these methods focus on the analysis of the concentrations on the "plume edges" (in the first case) or on the "source area edges" (in the second case). Edges are defined as the pixels located within 8km from the limits of the plume area (or from the source area, resp.). The value 8km has been chosen empirically. Additional methods simply use the full extent of the image (excluding the plume area) to

estimate the background, or just the zone located upwind of the plume area.

The computation of the background itself can rely on : (i) mean/median values or a planar fit over the full area of background analysis (methods denoted 'bckgl\_mean', 'bckgl\_med', 'bckgl\_upw' and 'bckgl\_2df'), (ii) extrapolation of the  $XCO_2$  field in the area of background analysis to the plume area using bi-harmonic functions over the whole image, or Gaussian kernels giving more weight to the vicinity of the plume (methods denoted 'bckgl\_bih' and 'bckgl\_gau'), or (iii) local estimations with the partition of the plume area into plume cross-sections (see section 3.2.3.5) and the computation of a linear background for each cross-section (method denoted 'bckgl\_cs'). More details about the methods can be found in Supp. Mat. 3.2.9.2.

Uncertainties in the emissions estimates due to errors in the background estimation are quantified under three different conditions : (i) in the absence of noise in the image and with a perfectly-known plume area, (ii) only with a perfectly-known plume area (but with noise), and (iii) in "normal" conditions for which the plume area must be detected within a noisy image. Our results under perfect conditions (i) allows us to discard some of the proposed approaches showing poor statistical performances. This selection of background estimation methods is used in our final uncertainty analysis as detailed in section 3.2.4.2.

### 3.2.3.4 . Plume centerline

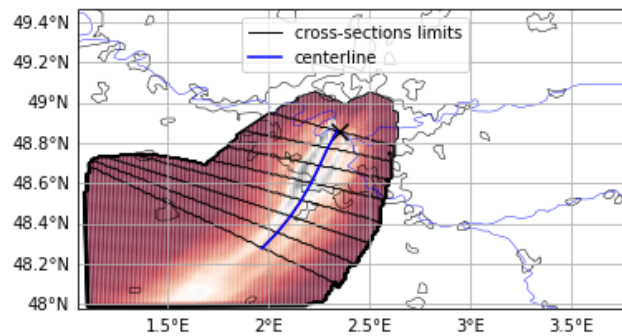


Figure 3.3 – Illustration of the cross-sections definition for 8km wide cross-sections with a 5th order polynomial fit.

We can define the plume centerline as the curve following the effective vertically-averaged wind driving the  $XCO_2$  plume from the city center. Since the actual wind direction varies in space and time, this centerline is often not straight. It is identified in the  $XCO_2$  field  $\delta XCO_{2,sm,N}$  obtained by removing from the image the background estimate  $XCO_{2,m_i}$  (as defined in section 3.2.3.3) and by applying a smoothing technique to each pixel (as described in section 3.2.3.1). We test two methods for this identification. Both derive the centerline as the curve that best fits the ensemble of pixel locations within the plume area, each pixel being weighted by its  $\delta XCO_{2,sm,N}$  concentration (similarly to [Kuhlmann et al., 2020]) : the first approach uses a linear fit, while the second uses a fifth-order polynomial fit. As expected, when the plume is strongly curved, the linear fit shows poor performances. However, when the plume is straight, a linear fit is less impacted by the observation noise compared to the polynomial fit.

We do not attempt at deriving the actual plume centerline. This limits our ability to quantify the uncertainties associated with the definition of the plume centerline. However, uncertainties due to the centerline mislocation are part of the total uncertainties in the derivation of the emissions.

### 3.2.3.5 . Plume cross-sections

The GP3 and the CS methods as well as the tangent wind and 'bckgl\_cs' methods for the effective wind and background computations rely on the partition of the plume area and of its vicinity into cross-sections. Those cross-sections consist of bands that are normal to the plume centerline. In practice, we sample points along the plume

centerline with a constant arc length. We then derive the normal to the plume centerline on each of these points. Those normal lines delimit the plume cross-sections. A cross-section is 5km long (other lengths have been tested but the sensitivity to this parameter was low, see Supp. Mat. 3.2.10.1).

For each cross-section, we identify the center of the corresponding portion of the centerline (denoted node). For the inversion of the most complex Gaussian plume model (GP3), each cross-section ( $i_{cs}$ ) is further partitioned along the normal to the plume centerline in small portions of  $N$  km wide,  $N$  being the arc length of the cross-section. The coordinates of each portion of each cross-section are defined as (i) the curvilinear abscissa of the cross-section node (denoted  $s$ ) and (ii) the distance along the corresponding cross-section between the cross-section node and the portion center (denoted  $n$ ). This coordinates system, which forms a non-regular grid (see figure 3.3), will be used to model the complex Gaussian plume.

### 3.2.3.6 . Effective wind evaluation

The effective wind is defined as the vertically-integrated wind driving the XCO<sub>2</sub> plume. The vertical integration of the "true" effective wind is thus weighted by the spatial distribution of the XCO<sub>2</sub> mass (see section 3.2.9.3).

When the vertical distribution of CO<sub>2</sub> is unknown, effective wind estimates rely on simple assumptions regarding this distribution. We test three methods of vertical integration or sampling of the wind field, which is assumed to be perfectly known in our experiments (see section 3.2.2.2) for this estimate.

The first method computes the mean wind in the PBL, assuming that the plume can rapidly mix within the PBL, downwind of the city. The second method uses the 10-m surface wind with a multiplicative coefficient, as proposed in [Varon et al., 2018]. The multiplicative coefficient representing the relationship between the 10-m surface wind and the plume effective wind is derived from meteorological simulations, here in the analysis zone '20km-40km'. The third method (denoted tangent wind hereafter) uses the wind sampled at the vertical level for which the plume direction aligns the most with the wind direction (i.e. the wind direction that aligns most with the tangent of the centerline). More details can be found in Supp. Mat. 3.2.9.3.

These methods are used to derive estimates of the 2D field of effective wind  $W_{eff}(x, y)$ . These 2D estimates  $W_{eff}(x, y)$  are then averaged horizontally over the analysis zone (resp. in the cross-sections for the CS method or in the "source area" for the SP method) to derive a single value of the horizontally average effective wind  $W_{eff}^{av}$ . This horizontal average weights the values of  $W_{eff}(x, y)$  by the corresponding values of  $\delta XCO_{2sm,N}$ .

These different methods to compute the effective wind depend more or less on the previous preprocessing steps. The horizontal weighted average of the effective wind depends on the plume area and background computation. The definition of the plume centerline (and thus the computation of the plume area and of the background) is a more critical step in the computation of the effective wind per cross-section in the tangent wind method. The methods are evaluated under three different conditions : (i) with perfect knowledge of the XCO<sub>2</sub> signature due to city emissions ; (ii) with a perfectly-known plume area and background and noise in the image ; and (iii) under "normal" conditions (with unknown plume, background, and noise).

### 3.2.3.7 . Emission calculation methods

The details on our implementation of the IME, CS and SP methods and of the GP inversions are given in 3.2.9.4. The IME method ([Frankenberg et al., 2016, Varon et al., 2020]) computes the total mass present in the analysis zone and divides it by the estimate of the time of residence of the CO<sub>2</sub> molecules in this zone. The SP method, adapted from studies such as [Buchwitz et al., 2017] and [Varon et al., 2018] focusing on point sources, computes the total mass in the source area (see section 3.2.3.2), and divides it by the estimate of the residence time of CO<sub>2</sub> molecules in this area. The CS method ([Krings et al., 2011, Kuhlmann et al., 2020, Varon et al., 2019]) computes the flux of CO<sub>2</sub> across each of the plume cross-section within the analysis zone (see 3.2.3.5) : this segmentation results in one emissions estimate per cross-section. The final emissions estimate from the different cross-sections is

the median of these different estimates. However, in the first part of section 3.2.4.1, we will investigate the different emissions estimates from the individual cross-sections in order to optimize some of the parameters such as the method used to define the plume centerline, and the definition of the analysis zone within the plume area.

The GP inversions use the general formulation of Gaussian plume model for extended sources used by [Krings et al., 2011]. The inversions consist in fitting the Gaussian plume models to the total column mass enhancement associated with the plume from the city derived from the XCO<sub>2</sub> images by optimizing in the model some of the following parameters : the emission from the city, the radius of the emission zone, the direction of the effective wind and the Pasquill stability parameter of the atmosphere. Three variants of the Gaussian model or the inversion parameters are tested. In the first variant, denoted "simple Gaussian plume model inversion" (GP1), the radius of the emission zone, the Pasquill parameter and the direction of the effective wind are fixed (see Supp. Mat. 3.2.9.4 for values). The optimization thus only applies to the city emission. In the second variant, denoted "intermediate Gaussian plume inversion" (GP2), the emission from the city, the radius of the emission zone, the direction of the effective wind and the Pasquill stability parameter are optimized simultaneously. In the last variant, denoted "complex Gaussian plume inversion" (GP3), the model is adapted to turning plumes by applying the Gaussian plume formulation to the non-regular grid defined in section 3.2.3.5. In that case, the wind direction is fixed by construction, while the city emission, the radius of the emission zone, and the Pasquill stability parameter are optimized together.

The emission calculation methods are first evaluated under idealized conditions in the absence of noise in the image and for which the XCO<sub>2</sub> signal from the Paris core urban area (i.e., the plume area and the background) and the effective wind are perfectly known. These first tests are used to select the most suitable methods for defining the plume centerline and cross-sections. Most of the tests of the methods with more realistic conditions correspond to the extension (with the propagation of error up to the emission estimates) of the tests used to evaluate the different preprocessing steps detailed above.

### 3.2.3.8 . Definition of the emission zone corresponding to the emission estimates

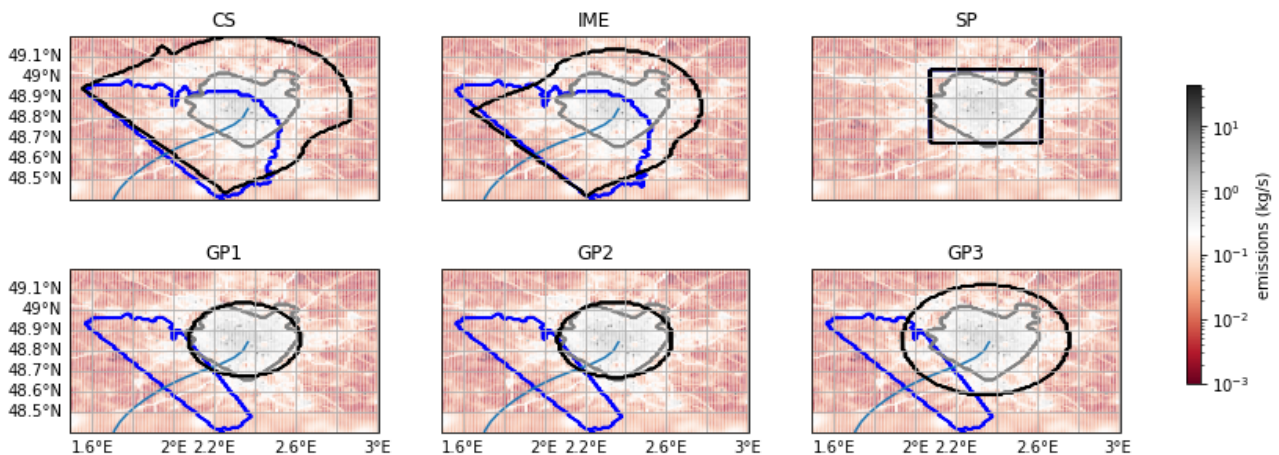


Figure 3.4 – Illustration of the sampling zone and emission zone on December 1st 2019 at 10 a.m.. The blue line indicates the sampling zone, the gray one the core urban area and the black one the emission zone. The sampling zone used are 'city-40km' for CS and IME, and '20km-40km' for the gaussian plume inversions.

The analysis zone can correspond to a fraction of the city core, or at the opposite, to a broader area. A precise definition of this footprint, called "emission zone" hereafter, can be used to rescale the emission estimates so that they better correspond to the core urban area. Figure 3.4 illustrates the different emission zones for each method.

The SP method requires a pre-determined emission zone : the "source area". For the other emission calculation methods, the definition of the emission zone is assumed to be, by construction, the core urban area itself when using the wind-based method for the definition of the plume area (except when considering the result from a cross-section overlapping this core urban area in the CS method : see below). The following applies to the CS, GP inversion and IME methods when using test-based methods to define the plume area.

For the CS method, we associate an emission zone to each cross-section. If the emission zone overlaps with the core urban area, we only use the fraction of the core urban area upwind of the cross-section (following the effective wind estimate ; note that this applies also to cases when we used the wind-based method to define the plume area). If the emission zone is located downwind of the core urban area, we use all the upwind emissions from the core urban area and beyond (following the plume centerline) or within a circle centered on the city and whose diameter is the length of the cross-section (cf. CS in Fig. 3.4).

For GP2 and GP3 inversions, the emission zone corresponds to a circle centered on the city center with a varying diameter, taken as the optimized city radius (cf. section 3.2.3.7 and GP2 and GP3 in Fig. 3.4). For the IME method, the emission zone corresponds to all the emissions upwind of the plume analysis zone and downwind to the city (following the plume centerline) or within a circle centered on the city center. Its diameter is defined as the analysis zone area divided by the length of the corresponding portion of the plume centerline (cf. IME in Fig. 3.4).

Finally, we compute the ratio between the total emissions of the Paris core urban area and the emissions within the emission zones. These ratios are used to rescale the estimated emissions in order to have an estimation for the Paris core urban area. Due to uncertainties in urban inventories, these ratios add uncertainties when inverting actual observations. However, for our idealized experiments, and in the absence of information related to spatial misattribution in our inventories, we assume perfect ratios. However, future studies, in particular when using real data, should also account for this ratio uncertainty. When using the CS method, emissions estimates per cross-section are rescaled using the corresponding emission zone for each cross-section. We used the median value from the ensemble as our final estimate.

In order to evaluate the need for such a definition of the emission zone, we will compare the estimates of the Paris core urban area to its actual value when using the crude emission calculation or when rescaling it according to the emission zone.

### 3.2.3.9 . The different error components : summary of the different sets of tests

Figure 3.5 summarizes the different tests to compute the errors associated with the preprocessing steps and defines the notation for these errors. Starting from an ideal case (with perfectly-known background, effective wind and plume area and without measurement noise), we introduce the sources of errors step by step. The statistics of the additional error in the emission estimate due to these incremental sources of errors is studied at each step by computing the difference between the emission estimate from the new step and that from the previous step in the tree, normalized with the division by the true emission of the Paris core urban area at the overpass time. When there is no previous step (*i.e.* for  $\epsilon^0$  and  $\epsilon^{comb}$ ), the difference is made with the true emission of the Paris core urban area at the overpass time. We characterize the distribution of these errors, which can deviate from a gaussian distribution, with their median and their interquartile range (denoted IQR). The 15.9% and 84.1% quantiles are also shown on figures 3.6, 3.9, 3.10, 3.11 and 3.12 in addition to the median and quartiles, as it would represent the  $\pm 1$ -standard deviation interval if the distributions were gaussian.

### 3.2.3.10 . Temporal representativity of the plume

City plumes are driven by emissions and winds that can vary significantly over few hours. However, we evaluate our emissions estimates by comparing them to the true emissions at the exact sampling time. Similarly, the effective wind is based on the wind field at the exact sampling time. In the CS method, temporal variations in the emissions

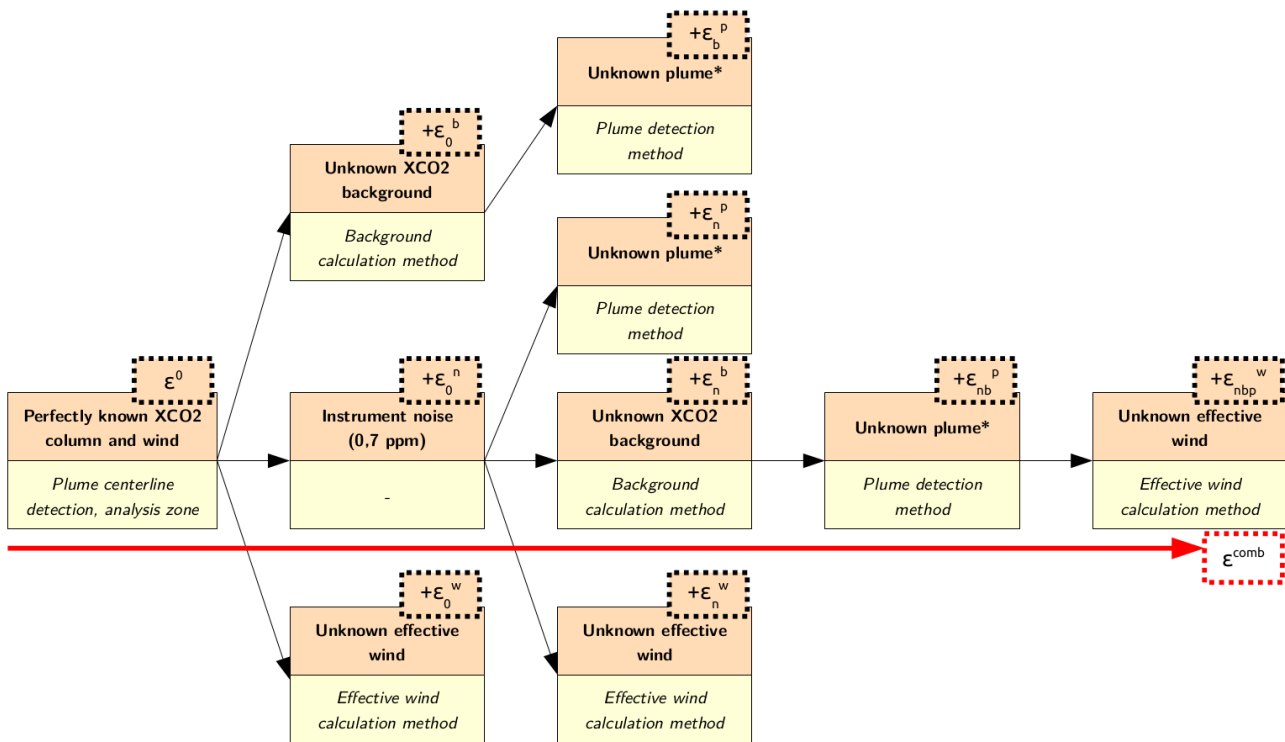


Figure 3.5 – Summary of the different error components. \* indicates that the step is not applied to the SP method (which doesn't need a detection of the plume limits).

are considered in the calculation of the emissions. Indeed, for each cross-section, we derive a time corresponding to the emission estimate (equal to the distance between the cross-section node and the city center divided by the mean effective wind speed). Section 3.2.4.1 will analyze the fit between these estimates from individual cross-sections and the actual emission from the core urban area at the corresponding time. In practice, from section 3.2.4.2, the selection of parameters for the plume analysis zone will discard any data located further than 60 km away from the city center. As detailed in section 3.2.4.1, we also indirectly filter out days with low wind speed, by discarding days with high spatial variability of the wind direction. Thus 92% of the data correspond to CO<sub>2</sub> emitted within the previous 2 hours. Within such a short time frame, temporal variations remain limited and will not be considered in our uncertainty analysis.

### 3.2.4 . Results

#### 3.2.4.1 . First comparison of the emission calculation methods and selection of their configurations

Here we study  $\epsilon^0$  (see section 3.2.3.9 and figure 3.5 for definition) and its dependency on the meteorological conditions and on the parameters of the emission calculation methods to narrow the range of appropriate options and parameters for the configuration of these methods. The tests are performed with a perfectly-known plume, background, and effective wind. In general, all emission calculation methods give accurate results (with a low bias and a low IQR of  $\epsilon^0$ ) when the meteorological conditions favor the ventilation of the emitted CO<sub>2</sub> in a little spread and straight plume, i.e., with a high wind speed and low variability of the wind direction (see an illustration in figure 3.6). However, when the emitted CO<sub>2</sub> accumulates over Paris into a large plume with high XCO<sub>2</sub> values or forms a plume with a complex structure, the results bear significant errors. Those situations can be driven by low effective wind speeds or by large variations in wind direction in space (horizontally and vertically) and in time (over the few hours

before the observation time). We characterize the spatial variability of the wind direction via the circular variance of the 3D wind field in the PBL at the observation time, which has a correlation of -0.8 with the mean wind speed in the PBL.

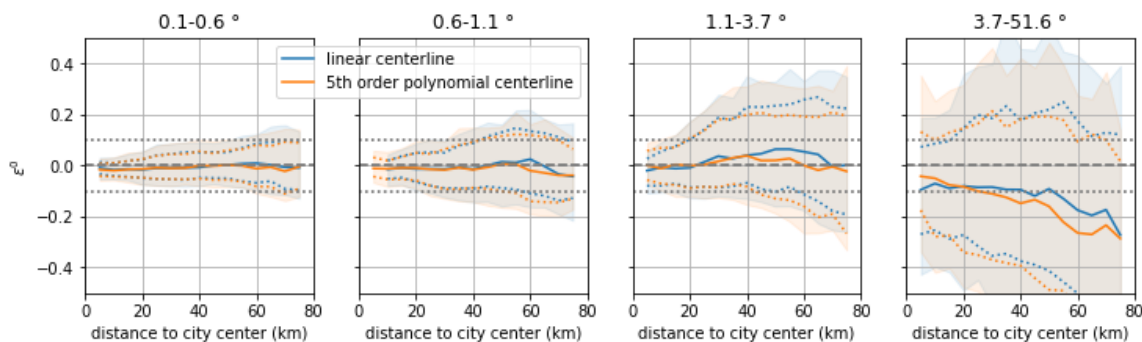


Figure 3.6 – Distribution (median in plain line, 1st and 3rd quartiles in dotted line, 15.9-84.1% quantiles range in color) of the error  $\epsilon^0$  for estimates of the emissions per cross-section as a function of the distance between the cross-section and the city center when applying the CS method. Each figure shows a binning of the result for a quartile of the standard deviation of the spatial variability of the wind direction. Results are obtained with a linear (blue) or fifth order polynomial (orange) fit for the centerline.

Figure 3.6 illustrates the general increase of  $\epsilon^0$  when this spatial variability increases with the specific case of the CS method. This figure also illustrates the sensitivity of the results to the distance of the analysis zone to the city center. More specifically, it shows that when applying the CS method to individual cross-sections, the IQR of  $\epsilon^0$  increases with the distance between the cross-sections and the city center, for any level of variability of the wind direction. The CS method shows a loss of precision over remote parts of the plume, which correspond to a longer period of transport and thus to larger levels of atmospheric diffusion and to larger temporal variability in the wind during the corresponding period. Indeed, the diffusion increases the overlapping between the signal from different hours of emission ([Broquet et al., 2018]). The temporal variability of the wind during the travel time from the city to the cross-section (or more generally to the full extent of an analysis zone) challenges the assumption of stationarity that underlies the different estimation methods. However, the increase of bias from 60-70 km away from the city is fed by an artifact : at this typical distance from the city, some of the cross-sections are cropped by the image borders (depending on the direction of the plume).

The study of the sensitivity of the distribution  $\epsilon^0$  to the options for the emission calculations focuses, in the following, on the sensitivity to the centerline computation methods and to the definition of the analysis zones for the CS, IME, GP methods. We also use a first comparison between the results from the different GP methods to assess the relevance of using the three of them. Sections 3.2.3.2 and 3.2.3.4 do not open alternative options for the configuration of the SP method.

The sensitivity of the distribution  $\epsilon^0$  to the options for the centerline definition is low, even with the GP3 inversion. The bias is slightly lower when using a centerline based on a fifth-order polynomial fit for the third quartile of the spatial variability of the wind direction, as illustrated in figure 3.6 with the CS method.

As explained above, based on figure 3.6 (with the CS method, but see also Supp Mat. 3.2.10.1 for the other methods), the IQR of the distribution of  $\epsilon^0$  increases with the distance of the analysis zone to the city center. However, the sensitivity of the bias of the distribution of  $\epsilon^0$  to the analysis zone differs depending on the type of emission calculation method (CS and IME following a mass-balance approach or Gaussian plume inversions). The mass loss highlighted in figure 3.6 at the end of the plumes cropped by the image border causes a slight underestimation (1%) of the emissions with the IME method when the analysis zone covers the fraction of the plume beyond 60km (i.e., with the 'city-∞' and '20km-∞' analysis zones). For the CS method, the underestimation is of 2%. The Gaussian plume



model inversions are based on a fit to the observed concentrations per pixel and thus are not impacted by the mass loss due to the cropping of the plumes. However, the representation of the sources in the Gaussian models is linear and ignores the extension of the actual source in the wind direction. Therefore, the emissions are underestimated when the analysis zone extends upwind to the city center (i.e., with the 'city-40km', 'city-60km' and 'city-∞' analysis zones), with 6 to 12% biases for the intermediate and complex Gaussian plume inversions.

The simplest Gaussian plume inversion method yields substantial (16 to 19% in absolute values) biases, which can be attributed to the lack of flexibility to fit complex plume shapes. The stability parameter and the radius of the emission zone, both pre-determined in this method, are generally far from those derived by the other Gaussian plume inversion methods. Indeed, the distributions of the retrieved radius of the emission zone for the intermediate and complex Gaussian plume have a median ranging from 27 to 29km depending on the analysis zone, while the actual radius is of 20km (cf Supp. Mat. 3.2.10.1).

Those first insights let us narrow the option for the estimation methods : only the fifth-order polynomial fit is kept for the centerline definition, the analysis zones 'city-∞' and '20km-∞' are not kept for any of the emission calculation methods, only the '20km-40km' and '20km-60km' analysis zones are retained for the GP inversion methods and the GP1 method is left out. For the following analysis, we also discard the cases for which the spatial variability of the wind direction is superior to 7°, which has for consequence to discard most of the days with low wind speed, due to the correlation between the wind speed and the spatial variability of the wind direction. This selection reduces the IQR of the distribution of  $\epsilon^0$  from 11%-17% to 9%-15%.

### 3.2.4.2 . Narrowing the range of options for the pre-processing steps

This section details analysis for the selection of the most suitable methods to address the preprocessing steps. The analysis presented in the following sections 3.2.4.4 and 3.2.4.5 thus rely on this set of selected methods only.

We assess the wind calculation methods based on the analysis of the distributions of  $\epsilon_0^w$  and  $\epsilon_n^w$  (see section 3.2.3.9 and figure 3.5 for definition). Both error distributions show a low bias (<5% in absolute value) but a high IQR (between 29% and 38%, cf figure 3.7) when using the tangent wind method. On the opposite, when using the mean and surface wind methods, the IQR of the errors is small (between 10% and 30%), but the bias is significant (up to 43% in absolute value). Biases in both  $\epsilon_0^w$  and  $\epsilon_n^w$  distributions decrease with the distance of the analysis zone to the city center when using the mean wind method. In particular, they are low when using the '20km-40km' and '20km-60km' analysis zone, i.e. analysis zone at more than 20 km from the city center, since the corresponding part of the CO<sub>2</sub> plume is well mixed in the PBL. Overall, the mean wind method produces errors with biases slightly larger than those obtained with the tangent wind method (between 7% and 11%) but with a much smaller IQR (<14%) for the '20km-40km' and '20km-60km' analysis zones. Therefore, we select the method of wind estimation as a function of the analysis zone. The tangent wind is used with the 'city-40km' and 'city-60 km' analysis zones while the mean wind in the PBL is used with the '20km-40km' and '20km-60 km' analysis zones. The surface wind method is not retained hereafter for two main reasons : its lower precision (with an IQR of  $\epsilon_0^w$  and  $\epsilon_n^w$  between 14% and 23%) compared to the mean wind method, and the need for precise information from meteorological model simulations for the derivation of the multiplicative coefficient used to convert 10-m surface wind into effective wind [Varon et al., 2018].

The assessment of the background calculation methods is based on the analysis of  $\epsilon_0^b$  and  $\epsilon_n^b$  (see section 3.2.3.9 and figure 3.5) but also on the direct comparison between the background concentration estimate and the actual values of the background concentrations in the analysis zone. The median of their differences is studied as the "background error". Even though, there is not a strict relationship between such a definition of the background error and  $\epsilon_0^b$  and  $\epsilon_n^b$ , results confirm that the distribution of the background error and of  $\epsilon_0^b$  and  $\epsilon_n^b$  are strongly linked. Considering first, the estimate of the background for the analysis zone of the IME, CS and GP methods, the local methods, i.e. 'bckgl\_gau' and 'bckgl\_cs', outperform other methods with lower bias and IQR of the background

	wind method			backg. calc. method			plume detect. method			analysis zone					
	tangent wind	mean wind	surface wind	backgl_XXX	backgl_cs	backgl_gau	test-based, w/ rescaling	test-based, w/ rescaling	wind-based	city-40km	city-60km	20km-40km	20km-60km		
$\epsilon^i$	Used for emission calculation methods parametrization (cf section 4.1).														
	$\epsilon_w$	med.	[-4%;6%]	[7%;37%] <sup>1</sup> [7%;11%] <sup>1</sup>	[-43%;9%] [-3%;9%] <sup>1</sup>										
		IQR	[31%;44%]	[10%;30%] [10%;13%] <sup>1</sup>	[14%;36%] [16%;20%] <sup>1</sup>										
	$\epsilon_n$	med.	[-3%;3%]	[6%;36%] [6%;11%] <sup>1</sup>	[-32%;9%] [3%;9%] <sup>1</sup>										
		IQR	[26%;47%]	[10%;33%] [10%;17%] <sup>1</sup>	[14%;41%] [18%;22%] <sup>1</sup>										
	$\epsilon_0$	med.													
		IQR													
	$\epsilon_n$	med.													
		IQR													
	$\epsilon^p$	Used for parametrization of test-based method for plume definition (cf Supp. Mat. B.3 and B.5).													
		$\epsilon_p$	med.												
			IQR												
$\epsilon_{ub}^p$		med.													
		IQR													
$\epsilon_{ub}^w$		med.													
		IQR													
$\epsilon^{comb}$		med.													
		IQR													

1. results obtained with the '20km-40km' and '20km-60km' analysis zones.
2. results obtained with the wind-based method for the plume definition.
3. results obtained with the backgl\_gau method for the background calculation.

Figure 3.7 – Range of the median (med.) and interquartile range (IQR) for the different error distributions function of the methods tested for a given step.  $\epsilon^{comb}$  distributions are calculated after the choice of the plume definition, background calculation and effective wind estimation methods.

error, both for image without and with noise. With these methods, the bias and IQR of the background error are  $<0.01\text{ppm}$  and between  $0.06\text{ppm}$  and  $0.1\text{ppm}$  regardless of the option taken for the analysis zone and on the inclusion or not of noise on the images,. Conversely, the other background calculation methods yield background errors with a high IQR ( $[0.09\text{ppm};0.11\text{ppm}]$ ,  $[0.09\text{ppm};0.17\text{ppm}]$  and  $[0.08\text{ppm};0.12\text{ppm}]$  for 'bckgl\_mean', 'bckgl\_upw' and 'bckgl\_med') or a high bias ( $>0.01\text{ppm}$  for 'bckgl\_bih' and 'bckgl\_2df'). For example, background errors from 'bckgl\_bih' without noise on the images, albeit having a similar IQR compared to that from 'bckgl\_gau' and 'bckgl\_cs', have a bias  $\approx 0.02\text{ppm}$  (to be compared to the typical mean XCO<sub>2</sub> signal in the plume area of  $0.1\text{ppm}$ ), resulting in a bias  $\approx 24\%$  for the distribution of  $\epsilon_0^b$  (while this bias is  $<13\%$  for 'bckgl\_gau' and 'bckgl\_cs'). The methods 'bckgl\_mean', 'bckgl\_upw', 'bckgl\_med', 'bckgl\_bih' and 'bckgl\_2df' are thus discarded at this stage and the results could support the selection of both 'bckgl\_gau' and 'bckgl\_cs'. However, the analysis of  $\epsilon_b^p$  reveal that when the plume is unknown, the overall errors from the plume definition and background estimation are larger when using the 'bckgl\_cs' method (see figure 3.7 and Supp. Mat. 3.2.10.5 -figure 3.24-, with larger  $\epsilon_b^p$  when using 'bckgl\_cs' than when using 'bckgl\_gau'). This supports the selection of the 'bckgl\_gau' method only. Considering the estimate of the background for the SP method, both the 'bckgl\_gau' and 'bckgl\_mean' yield background errors with bias and IQR that are, again,  $<0.01\text{ppm}$  and  $<0.09\text{ppm}$  respectively. However, the 'bckgl\_gau' method yield background errors with a smaller bias and IQR ( $0.00\text{ppm}$  and  $0.08\text{ppm}$ ) than that from the 'bckgl\_mean' method ( $-0.01\text{ppm}$  and  $0.09\text{ppm}$ ). Therefore, 'bckgl\_gau' appear to be the most suitable method when considering both the SP and the IME, CS and GP emission calculation methods. We select it as the unique background calculation method for any estimation configuration in the following.

The assessment of the methods for the definition of the plume area is based on the analysis of  $\epsilon_n^p$ ,  $\epsilon_b^p$  and  $\epsilon_{nb}^p$  (see section 3.2.3.9 and figure 3.5). We first try to derive the optimal configuration for the test-based methods and the corresponding sub-steps (in particular the preliminary computation of the background and the smoothing of the image prior to the statistical z-test). Results show that when using these methods (see Supp. Mat. 3.2.10.3 and 3.2.10.5), the distributions of  $\epsilon_n^p$ ,  $\epsilon_b^p$  and  $\epsilon_{nb}^p$  are sensitive to the smoothing scale and to the preliminary background calculation method. However, the choice of the function for the smoothing has a marginal impact on the results : we thus retain the uniform smoothing, which is easier to apply to complex observation sampling. When using small smoothing scales, the parts of the plume with a low signal are missed by the statistical z-test, whereas when using large smoothing scales, the statistical z-test tend to retain pixels that do not belong to the actual plume (artificially enlarging this plume). We fix the smoothing scale to  $20\text{km}$ , which leads to the smallest errors. The analysis of  $\epsilon_b^p$  and  $\epsilon_{nb}^p$  also indicate that the best method for the preliminary computation of the background is 'bckgp\_mean'. Therefore, the only configuration we keep for the plume definition method based on a statistical test consists in the preliminary computation of the background using 'bckgp\_mean', the  $20\text{ km}$  scale uniform smoothing and to the standard z-test and clustering presented in section 3.2.3.1. The rescaling of the emission calculation (see section 3.2.3.8) when using the test-based method reduce the IQR of the distributions  $\epsilon_b^p$  (from 45-98% to 42-77%) and  $\epsilon_{nb}^p$  (from 61-107% to 53-99 %). However this rescaling introduce a negative bias : the distribution  $\epsilon_b^p$  (resp.  $\epsilon_{nb}^p$ ) has a bias between  $-27$  and  $-1\%$  (resp.  $-38$  and  $-16\%$ ), whereas the bias is between  $-3$  and  $21\%$  (resp.  $-28$  and  $-6\%$ ) without rescaling. Therefore, we decide not to take into account the rescaling. The final selection of the plume definition method is based on the comparison between this configuration of the test-based method and the wind-based method. The test-based and wind-based methods produce similar distributions of  $\epsilon_n^p$ . However, the IQR of the distribution of  $\epsilon_b^p$  is smaller when using the wind-based method with 30 to 69% errors when using the wind-based method, and 45 to 97% errors when using the test-based method. Biases in  $\epsilon_b^p$  are smaller when using the wind-based method compared to the test-based method (with values ranging between  $-7\%$  and  $+1\%$  and between  $-3\%$  and  $+22\%$  respectively). When noise is added, the error distribution  $\epsilon_{nb}^p$  from the test-based methods shows a non negligible bias (from  $-6$  to  $-29\%$ ), whereas biases obtained with the wind-based methods remain between  $16$  and  $-10\%$ . Therefore, we select the wind-based method as the unique plume definition method for the following analysis.

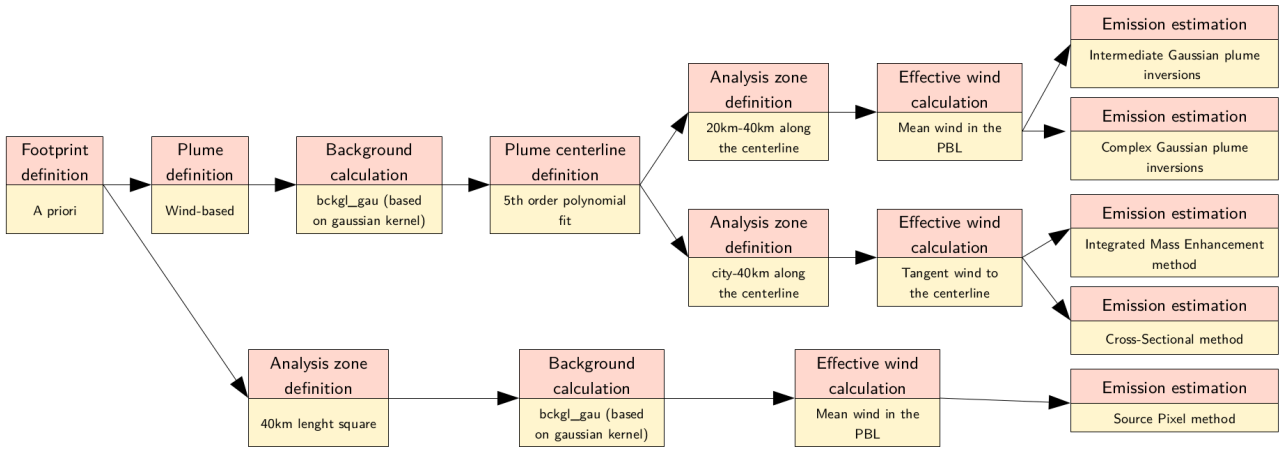


Figure 3.8 – Retained configurations for the inversion methods.

The choice of the analysis zone impacts each step (emission, background and wind calculation, and the definition of the plume area) of the overall inversions with the CS, IME and GP methods. This complicates the assessment of the options for its definition. For example, the choice of the analysis zones which are the closest to the city results in a smaller IQR for  $\epsilon^0$ , but larger for  $\epsilon^w$  (see Sup. Mat. 3.2.10.1 and 3.2.10.2). Therefore, our assessment is focused on the analysis of the distribution of  $\epsilon^{comb}$ . For all emission calculation methods, the IQR of  $\epsilon^{comb}$  increases with the distance of the analysis zone to the city (see figure 3.7). We thus select, the 'city-40km' analysis zone for the CS and IME methods and '20km-40km' analysis zone for the GP inversions.

Figure 3.8 summarizes the list of configurations that are selected for the inversions that are analyzed in the following.

### 3.2.4.3 . Filtering the background conditions

The analysis of the results from the list of inversion configurations presented in figure 3.8 reveals a strong sensitivity of  $\epsilon^{comb}$  to the complexity of the background field (strongly driven by the contribution from the biogenic fluxes), in addition to that of the meteorological conditions (see section 3.2.4.1). In the following we characterize this complexity by the spatial variability (calculated with its standard deviation over the image of interest) of the XCO<sub>2</sub> field over the whole image. The IQR of  $\epsilon^{comb}$  scales primarily with the ratio between the mean XCO<sub>2</sub> signal in the plume area and the variability in the XCO<sub>2</sub> field, whereas the bias of  $\epsilon^{comb}$  is mainly due to background error (as defined in section 3.2.4.2). By filtering out images with a large variability in XCO<sub>2</sub> signals (> 0.75ppm) and on the spatial variability of the wind direction (see section 3.2.4.1), the error  $\epsilon^{comb}$  decreases by 13 to 22%, depending on the emission calculation method, while removing 43% of the data. More specifically, its IQR decreases from 99% down to 78% with the IME method, from 100 to 89% with CS method, from 109 to 89% with SP method and from 94 to 74% with GP2 (or from 103% to 78% with GP3) inversion.

### 3.2.4.4 . Error analysis with the selected inversion configurations and cases

Figure 3.9 shows the distribution of the different error components when filtering out images following the criteria defined in sections 3.2.4.1 and 3.2.4.3 on the spatial variability of the wind direction and of XCO<sub>2</sub>. The distributions  $\epsilon^{comb}$  (the total error) obtained with the different emission calculation method are similar, with bias inferior to 10% and IQR between 74 and 89%, except when using the SP method that leads to a bias of 38% and an IQR of 89%.

The analysis of the error components (see figure 3.9) shows that for all emission calculation method, the main source of error is the background calculation step. Indeed, the IQR of the distributions  $\epsilon_0^b$  and  $\epsilon_n^b$  are between 54 and

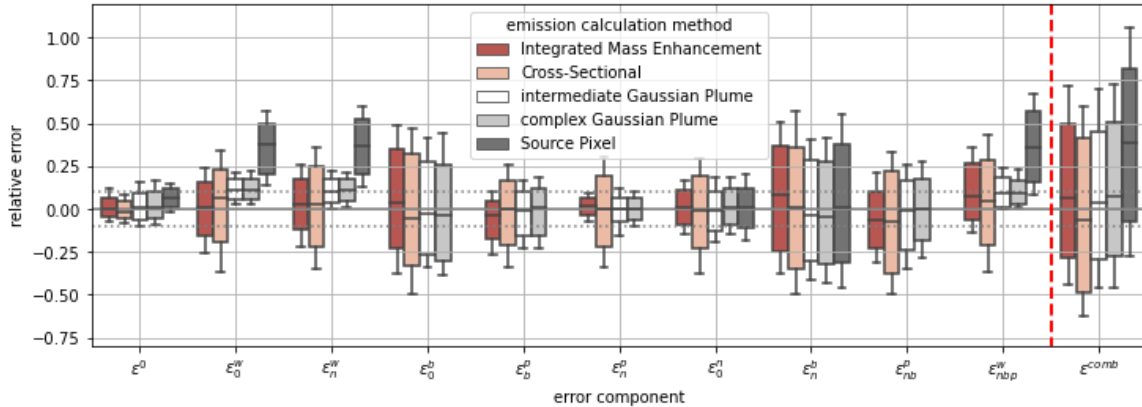


Figure 3.9 – Summary of the different error distribution studied in the retained configurations.

71 %, whereas the IQR of the other error component are below 58%. The second most important source of error is the estimation of the effective wind. Indeed the distributions  $\epsilon_0^w$ ,  $\epsilon_n^w$  and  $\epsilon_{nbp}^w$  show large IQR (29-50%) when using the tangent wind method (used with CS and IME methods) or large bias (9-37%) when using the mean wind method (used with the GP inversions and SP methods).

Unlike other methods, the SP method shows large bias that is associated to the wind calculation step. Indeed, the mean wind method accurately estimates the effective wind for an analysis zone far from the city, where the CO<sub>2</sub> is well mixed, but not above the city and therefore not in the source area. This explains the high bias of the distributions  $\epsilon_0^w$ ,  $\epsilon_n^w$  and  $\epsilon_{nbp}^w$  (and consequently  $\epsilon^{comb}$ ) when using the SP method.

### 3.2.4.5 . Influence of satellite spatial sampling

This section analyzes how the distributions of the total error and of the error components (as defined in section 3.2.3.9) vary when the selected inversion configurations are applied to the realistic OCO-like observation samplings detailed in section 3.2.2.3. When considering the OCO-2 samplings, we limit our analysis to the application of an adapted version of the CS method and of the GP2 inversion because the single-track sampling near the city does not allow for a plume centerline calculation (which is required for the GP3 inversion, for the IME method and for a strict application of the CS method detailed in section 3.2.3.7) nor for a calculation of the CO<sub>2</sub> mass in the source area (and thus not for the application of the SP method). The whole and undivided track is used as a single cross-section for the CS method and is thus not necessarily perpendicular to the wind direction, but the principle of the background calculation, of the definition of the plume area along this section and of the flux calculation still apply. All the cases when the meteorological situations are such that the plume does not cross the OCO-2 sampling are discarded from the computations and error statistics. In principle, the application of the SP, CS and IME methods could require some image gap-filling to account for the loss of mass associated to the loss of pixels in the analysis zone due to cloud cover or quality control ([Kuhlmann et al., 2020]). However, we do not study this problem nor apply any gap-filling since it would increase the complexity of the study and we expected that it would have a weak impact on the results here by considering the low number of observation pixels lost within the selected samplings.

Figure 3.10 shows the distributions of errors for each tested track as a function of the emission calculation method. The distribution of  $\epsilon^0$  when using the OCO-3 samplings is similar to that when using the WRF grid (the absolute bias and IQR of this error are inferior to 5% and 20%) except when using the IME method (with which the bias is -16%). The underestimation of the emissions of the core urban area obtained with the IME method may be due to the smaller and asymmetric shape of the OCO-3 samplings, which perturbs our centerline definition. Possible explanations are (i) that the centerline is slightly over-curved, which results in a longer plume length estimation and

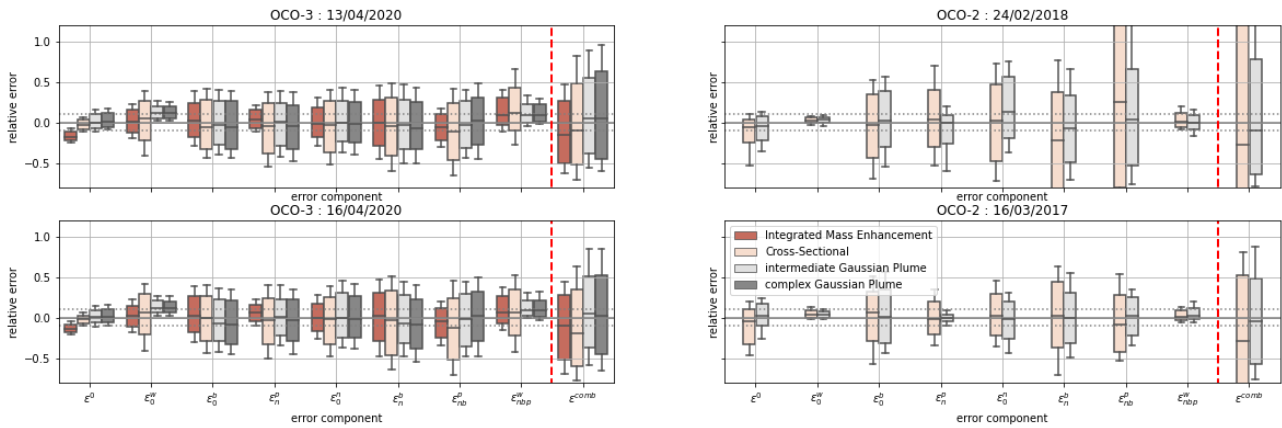


Figure 3.10 – Summary of the different error distribution when using OCO-3 (left panels) and OCO-2 (right panels) samplings.

thus in an underestimation of the emissions and (ii) a underestimation due to mass loss at the end of the analysis zone when its limits are constraints by the image. The errors obtained with the other emission calculation methods are slightly larger when using the OCO-3 samplings rather than the WRF grid. The smaller number of points in OCO-3 samplings compared to the WRF grid enhances the impact of the measurement noise and thus increases the IQR of the error distributions. The IQR of  $\epsilon^{comb}$  (see table 3.3) increase by 10 to 23% (except for IME, see below) when using the OCO-3 samplings compared to when using the WRF-grid sampling. When using the IME method, the IQR of  $\epsilon^{comb}$  with the OCO-3 samplings is close to that when sampling the WRF grid (less than 2% difference) but its bias, following that in  $\epsilon^0$ , is larger.

The IQR of the distribution of  $\epsilon^0$  is larger when using OCO-2 samplings (over 35% whereas it is inferior to 20% for OCO-3 samplings), as the cross-section of the plume is far from the city. The difference between the results obtained when using the two OCO-2 samplings can be explained by their different distances to the city center but also by the loss of the data due to quality control or cloud cover in the South-West fringe of one of the two track sampling. This highlights the need for gap-filling or for rejecting results from the CS and IME methods when the plume is observed with a sparse sampling. The smaller IQR of the  $\epsilon_0^w$  distribution when using the OCO-2 samplings rather than the OCO-3 samplings or WRF grid is due to the accuracy in the wind estimation method over analysis zone far from the city (see section 3.2.4.2). However, this does not compensate for the poorer results in the emission calculation methods on analysis zones far from the city, nor the degraded results in the background estimation method due to the small size of the sampling area.

The typical error with the different samplings amount to 6% [-34%,47%] with the WRF sampling, -5% [-48%,45%] with OCO- 3 and -17% [-91%,84%] with OCO-2 (see table 3.3).

Table 3.3 – Total error ( $\epsilon^{comb}$ ) for the different samplings and inversion methods. The median and the 1st and 3rd quartiles are shown.

	WRF-grid	OCO-3	OCO-2
IME	+7% [-29%,+50%]	-12% [-52%, +28%]	-
CS	-7% [-48%,+41%]	-15% [-58%, +41%]	-28% [-118%,+101%]
GP2	+4% [-29%,+45%]	+5% [-38%,+53%]	-5% [-63%,+66%]
GP3	+7% [-28%,+51%]	+3% [-44%,+57%]	-

### 3.2.5 . Discussion

#### 3.2.5.1 . Influence of the uncertainties in the 3D wind field

In the previous sections, the wind field is supposed to be known and we did not quantify the impact of the wind field uncertainty on the results. We used a perfect knowledge of the entire  $\vec{W}$  field from WRF-Chem. Previous studies have addressed that problem using plume perturbation techniques ([Ye et al., 2020]), model comparison ([Lei et al., 2021]), or ensembles of simulations to estimate wind model errors ([Díaz-Isaac et al., 2018]). However, producing a well-calibrated ensemble remains challenging unless considerable computing resources are available to generate a sufficiently large ensemble of perturbed simulations. While transport errors remain a major source of uncertainties at the urban scale ([Lian et al., 2021]), biases in modeled CO<sub>2</sub> concentrations tend to decrease rapidly over several days ([Chen et al., 2019, Feng et al., 2019]). Data assimilation systems tend to provide acceptable model errors ([Deng et al., 2017, Lian et al., 2018]) but must still be considered in forthcoming real-data studies of OCO measurements.

Here, we only quantified errors due to the uncertainties in the vertical weighting of wind when estimating the effective wind, since we do not have access to the vertical profile of CO<sub>2</sub>. When working with real satellite data, the wind field product bears errors compared to the real wind field. Those errors will increase the errors in the estimation of the effective wind, in the plume definition method and, consequently, in the background calculation method. However, errors in wind fields differ across analysis products. As a first step, we perform here a simple evaluation of the impact of errors in wind speed and wind direction on emissions errors.

Error on the wind speed only affect the effective wind calculation, and emission estimate are proportional to the effective wind speed for all emission calculation methods. [Taszarek et al., 2020] show that the mean error of the mean wind in the first kilometer of the atmosphere is typically of 0.35m/s and the root-mean-square-error of 1.93m/s when comparing rawinsonde observations with ERA5 wind field product. As the median wind speed that we find when estimating the effective wind is of 11m/s, the results found by [Taszarek et al., 2020] leads to a bias under 5% and a standard deviation of  $\approx 20\%$  on the effective wind, and thus on the emission estimate, in our study.

In order to evaluate the additional uncertainties from errors on the wind direction in our wind fields, we apply a random rotation (one angle per image) of the wind vectors at each point of the images. The added noise corresponds to a random value drawn from a normal distribution unbiased and of standard deviation 0°, 10°, 20°, 25°, 30°, 35°, 45°, 60° and 90°. Those standard deviations were chosen to cover the range of standard deviations found by [Deng et al., 2017, Feng et al., 2016, Lian et al., 2018] (see below). The GP2, GP3, CS and IME methods are tested in their respective optimal configurations. In figure 3.11, the skill of the inversion method regarding the wind error is quantified with  $\epsilon^{comb}$ , the background error (see section 3.2.4.2) and with the fraction of the number of pixels of the real plume that as been detected on (i) the number of pixels in the real plume (denoted detection sensitivity) and (ii) the number of pixels in the detected plume (denoted detection precision). For wind error distributions within 15°, the four metrics remain unchanged. For wind errors larger than 25°, the selected plume boundaries exclude a significant fraction of the actual city plume, which tends to overestimate the background. As a direct consequence, city emissions are under-estimated.

[Lian et al., 2018] compared observed surface wind direction above the Paris region to ECMWF high-resolution operational forecasts (HRES) with the Integrated Forecasting System (IFS) at 3-hour resolution and to wind directions obtained after data assimilation with WRF and the surface observations. The comparison of the observations to the ECMWF data show biases for the wind direction between 5-8°, depending of the sub-region of interest, and RMSE between 41 and 47°. The data assimilation with WRF did not greatly improve the results. Other studies comparing surface wind observations to wind directions modelled with WRF, but not constrained with the observations, found typical bias and standard deviation of -1° and 20° over Los Angeles ([Feng et al., 2016]) and of 4° and 26° worldwide ([Deng et al., 2017]). Whereas the impact of the error in the wind field product would be important (between 20 and 40% underestimation) with error of the order of magnitude found in [Lian et al., 2018], it would be small with error of the order of magnitude found in [Deng et al., 2017, Feng et al., 2016]. Thus a more systematic characterization of the impact of wind direction errors from re-analysis wind products is needed around urban areas.

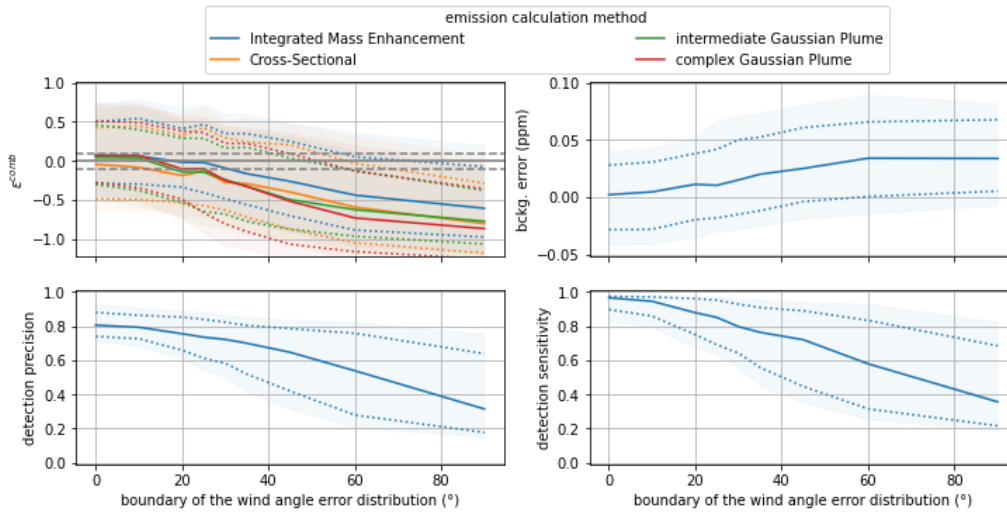


Figure 3.11 – Evolution of the distributions (median in plain line, 1st and 3rd quartiles in dotted line, 15.9-84.1% quantiles range in color) of the detection precision, detection level, background error and  $\epsilon^{comb}$  as a function of the wind angle error.  $\epsilon^{comb}$  is shown for the IME and CS methods.

### 3.2.5.2 . Monthly dependency of the results

The precision of the inversion methods is sensitive to spatial variations in wind direction on the one hand and to the signal-to-noise ratio and the standard deviation of the XCO<sub>2</sub> signals on the other hand. Figure 3.12 shows the seasonal variations of these three parameters. We also show the distribution of the proportion of cloudy pixels (cloud fraction >1%, threshold defined following [Kuhlmann et al., 2019])

During summer months, emissions decrease due to low energy consumption and reduced activity (summer vacation) for cities located in the temperate mid-latitudes such as Paris. Hence, the correlation between the signal-to-noise ratio and the standard deviation of the XCO<sub>2</sub> signals decreases. Our initial threshold value is solely based on the standard deviation of XCO<sub>2</sub> signals. We need to reconsider this relationship to determine the error distribution  $\epsilon^{comb}$ . Future studies should examine different cities to address this problem. Over Paris, and based on the standard deviation of the XCO<sub>2</sub> signals and the spatial variations in wind direction, Winter and Fall seasons are optimal for emission calculation while Spring and Summer seasons are impacted by variable wind directions, low signal-to-noise ratios, and high standard deviation of the XCO<sub>2</sub> signals. However, Winter and Fall correspond to higher cloud coverage which reduces the number of usable satellite images over Paris.

### 3.2.5.3 . Potential error sources not taken into account

Our current analysis considered measurement error estimates from previous studies, hence directly dependent on satellite instruments, processing algorithms, and calibration procedures. The value of 0.7 ppm corresponds to empirical error estimates from [Worden et al., 2017], similar to the expected CO2M measurement errors ([Sierk et al., 2021]). We assumed here that XCO<sub>2</sub> measurements are bias-free, thanks to a re-calibration of OCO-2 data using Total Carbon Column Observing Network (TCCON) XCO<sub>2</sub> measurements as reference [Wunch et al., 2017]. However, residual biases remain in the OCO-2 retrievals (<0.4 ppm) depending on latitude, surface properties, and scattering by aerosols. Local biases (i.e. aerosols and surface properties) might degrade further our current flux uncertainty estimates while regional biases affecting retrievals at larger scales are removed by our approach. We also assumed that measurement errors were uncorrelated spatially, for a lack of detailed characterization at fine scales in the current literature. Ongoing work will help quantify potential error correlations in OCO-3 SAM data, caused by aerosol plumes, topography, and spatial patterns in surface characteristics (esp. albedo) which generates non-linearities and spatial



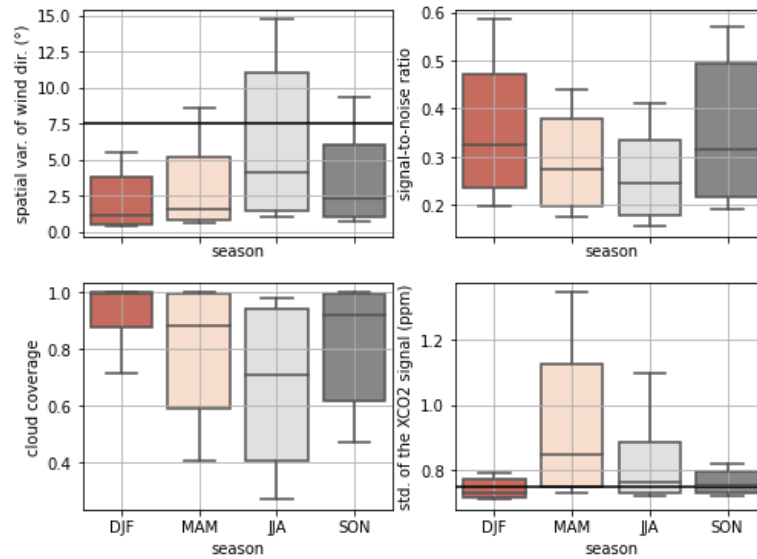


Figure 3.12 – Seasonal distributions of the spatial variability of the wind in the PBL and of the signal to noise ratio for the year 2018 as simulated by WRF.

error correlations at high resolution.

Cloud and aerosol filtering leads to a partial loss of data within observation sampling areas where the analysis zone is defined. While the GP inversion techniques, as defined here, can adapt to such cases, the application of the direct flux integration methods may require some gap-filling of the XCO<sub>2</sub> image to avoid negative biases in the emission estimates ([Kuhlmann et al., 2019]). If the loss of data is limited (as in section 3.2.4.5), gap filling could be straightforward but its impact would be limited. When the loss of data would generate significant gaps resulting in relatively sparse sampling across the analysis zone, the choice and configuration of the gap-filling method could have a significant impact on the emission estimate, and, in any case, raise new uncertainties. The application of such gap-filling techniques, and the assessment of the various methods with their associated uncertainties ([Gerber et al., 2018]) is thus a complex topic which we did not address in this study, and will require extensive tests and analyses.

Recent studies have shown that data loss in current OCO missions is about 85% over the largest 70 cities of the world ([Lei et al., 2021]). The vast majority of this loss is due to clouds and aerosol filtering. Based on Figure 3.12, we note here that the amount of available data from satellite missions is anti-correlated with XCO<sub>2</sub> precision within each image, with high coverage but lower precision in Summer, and low coverage but higher precision in Winter (in the northern Hemisphere). This result suggests that flux uncertainties at longer timescales will be affected by the lack of data during cloudy months, partially compensated by less variable winds during cold months (higher precision per image).

A recent study by [Ciais et al., 2020] estimated the contribution from human respiration. They concluded that for cities producing plumes of CO<sub>2</sub> detectable from space, human respiration represents a source to the atmosphere of 0.32 Gt CO<sub>2</sub> per year, compared to 10 Gt CO<sub>2</sub> per year of fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions. Therefore, we neglected this term in our calculation. For real-data analyses over dense megacities such as New York City or Karachi, we expect that human respiration will increase our uncertainty estimates by few percents.

#### 3.2.5.4 . Further development

As shown in previous studies, the estimation of CO<sub>2</sub> emissions over urban areas remains complex and impacted by large uncertainties (IQR≈75%, standard deviation ≈70%). The uncertainties found in our study are slightly higher

than those found by [Kuhlmann et al., 2020] over Berlin (40-53%) and higher than [Nassar et al., 2017] using OCO-2 data (single tracks) near a power plant. In the case of power plants studied by [Nassar et al., 2017], the local enhancements are one order of magnitude larger than Paris' (i.e. a few ppm) and the plumes are thinner, which can explain the better results. [Kuhlmann et al., 2020] show simulations in which the distinction between the plume from Berlin from its background appear to be slightly clearer than that between the plume from Paris and its background in our simulations. Their typical plume enhancement is of 1ppm. This could explain that they derive uncertainties in their emission estimates that are smaller than ours. However, both studies highlight the challenge of getting accurate emission estimates for cities.

The IQR of the total error appears to be too large (>70%) to evaluate urban emission from a single image, despite the low bias in error distribution (<10%). A large number of images is thus necessary to obtain the sufficient precision to monitor policy-relevant trends (typically around 2-3% per year for most megacities around the world). Only 7 SAMs could be found over Paris with more than 1,500 usable pixels between the years 2019 and 2021 (a period that corresponds to approximately 20 months of data). Therefore, OCO-3 SAM's will provide a unique dataset to quantify the value of XCO<sub>2</sub> measurements but only a handful of cities with high emission trends might be selected for a demonstration of emissions monitoring potential from space.

Finally, we want to emphasize that the two pre-processing steps responsible for a large fraction of the total errors (i.e. wind and background calculation) could benefit from novel image processing techniques, not only used with computationally-light methods but also with model-based inversions (such as [Wu et al., 2018, Ye et al., 2020]), especially when the biogenic flux contribution is not integrated into the simulations.

### 3.2.6 . Conclusion

In this study, we characterized the uncertainties in the estimates of emissions from a large urban area based on the application of computationally-light plume inversion methods -Integrated Mass Enhancement, Cross-sectional, Source Pixel, and Gaussian Plume inversions- to XCO<sub>2</sub> satellite images. This assessment is based on pseud-data experiments focused on the city of Paris, with high-resolution XCO<sub>2</sub> images simulated with the WRF-Chem model. We decomposed the error of the inversion methods by gradually introducing the different sources of uncertainties to evaluate the importance of each pre-processing step in the total error and to select the most accurate techniques and configurations for each step. The error components were derived when using a full sampling of the area at 1-km spatial resolution and when using realistic observation samplings corresponding to OCO-2 and SAMs from OCO-3 in order to determine the influence of the sampling strategy on the results.

Using the full sampling at 1km<sup>2</sup> resolution, the emission estimates from the best inversion configurations bear errors with low biases (<10%) but significant IQRs (≈75%). The Source Pixel emission calculation method yield larger errors (38% bias and 89% uncertainty) than the other methods. When using their best configurations, the Integrated Mass Enhancement, Cross-sectional, and Gaussian Plume inversions provide similar errors, and the main sources of uncertainties for all methods appear to be, first, the calculation of the background concentration underlying the targeted plume and secondly, the computation of the effective wind driving this plume. We highlighted a sensitivity of the error distribution to wind meteorological conditions (namely, to the spatial variability in the wind direction) and to the spatial variability in the background XCO<sub>2</sub> field. The analysis of the results with realistic observation samplings corresponding to OCO-3 SAMs showed a slight increase of the error IQR (≈ +20%) due to the coarser sampling.

### 3.2.7 . Author contributions

A.D., G.B. and T.L. designed the study. A.D. did the coding, analysis for the manuscript. Sections 3.2.5.3 and 3.2.5.4 were written by T.L. and the others by A.D. and G.B. in collaboration. J.L. designed and ran the WRF-Chem simulations and gave precious advice on the synthetic data. F.-M.B. provided general feedback and opinions on manuscript and research directions. All authors gave valuable comments and revisions to the final paper.

### 3.2.8 . Acknowledgments

We thank Origins.earth and Hervé Utard who kindly provided the inventory used for the simulations. OCO-2 and OCO-3 retrievals, used to defined the realistic samplings, were produced by the OCO-2/3 project at the Jet Propulsion Laboratory, California Institute of Technology and obtained from the OCO-2 and OCO-3 data archives maintained at the NASA Goddard Earth Science Data and Information Services Center (<https://disc.gsfc.nasa.gov/>). We thank Annmarie Eldering, former Project Scientist in OCO-2 and 3 missions, for her help and advice with the OCO data. This work was supported by CNES with the funding of the OCO-3-city project. T. Lauvaux was supported by the Make Our Planet Great Again (MOPGA) fellowship program (CNRS, project CIUDAD).

### 3.2.9 . Annex 1 : Complement on the methodology

#### 3.2.9.1 . Section 3.2.3.1 : definition of the plume area

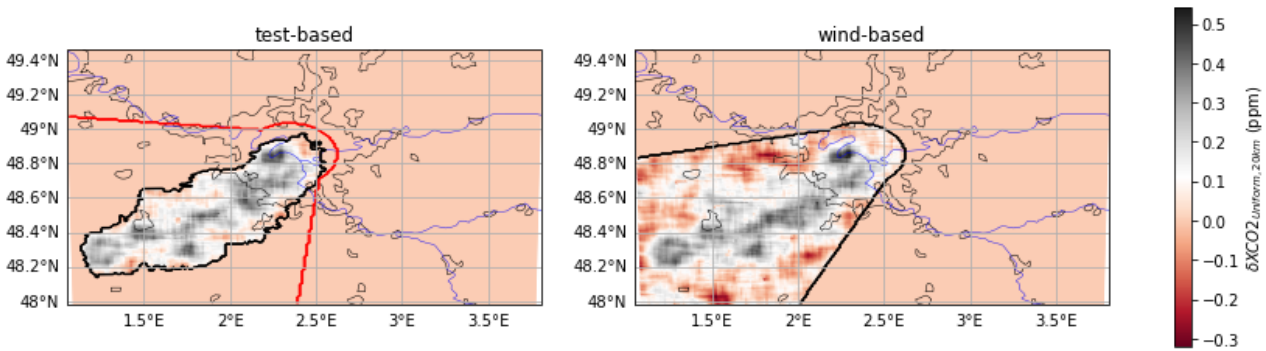


Figure 3.13 – Illustration of the test-based and wind-based plume definition methods on December 1<sup>st</sup> 2019 at 10am. The black line indicates the contour of the plume defined with the corresponding method. The red line on the left panel indicates the restricted zone.

**Test-based methods** A preliminary estimate of the background (denoted  $XCO2_{bckgp}$ ), is derived based on the analysis of the whole image for such a test. We test different options for this derivation : computing the mean (bckgp\_mean) or the median (bckgp\_med) of the concentration in the image, fitting a subset of this concentration field (from which the part downwind of the city as been removed) with a plane (with a bilinear function ; bckgp\_2df) or extracting the average concentration over an upwind zone defined based on the location of Paris and by the mean wind in the PBL over this location (bckgp\_upw). This background estimate is subtracted from the data. For each pixel of the image, we define a neighborhood as a square of size  $N$  km, we apply a smoothing function over this neighborhood and we use the resulting value for the pixel for the statistical test. We test the hypothesis that this resulting value can correspond to the sum of an enhancement of concentration above the background in the smoothed plume and of the average of the observation noise over the neighborhood, whose standard deviation is  $\sigma_{meas}$ . In practice, we test the hypothesis that this resulting value can be a sample of a normal statistical distribution whose mean is superior or equal to zero, and whose standard deviation corresponds to  $\sigma_{meas}/\sqrt{(n_{px})}$  (with  $n_{px}$  being he number of pixel in the neighborhood). Here we neglect the uncertainty in the smoothed  $XCO_2$  field associated to the background. We define the pixels for which the probability to belong to the plume is high as those passing the test with a 99% confidence :

$$z(x, y) = \frac{\delta XCO2_{sm,N}(x, y)}{\sigma_{meas}/\sqrt{n_{px}}} > 2.33 \quad (3.1)$$

where  $\delta XCO2_{sm,N}$  corresponds to the smoothed field of  $XCO_2 - XCO2_{bckgp}$ . Different smoothing functions are tested : the mean or the median, of the application of a Gaussian or wiener filter within the neighborhood. We also test different values for  $N$  ranging from 10km to 30km with a 10km step.  $\sigma_{meas}/\sqrt{(n_{px})}$  is the noise on the mean

concentration over the neighborhood. The normalization based on this noise is consistent with the smoothing based on the average of the data over the neighborhood. The statistical noise on the resulting value for the pixel that is investigated with other smoothing methods is different. We nonetheless use such a normalization in all cases. The analysis of results in section 3.2.10.3 indicate whether this can raise significant errors in the plume definition. For the tests where we do not put noise on the observations, the test becomes :  $z(x, y) = \delta XCO_{2sm,N}(x, y) > 0$ .

Pixels that are not labeled but that are enclosed within a cluster corresponding to the city plume are integrated into this plume area. The points that are at more than 45° downwind of the city using the direction of the mean wind in the PBL are labeled as not being part of the plume (see figure 3.13). When no plume is detected in the image, no emission calculation is made. Each combination of one method for the computation of the preliminary background, of one smoothing length N, and of one smoothing function corresponds to an individual plume definition configuration.

**Wind-based methods** The plume is defined as the points that are at less than 22.5° downwind of the city using the direction of the mean wind in the PBL (see figure 3.13).

### 3.2.9.2 . Section 3.2.3.3 : Background estimation

The six methods can be listed as :

- 'bckgl\_mean' : computation of the average of the concentrations in the plume or source area edge ;
- 'bckgl\_upw' : computation of the average XCO<sub>2</sub> values in an area upwind the plume defined based on the location of Paris and by the mean wind in the PBL, not computed for the SP method as it would be the equivalent to the 'bckgl\_mean' method in this particular case ;
- 'bckgl\_2df' : derivation of the plan which best fits the concentrations in the plume or source area edge ;
- 'bckgl\_cs' : a method that can be seen as an extension of [Ye et al., 2017] for a 2d image. It relies on a preliminary computation of the plume centerline and on a preliminary definition of plume cross-sections orthogonal to this centerline (see section 3.2.3.5) and is thus not used with the SP method. The background field is derived as the combination of background estimates on each cross section. These estimates are derived as the linear functions of the positions along the cross sections which best fit the XCO<sub>2</sub> concentrations in the plume edges ;
- 'bckgl\_bih' : a method using a technique of image restoration by inpainting the values within the plume or source area limits with biharmonic equations (see <https://scikit-image.org/docs/stable/api/skimage.restoration.html>, last access March 21rt 2022). The smoothed XCO<sub>2</sub> field ( $\delta XCO_{2sm,N}$ ) outside the plume or upwind of the source area is used to calculate the coefficient of the biharmonic equations.
- 'bckgl\_gau' : adaptation of the method used in [Kuhlmann et al., 2020]. It is also based on the smoothed XCO<sub>2</sub> values. It interpolates the smoothed XCO<sub>2</sub> values from outside the plume with a 2D Gaussian kernel to get the background values in the plume area. The size of the kernel used here differ from that used in [Kuhlmann et al., 2020]. We choose to use a relatively small kernel size (4 pixels) to conserve as much as possible the local structure of the background. However this required the use of an iterative process to cover the whole plume area since the plume size is often larger than the kernel size in our study case (even when the kernel size is 10 pixels large as in [Kuhlmann et al., 2020]), while [Kuhlmann et al., 2020] did not face such a problem.

### 3.2.9.3 . Section 3.2.3.6 : Effective wind evaluation

**Calculation of the effective wind of reference** The effective wind is defined as the vertically integrated wind driving the XCO<sub>2</sub> field : its vertical integration must be ponderated by the vertical distribution of CO<sub>2</sub> as follows :

$$\vec{W}_{eff}(x, y) = \frac{\sum_z W(x, y, z) * u_{CO_2}^{anth.}(x, y, z) * \Delta P_{dry}(x, y, z)}{\sum u_{CO_2}^{anth.}(x, y, z) * \Delta P_{dry}(x, y, z)} \quad (3.2)$$

where  $\vec{W}(x, y, z)$  is the wind field,  $u_{CO_2}^{anth.}(z, x, y)$  is the CO<sub>2</sub> dry air mole fraction signal associated to the anthropogenic emissions from Paris core urban area and  $P_{dry}(z, x, y)$  is the dry air pressure. Equation 3.2 is used to derive the actual effective wind field. However, since the spatial (vertical and horizontal) distribution of  $u_{CO_2}^{anth.}$  is not known for the analysis of the images, an approximate estimate of the effective wind must be derived based on the distribution of  $\vec{W}$ . The impact of the uncertainty in the knowledge of this wind field is ignored in this study and we use, for the analysis of the images, a perfect knowledge of the full  $\vec{W}$  field from WRF-Chem (in tests corresponding to situations for which inversion methods rely on the full wind field from meteorological analysis) or of its surface value :  $\vec{W}_{10m}(x, y) = (U_{10m} \ V_{10m})^T$  (in tests corresponding to situations for which inversions rely on wind data from surface stations).

**Description of the effective wind methods** Three different methods of vertical integration or sampling are tested to compute the effective wind. The methods derive it as a 2D field ( $W_{eff}(x, y)$ ) before aggregating it as a single value ( $W_{eff}^{av}$ ). First, at each location (x,y), they rely on :

- the average, weighted by the dry air mass, of  $\vec{W}$  in the PBL, method which assumes that the plume can rapidly mix downwind to the city.
- the use of coeff \* W10m, following [Varon et al., 2020]. Here we fix the scaling coefficient to 1.8 which is the average ratio between W10m and the actual effective wind field in the analysis zone '20km-40km'. The use of such a precise knowledge of this average ratio is an optimistic aspect of the corresponding test but the variations in space and time of this ratio challenges the use of the surface wind.
- The third method (denoted tangent wind in the following) take advantage of the 2D extension of the image and derive a "local" effective wind for each cross-section defined in section 3.2.3.5. First, it computes the local tangent to the plume centerline at the intersection with each cross-section. Then it computes the atmospheric level in WRF where the direction of the mean wind in the cross-section is the closest to the direction of this local tangent. The wind field in the cross-section at the computed level is used as the effective wind in the corresponding cross-section.

Finally, the methods average the effective wind horizontally in the analysis zone (resp. cross-section for the CS method and "source area" for the SP method), weighting the average by the smoothed XCO<sub>2</sub> values ( $\delta XCO_{2sm,N}$ ). The smooth XCO<sub>2</sub> field is the one calculated at the plume definition step when the plume has been defined with a test-based method. Otherwise, for the wind-based method or when the plume is known, the smoothing is made with the uniform method at a 20km scale. The notation  $\vec{W}_{a.z.}$  (resp  $\vec{W}_{c.s.}$ ,  $\vec{W}_{s.p.}$ ) is used in the following.

#### 3.2.9.4 . Section 3.2.3.7 : Comparison of the city emissions

All our computation of the emissions apply to the field of enhancement of the total CO<sub>2</sub> mass in the vertical columns column (in  $g/m^2$ ) associated to the signature of the city emission in the XCO<sub>2</sub> field :

$$\Delta\Omega(x, y) = \frac{M_{CO_2}}{M_{dry\ air}} * \Delta XCO_2 * 10^{-6} * \frac{P_{dry\ air}(surface)}{g} \quad (3.3)$$

where  $g$  is the Earth's gravity and  $P_{dry\ air}(surface)$  is the dry air surface pressure, calculated as  $P_{dry\ air}(surface) = \sum_z q_{dry}(x, y, z) * \Delta P(x, y, z) + P_{top} * < q_{dry}(x, y, z_{imax}) >_{x,y}$ , where the relative humidity  $q_{dry}$  and the pressure  $P$  are assumed to be perfectly known and are taken from the WRF-Chem simulations. The emission obtained with the method is denoted  $F_{sat}$  in the following.

**IME** The IME method ([Frankenberg et al., 2016, Varon et al., 2020]) calculates the total mass present in the analysis zone and divide it by the estimate of the time of residence of the CO<sub>2</sub> molecules in this zone. This residence time is calculated as the ratio between the length of the plume centerline in the analysis zone  $L$ , and the speed of

the effective wind (averaged in the plume analysis zone) :

$$F_{sat} = \frac{\text{total CO}_2 \text{ mass in plume}}{\text{CO}_2 \text{ residence time in plume}} = \frac{|\vec{W}_{a.z.}|}{L_{IME}} * \int_{(x,y) \in \text{plume}} \Delta\Omega(x,y) dx dy \quad (3.4)$$

definition of the plume length taken here differs from [Varon et al., 2020].

**SP method** The SP method ([Buchwitz et al., 2017, Varon et al., 2018]) follows the same idea as the IME method, except that it focuses on the enhancement of CO<sub>2</sub> due to the emissions just above the city. This method was mainly design for point sources, contained in one pixel of the satellite images, whereas its application to a city requires the use of a "source area" with a rough definition. We arbitrary fix the "source area" as a square of 40km wide, roughly encompassing Paris core urban area. The time of residence in the source area is evaluated as the ratio between half the width of this square and the effective wind averaged over the "source area".

$$F_{sat} = \frac{\text{total CO}_2 \text{ mass in mega-pixel}}{\text{CO}_2 \text{ residence time in mega-pixel}} = \frac{\langle \Delta\Omega \rangle_{\text{mega-pixel}} * L_{SP}^2}{0.5 * L_{SP} / |\vec{W}_{s.p.}|} = 2 * |\vec{W}_{s.p.}| * \langle \Delta\Omega \rangle_{\text{control zone}} * L_{SP} \quad (3.5)$$

**CS method** The CS method ([Krings et al., 2011, Kuhlmann et al., 2020, Varon et al., 2019, Varon et al., 2020]) directly computes the flux of CO<sub>2</sub> through the cross-sections of the plume. This flux is given by the product of the mass and the component of the effective wind speed perpendicular to the cross-section :

$$F_{sat}(i_{cs}) = \vec{W}_{c.s.} \cdot \vec{n}_{\text{cross-section}(i_{cs})} * \int_{x,y \in \text{cross-section}(i_{cs})} \Delta\Omega(x,y) ds(x,y) \quad (3.6)$$

where  $s$  is the abscissa of the projection of the pixel on the curvilinear abscissa of the normal to the plume centerline at the center of the cross-section and  $\vec{n}_{\text{transect}}$  the unit vector perpendicular to the cross-section. In theory the effective wind should be perpendicular to the cross-section, but errors in effective wind estimation and the uncertainty in the plume centerline detection make them often only nearly orthogonal.

Each cross-section gives a different estimation of the flux. The retained emission calculation for a given plume is the median of the flux given by the cross-sections in chosen the plume analysis zone. We thus retain only one estimation per plume for the method except in the first part of section 3.2.4.1 and Supp. Info. 3.2.10.1 where all cross-sections are studied individually in order to tune some of the method parameters (cross-section size, plume centerline method and plume analysis zone).

**Inversions using Gaussian plume models** The general formulation of the Gaussian models we use to simulate the plume from Paris and which applies to extended sources follow that of [Krings et al., 2011] :

$$\Delta\Omega_{gp}(x,y) = \frac{F}{\sqrt{2\pi} * |\vec{W}_{a.z.}| * \sigma_y(x)} e^{-\frac{y^2}{2 * \sigma_y(x)^2}} \quad (3.7)$$

where the  $x$  and  $y$ -axis follow the directions along and across the effective wind, and where the origin of the coordinate system is the city center. The term  $\sigma_y(s)$  allows to account for the horizontal extension of the source. We take  $\sigma_y(x) = a * (x + (\frac{R_{Paris}}{4a})^{1/0.894})^{0.894}$  as [Krings et al., 2011], where  $a$  is the Pasquill stability parameter.

The inversions consist in fitting the Gaussian plume models to the total column mass enhancement  $\Delta\Omega$  derived from the XCO<sub>2</sub> images, the emission from the city  $F_{sat}$  being one of the parameters optimized for this fit.

We tested three variants of this approach with different Gaussian models and/or different set of parameters optimized by the inversion :

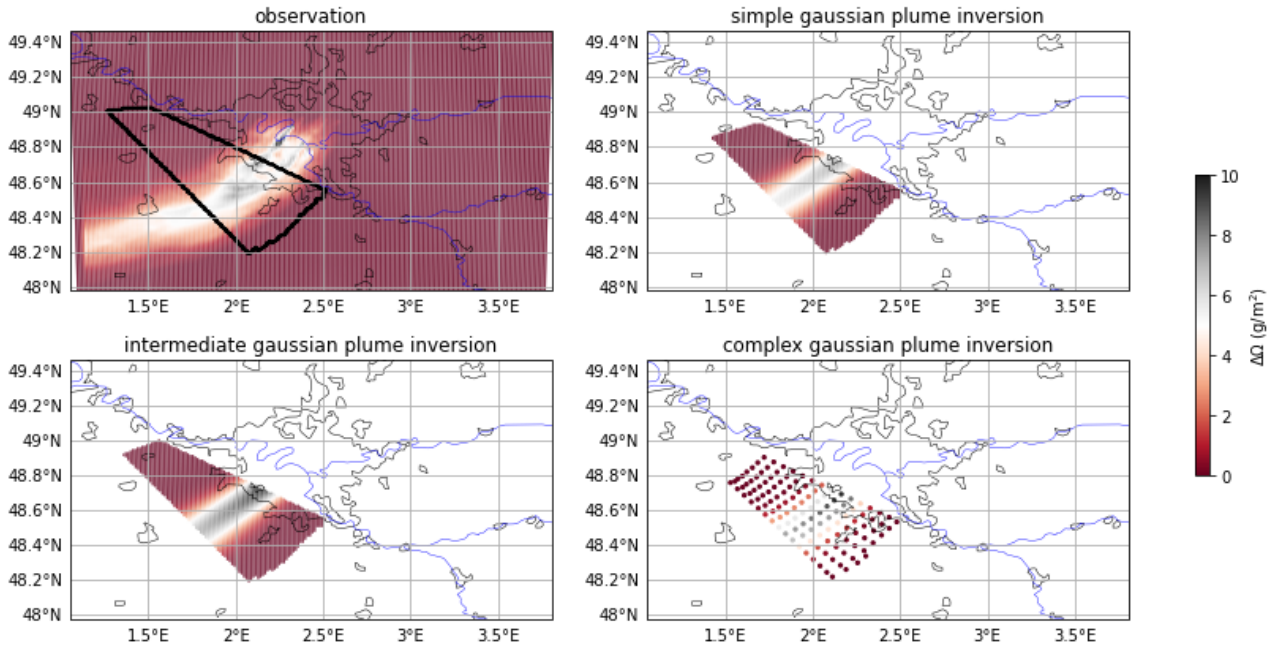


Figure 3.14 – Illustration of the simulated mass enhancements with the different Gaussian plume inversions on 1/12/2019 at 10a.m with the  $\text{XCO}_2$  column and wind perfectly known. The black line on the upper left panel indicates the sampling zone.

- the “simple Gaussian plume model” with inversions where the city radius is fixed at 20km, the Pasquill parameter is computed following [Pasquill, 1961] and the wind direction is fixed as the direction of the effective wind estimated in section 3.2.3.6. The emission estimate is obtained by minimizing the sum of the square differences between the observed ( $\delta\Omega_{sat}(x,y)$ ) and modeled mass enhancement ( $\Delta\Omega_{gp}(x,y)$ ) over the whole domain. This minimization with respect to a single parameters, whose impact on the modeled mass enhancement is linear, is straightforward and computed analytically.
- the “intermediate Gaussian plume model” with inversions where the city radius, the pasquill parameter and the wind direction are not fixed and optimized together with the emission estimate. The cost function to minimize is still the sum of the square difference between the observed ( $\delta\Omega_{sat}(x,y)$ ) and modeled mass enhancement ( $\Delta\Omega_{gp}(x,y)$ ) but with  $a$ ,  $\theta$  and  $r$  being optimized along  $F_{sat}$ . The minimization is done using a classical minimization function of python’s scipy package.
- the “complex Gaussian plume model” whose central axis follows the plume centerline derived following section 3.2.3.4 with inversions where the wind direction is fixed but not the city radius and pasquill parameter, which are optimized together with the emission estimate. The non-regular grid defined in section 3.2.3.5 is used for the optimization of the parameters. The  $\text{CO}_2$  mass enhancement corresponding to each portion of each cross-section is derived as the average of the  $\text{CO}_2$  mass enhancements of the pixels in the portion. Equation 3.7 is applied in the space defined by our irregular grid by replacing the  $(x,y)$  coordinates by the  $(s,n)$  coordinates in its formulation. The cost function to minimize is the sum of the square difference between the observed ( $\delta\Omega_{sat}(s,n)$ ) and modeled mass enhancement ( $\Delta\Omega_{gp}(s,n)$ ) fover the irregular grid with  $a$  and  $r$  being optimized along  $F_{sat}$ . The minimization is done using a classical minimization function of python’s scipy package (see <https://docs.scipy.org/doc/scipy-1.8.0/html-scipyorg/reference/generated/scipy.optimize.minimize.html>, last access on on March 21st 2022).

For the intermediate and complex gaussian plume model, the initial value of  $F_{sat}$  (denoted  $F_{sat}^{init}$ ) given to the

solver is a random number taken in a beta distribution (with  $\alpha=1.35$ ,  $\beta=2.5$  ad a scaling factor of 5) multiplied by the true emission of the core urban area. The choice of such distribution was made to have a sufficient spread without getting negative values. The distribution of the a priori values given to the solver has thus a bias of  $\approx 60\%$  of the true emissions and an IQR of  $\approx 165\%$ . The initial values of the other parameters are fix to the one taken for the simple Gaussian plume model. The parameters are also scaled as follow :  $X = \left( \frac{F_{sat} - F_{sat}^{init}}{F_{sat}^{init}}, \frac{a}{120}, \frac{\theta - \theta(\vec{W}_{a.z.})}{\pi/4}, \frac{r - R_{Paris}}{R_{Paris}/2} \right)^T$  and are restricted as follow during the optimization :  $F_{sat} \in [-F_{sat}; +\infty]$ ,  $a \in [0; 240]$ ,  $\theta \in [\theta(\vec{W}_{a.z.}) - \pi/4; \theta(\vec{W}_{a.z.}) + \pi/4]$  and  $r \in [0.5 * R_{Paris}; 1.5 * R_{Paris}]$ .

Figure 3.14 shows an example of the simulations of the mass enhancements given by the three variants for the Gaussian models on the '20km-60km' analysis zone and their inversions 1/12/2019 and their comparison to the actual plume from Paris.

### 3.2.10 . Annex 2 : Analysis of the different error distributions

#### 3.2.10.1 . Analysis of the dependencies of the results to meteorological parameters when the plume, background and effective wind are known : selection of the test cases

This section presents in details the results presented in section 3.2.4.1. We study the performance of the emission calculation methods with different parameters and their dependency to the meteorological conditions by looking at the error distributions  $\epsilon^0$  (sections 3.2.10.1 and 3.2.10.1) and  $\epsilon_0^n$  (section 3.2.10.1). The methods set aside are more deeply detailed and compared to document the choices made. The tests are performed with a perfectly known plume, background and effective wind.

**Focus on the result of the decomposition of the CS method per cross-section** Figure 3.15 shows the statistics of errors  $\epsilon^0$  corresponding to estimates from individual cross-sections, as a function of the distance from the city center to the cross-sections (the distance along the central axis to the nodes). The results are separated in four bins, corresponding to the quartiles of the spatial variability of the wind direction. We see that, in all panels, the IQR of  $\epsilon^0$  increases with the distance between the cross-section and the city center. The method becomes less precise over remote parts of the plume which correspond to a longer period of transport and thus to larger levels of atmospheric diffusion. However, the abrupt increase of the error IQR at 60 km from the city may be an artifact : at this distance of the city, some of the cross-sections are cropped by the image borders depending of the direction of the plume. The precision also decrease with the wind direction variability.

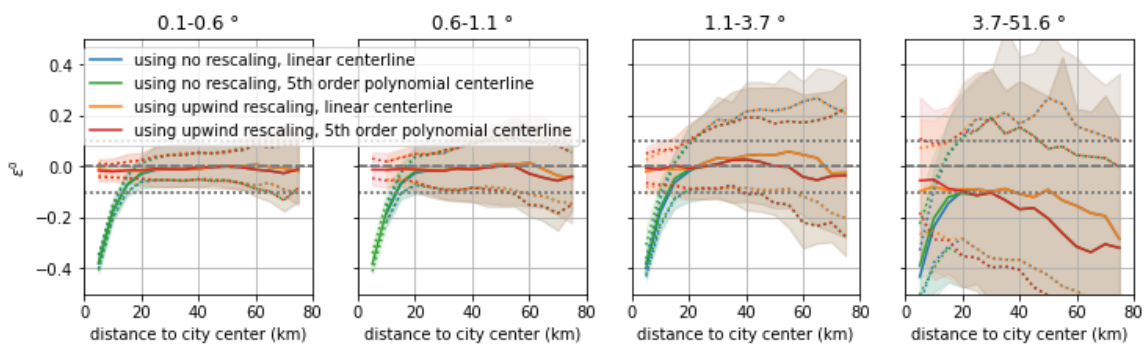


Figure 3.15 – Distribution (median in plain line, 1st and 3rd quartiles in dotted line, 15.9-84.1% quantiles range in color) of the error  $\epsilon^0$  for estimates of the emissions per cross-section as a function of the distance between the cross section and the city center when applying the CS method. Each figure shows a binning of the result for a quartile of standard deviation of the spatial variability of the wind direction. Results are obtained with (blue, green) and without (orange, red) using the rescaling with the part of the core urban area upwind of the cross-section (as described in section 3.2.3.8), with a linear (blue, orange) or 5th order polynomial (green, red) fit for the centerline.

The figure 3.15 shows results with the rescaling of the emission estimates to account for the restriction of their



emission zone described as the default emission zone in section 3.2.3.8 or when using the total instantaneous emission of the city to rescale the emissions. The results show that the restriction of the emission zone to the fraction of the city upwind of the track (default emission zone) decreases the bias for the the cross-sections at less than 20km of the city center (i.e. above the core urban area) from values down to -40% to values between -2 and +2%. Using the emission zone gives accurate results above the city without impacting the results for the cross-sections outside of the city limits. Thus, the default emission zone is used as the reference case in this study : therefore, in the following "not rescaled results" indicates that only the "default" emission zone is applied and "rescaled results" indicates that the tested emission zone described in the middle of section 3.2.3.8 is applied.

When the wind direction variability is below  $1^\circ$ , the sensitivity of  $\epsilon^0$  to the centerline calculation method is low. When this variability exceed  $1^\circ$ , and thus when the plume deviates significantly from a straight dispersion, results become sensitive to the computation of the centerline. For a wind direction variability comprised between  $1,0$  and  $2,9^\circ$ , better results (a smaller bias) are obtained when using a centerline based on a 5th order polynomial fit between 40km and 60 km from the city center. However, the centerline based on a linear fit yields a smaller bias for a spatial variability of the wind direction larger than  $2.9^\circ$  at such distances. Rather than catching the main path of the plume, the 5th order polynomial fit could tend to overfit some of its meandering over short distances from the city (because this is where the  $XCO_2$  signal is the highest), while the linear fit keep on catching its mean direction. We choose to keep the method which give less bias for the favorable wind conditions (three first panels) and thus to focus on results given with the centerline fitted with a 5th order polynom in the following.

## Analysis of $\epsilon^0$

**Sensitivity to the meteorological conditions** In general, all emission calculation methods give accurate results (low bias and low IQR) when the meteorological conditions favor the ventilation of the emitted  $CO_2$  in a well developed and straight plume, i.e. with a high wind speed and a low variability of the wind direction (illustration is given by figures 3.15 and 3.16). However, when the  $CO_2$  emissions accumulate over Paris or is evacuated within a very complex plume, situations characterized by large plume and high  $XCO_2$  values, the results bear large errors. Those situations can be driven by low effective wind speeds or high variations in space (horizontally and vertically) and in time (over the few hours before the observation time) of the wind direction. Furthermore, the representativity of the instantaneous emissions diminish with the effective wind speed. The spatial variability of the wind direction is measured via the circular variance of the 3D wind field in the PBL at the observation time and the wind speed temporal variability is measured as the difference between the effective wind speed at the observation time minus the effective wind speed one hour before the observation time. The spatial variability of the wind direction, the effective wind speed, the strength of the  $XCO_2$  signal, the size of the plume and the effective wind speed temporal variability are all correlated (correlation superior to 0.6 except with the  $XCO_2$  signal strength where it is around 0.2).

Figure 3.16 illustrates the distribution of  $\epsilon^0$  as a function of wind parameters for the selected estimation methods. An abrupt increase of the IQR and of the absolute bias of  $\epsilon^0$  can be seen for high spatial variability of the wind direction. Consequently, we decided not to apply the emission computation in the following of the study to cases corresponding to approximately the 15% highest values of the spatial variability of the wind direction (black vertical lines on figure 6). The threshold value is fixed to  $7^\circ$ .

After applying such a selection of the cases to be studied and for which to apply the emission computations, the accuracy of the results is strongly increased. The IQR of  $\epsilon^0$  decreases by 2-4% depending on the emission calculation method and the plume analysis zone. The biases of  $\epsilon^0$  are smaller than 2% (see figure 3.18), except for the SP method (6%).

However, such a selection does not cancel the high dependencies to the meteorological conditions (signal strength, effective wind speed, spatial variability of the wind direction, temporal variability of the wind speed). As an example,

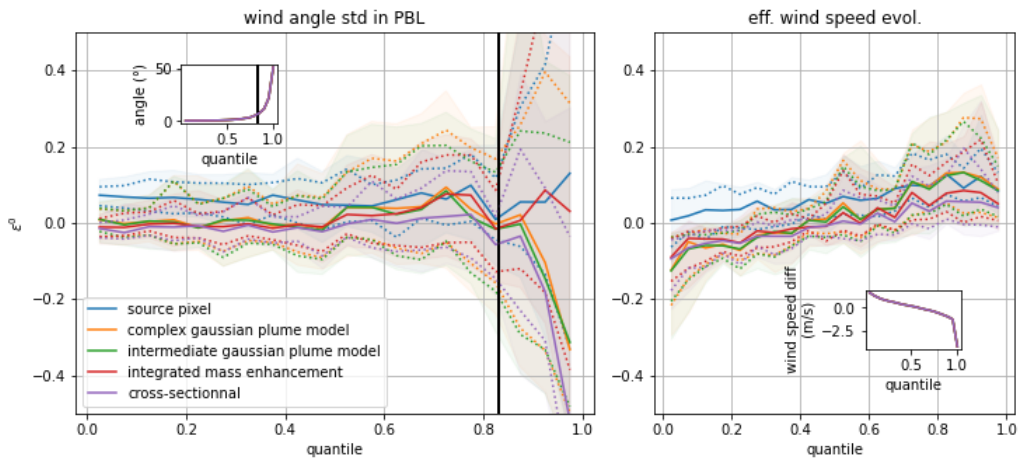


Figure 3.16 – Error distribution function of wind angle standard deviation in PBL before filtering (left panel) and function of the evolution of the effective wind speed in the previous hour after filtering (right panel). Results are shown for the different emission calculation methods using the '20km-60km' analysis zone for the Gaussian plume models and 'city-40km' for IME and CS method. Black line on the right panel shows the threshold used for filtering the data.

figure 3.16 illustrates the dependency to the temporal variability of the wind speed. The effective wind speed used by the emission calculation method is derived at the observation time without accounting for its temporal variations despite the plume is generally representative of several hours of emission and transport. Therefore, if the wind speed decreases in time, we tend to underestimate the wind speed that is representative of the overall plume, which leads to a positive bias in the distribution of  $\epsilon^0$ . This effect increases with the distance of the analysis zone to the city center.

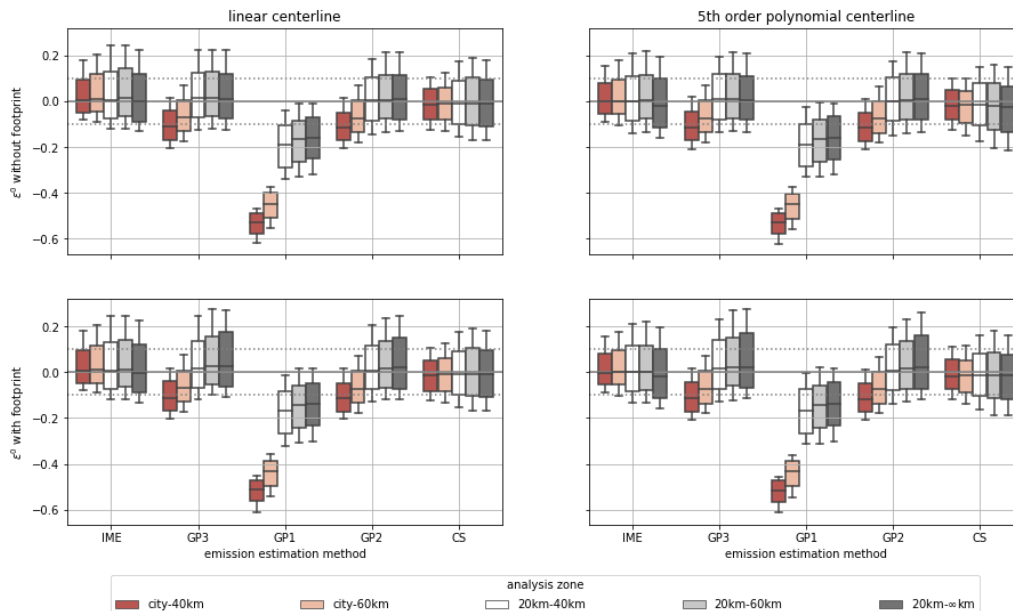


Figure 3.17 – Error distribution  $\epsilon^0$  in function of the tested parameters.

**Influence of the centerline definition** The two centerline methods tested are, due to their definition, similar for the simple and intermediate Gaussian plume models and SP method.

The influence of the centerline definition on the GP3 and IME methods is the same as the one described for the CS method (see section 3.2.10.1). When looking at the evolution of the error distribution  $\epsilon^0$  in function of the spatial distribution of the wind variability, the bias is smaller when using the 5th order polynomial centerline for cases corresponding to the third quartile of the wind direction variability than when using the linear centerline.

**Influence of the analysis zone** The influence of the analysis zone definition was not studied for the SP method. For the IME and CS methods, the IQR of the distribution  $\epsilon^0$  increases with the distance of the analysis zone to the city center. Further of the city is the plume analysis zone, larger is the IQR of the distribution of  $\epsilon^0$ . This is coherent with the results seen on figure 3.17 for the CS method. This effect seems to be present in a lesser way for the Gaussian plume inversions but with an evolution too small to be certain.

The results are different depending on the kind of method (mass-balance or Gaussian plume based) used for the emission calculation. For the IME methods, as seen on section 3.2.10.1, the loss of mass occurring at the end of the plume (cropped by the image border) which begin at 60km from the city results in a slight underestimation of the emissions when using analysis zones encompassing the part of the plume further than 60 km away of the city ('city- $\infty$ ' and '20km- $\infty$ ') compared to the other analysis zones.

The Gaussian plume models are based on a fitting of the concentrations per pixel and thus are not influenced by the mass loss due to the cropping of the plume. However, the concentrations simulated by the Gaussian plume model above the city and downwind of the city center are obtained using the sum of the emissions on the whole targeted area. This is not the case in more realistic conditions as the source is not punctual (or linear) but has a 2D extension. This results in an overestimation of the the concentrations above the city and downwind of the city center by the Gaussian plume model and thus an underestimation of the emissions (bias inferior to -5%) during the inversions when using a analysis zone encompassing the part of the plume above the city.

**Influence of the emission zone** For all the methods, the results are not affected by the application of the rescaling with the emission zones defined in section 3.2.3.8 : 98% of the emission estimates show a difference of less than 5%.

**Influence of the cross-section width** The results are slightly affected by the length used for the cross-sections. The distributions  $\epsilon^0$  show differences for biases and IQRs of less than 2%, for any combination of emission calculation methods, centerline definition and analysis zone.

**Comparison of the Gaussin plume models** The simplest method yields very large biases (between -10 and -50%) which can be attributed to the high modeling errors associated to a model for which all parameters but the emissions are fixed without considering the observed plume. The stability parameter and the source radius fixed in this methods are generally far from those derived a priori (mean absolute difference of 7km for the radius, and 70 for the stability parameter, which usually takes discrete values between 68 and 213).

The results obtained with the intermediate and complex Gaussian plume inversions are very similar. No differences can be seen at this stage between the two methods.

**Summary of the options selection** We decided in the following to restrict to the results obtained with the 5th order polynomial centerline with the 'city-40km', 'city-60km', '20km-40km' and '20km-60km' analysis zone for the IME and CS methods and '20km-40km' and '20km-60km' for the GP inversions. The GP1 inversion is discarded as well as all the days for which the spatial variability of the wind direction in the PBL is superior to 7°. The distribution  $\epsilon^0$  in the selected configurations in shown on figure 3.18.

## Analysis of $\epsilon_0^n$

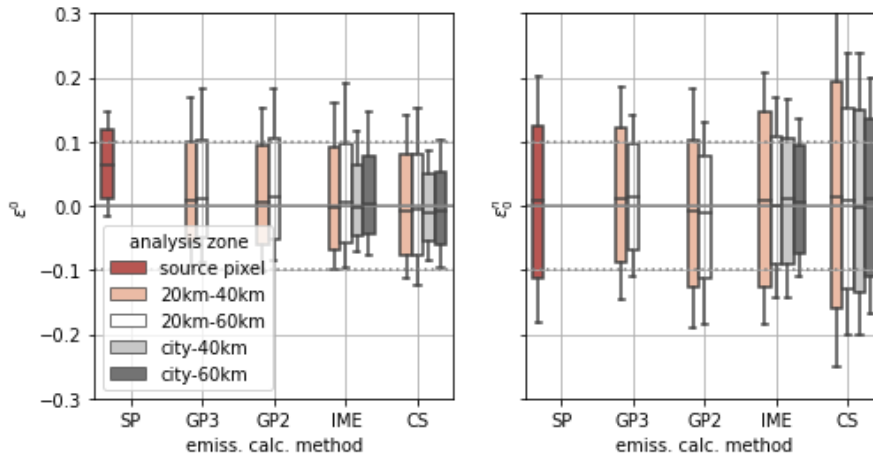


Figure 3.18 – Error distributions  $\epsilon_0^0$  and  $\epsilon_0^n$  for the different analysis zones retained and emission calculation methods.

The error distribution  $\epsilon_0^n$  is unbiased (absolute median value inferior to 2%) and with a relatively small IQR (between 17% and 27%, see figure 3.18), except for the CS method (between 25 and 35%).

For a given image, taking a larger analysis zone generally increases the number of points used for the emission calculation and thus lessen the impact of the measurement noise on the estimation. Therefore, figure 3.18 shows that larger is the plume analysis zone, lower is the IQR of the  $\epsilon_0^n$ . When considering the combination of  $\epsilon_0^0$  and  $\epsilon_0^n$  the “optimal” analysis zone appear to be a compromise between the size of the zone and its distance to the city center.

The amplitude of  $\epsilon_0^n$  is mainly driven by the wind speed (larger wind speed yielding larger  $\epsilon_0^n$ ), since the wind speed directly defines the amplitude of the plume and thus the signal to noise ratio (defined as the mean signal  $XCO_2$  for Paris core urban area divided by the difference between the values of the first and last deciles of the background -including noise- signal) exploited by the emission computation. This positive sensitivity of the amplitude of  $\epsilon_0^n$  to the wind speed balances the negative sensitivity of the amplitude of  $\epsilon_0^0$  to the mean effective wind speed (see section 3.2.10.1). However, the combination of  $\epsilon_0^0$  and  $\epsilon_0^n$  keeps on having a much larger amplitude when above above the threshold identified in 3.2.4.1 compared to below this threshold. This implicitly implies a tendency to retain large wind speeds when applying the threshold, due to the correlation of the two (see section 3.2.10.1). Therefore, the selection applied on the cases based on this threshold remains relevant when accounting for  $\epsilon_0^n$ .

### 3.2.10.2 . Evaluation of the wind estimation

In this section, the performance of the wind methods described on section 3.2.3.6 are analyzed based on the dependencies of the error distribution  $\epsilon_0^w$  (section 3.2.10.2) and  $\epsilon_n^w$  (section 3.2.10.2) to those methods and their parameters. The methods are compared and the some configurations set aside.

**Analysis of  $\epsilon_0^w$**  Figure 3.19 shows the error distribution  $\epsilon_0^w$  for the different wind estimation methods. The distribution of the error is only slightly influenced by the emission calculation method for a given analysis zone.

$\epsilon_0^w$  bears much larger biases (respectively -43% to +8% and +37% to 7%) when using the surface and mean wind estimation methods but a narrower IQR (respectively 14% to 26% and 10% to 19% with the exception when using the SP method at 29%) than when using the tangent wind estimation method (with which the bias is smaller than

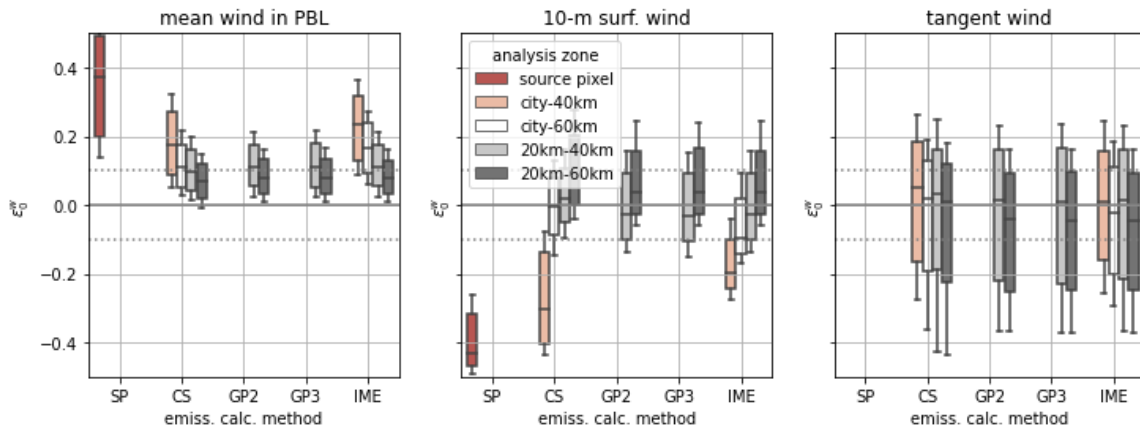


Figure 3.19 – Distribution of  $\epsilon_0^w$  for the different wind estimation methods function of the emission calculation methods and the analysis zone.

5% but the IQR is larger than 31%). The small IQR of the first two methods indicates a good correlation between the effective wind and the estimated wind.

The amplitude of  $\epsilon_0^w$  when using the surface wind (middle panel) and the mean wind in the PBL (left panel) to estimate the effective wind depends on the analysis zone, both in term of IQR and bias. When the analysis zone is far from the source, the corresponding section of the CO<sub>2</sub> plume is well mixed in the PBL and the mean wind method gives an estimation with low bias and IQR. The distribution of  $\epsilon_0^w$  when using the tangent wind estimation method (right panel) is not really influenced by the general definition of the analysis zone. We thus choose to select the method of wind estimation as a function of the analysis zone : the tangent wind is used with the 'city-40km' and 'city-60km' analysis zones and the mean wind in PBL with the '20km-40km' and '20km-60km' analysis zone. This choice applies in the following of this section and of this study.

The IQR of  $\epsilon_0^w$  is influenced by the wind direction variability when using the mean wind estimation method and even more the surface wind estimation method (not shown). As the spatial variability of the wind direction increases, the plume complexity increases and thus the difficulty to find a wind that is representative of the plume increases.

**Analysis of  $\epsilon_n^w$**   $\epsilon_n^w$  is similar to the error distribution  $\epsilon_0^w$  in term of sensibility to the emission calculation method, analysis zone and spatial variability of the wind direction. The selection of the wind method in function of the analysis zone described in section 3.2.10.2 is thus used in the following. Figure 3.20 show the the error distribution in function of the analysis zone and emission calculation methods for the wind methods retained. For the analysis zone encompassing the city (i.e. when using the tangent wind method) when using the Integratd Mass Enhancemet method, the IQR of the distribution  $\epsilon_n^w$  is slightly smaller than the IQR of  $\epsilon_0^w$ , which may indicate an slight overfitting of the centerline close to the city center, overfitting which disappear when the noise is added. However the relation between the wind estimation method and the centerline is complex and the hypothesis is thus difficult to assess.

### 3.2.10.3 . Evaluation of the plume definition methods with perfectly known background : analysis of $\epsilon_n^p$

In this section, the performance of the plume definition methods and emission zone definitions are analyzed via the error distribution  $\epsilon_n^p$ . This section verify their performances in the absence of background and let us make a small narrowing of the options at the end.

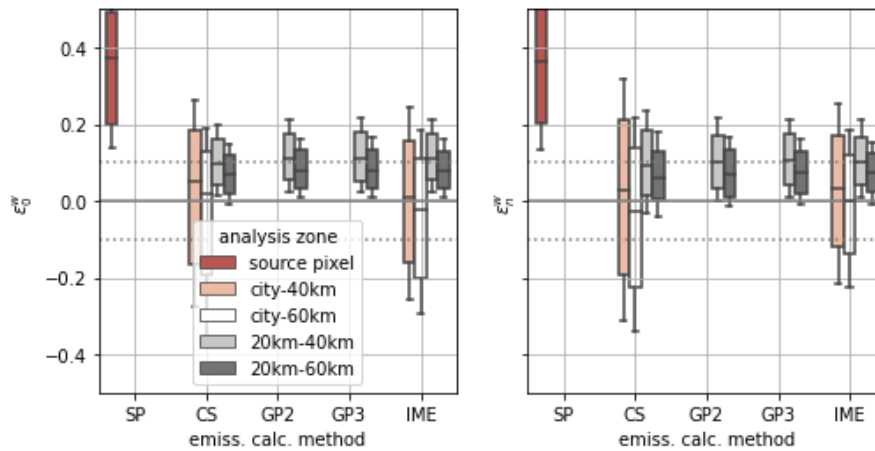


Figure 3.20 – Error distributions  $\epsilon_0^w$  and  $\epsilon_n^w$  for the different analysis zones and wind methods retained in function of the emission calculation method.

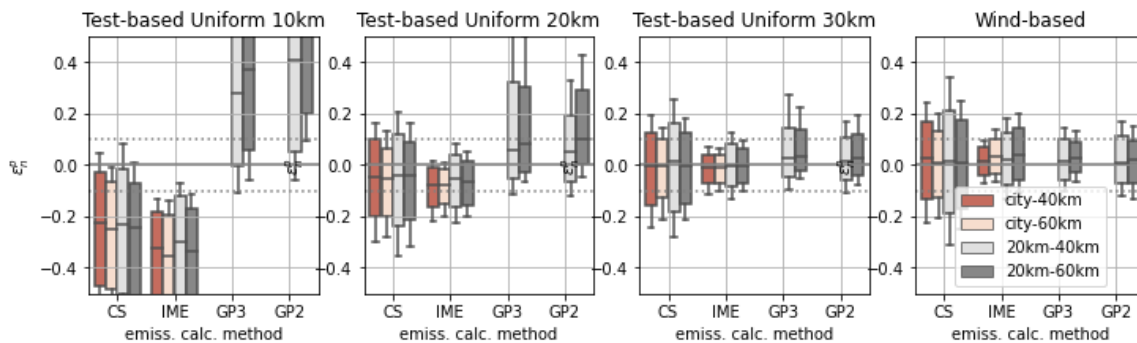


Figure 3.21 – Distribution of  $\epsilon_n^p$  in function of the emission calculation methods and analysis zone for the selected plume definition methods. The error shows the results with no rescaling.

The two kinds of methods, the ones based on a statistical test on the smoothed  $XCO_2$  data and the one based on the wind direction, show acceptable results when well parameterized, with bias of the error distribution  $\epsilon_n^p$  inferior to 10% and IQR inferior to 35% (see figure 3.21). The IQR is again higher when using the CS method.

In figure 3.22 the skill of the plume definition is quantified in terms of the fraction of the number of pixels of the real plume that as been detected on (i) the number of pixels in the real plume (denoted detection precision) and (ii) the number of pixels in the detected plume (denoted detection level).

The statistical test of the first kind of plume definition method is made for the same kind of distribution as the one of the observation uncertainty. Those methods therefore show good detection precision : all the plume definitions with this kind of method have a detection level above 0.9, which means that more than 90% of the pixels that have been labeled as part of the plume really belong to the plume for every parametrization. As the smoothing size increases, more non -plume pixels are contaminated by plume pixels during the smoothing and therefore the detection precision decreases. With the wind-based method, the detection precision is smaller (median of 0.8) as it does not rely on the  $XCO_2$  field.

The test-based methods leave aside the plume pixels with a small signal. Therefore the detection level are small and it decreases with the smoothing size. Even with a 30 km smoothing size, 75% of the plume definitions show detection levels below 0.6, which means that 40% of the plume has not been detected. The wind-based method shows

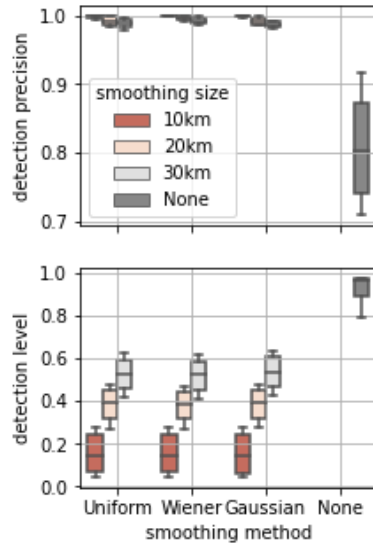


Figure 3.22 – Detection level (lower panel) and precision (upper panel) in function of the plume definition methods.

better detection level than the test-based methods, with 84% of the plume definition with detection level above 0.8.

For the test-based methods, the plume definition and detection level show no sensitivity to the smoothing method. Therefore we focus hereafter on the results obtained with the Uniform smoothing method.

Figure 3.21 shows the error distribution  $\epsilon_n^p$  for the different plume definition methods. A low detection level indicates a high level of plume pixels non detected and thus leads to a negative bias of the error distribution  $\epsilon_n^p$  for CS and IME methods on the error distribution  $\epsilon_n^p$  (bias inferior to -22% with the 10km smoothing size). The low detection levels affect also the Gaussian inversions, with a positive bias for them (bias superior to 15% with the 10km smoothing size). Therefore, the absolute bias of the error distribution decreases with the smoothing size of the test-based methods. Of note is that a median detection level of only 0.4 leads to a absolute bias of the error distribution  $\epsilon_n^p$  for CS and IME methods inferior to 10%.

The application of the emission zone for the IME and CS methods reduce the bias for the small smoothing sizes (bias inferior to 5% for the 20km smoothing size for the IME and CS methods), but without reaching the level of bias of the 30km smoothing size. For the Gaussian plume inversions, the IQR of the error distribution is stable when applying the emission zone for the 10 km smoothing size (range from 40% to 46% with no rescaling and 42% to 45% with rescaling) and the 20km smoothing size (range from 18% to 23% with no rescaling and 19% to 26% with rescaling). For the 30km smoothing size, the cross-section of the plume are bigger than the city radius and thus all the Paris core urban area is within the emission zone in most cases. As there is no background, no emissions outside of the Paris core urban area are put in the emission zone. Thus the emission zone is strictly equivalent to the Paris core urban area in most cases : 18% to 84% of the cases (71% to 84% when we exclude results obtained with the CS method) show a difference inferior to 5% between this two reference emissions (13% to 86% with a 20km smoothing size, 25% to 86% when excluding CS results). The emission zone definition are thus not very relevant to improve the performance of the plume definition methods when analyzing the error distribution  $\epsilon_n^p$ .

The high detection level of the wind direction based method means that a large fraction of the plume is caught. As the false-positive distribution should have a mean value of 0, there impact are small on the emission calculation methods. The error distribution of  $\epsilon_n^p$  has thus a small bias (between -1% and 4%) and IQR (between 11% and 41%) when using the plume definition method based on the wind direction.

The IQR of  $\epsilon_n^p$ , as the IQR of  $\epsilon_0^n$ , is driven by the ratio between the strength of the XCO<sub>2</sub> signal and the measurement noise (the “signal-to-noise-ratio” of the plume definition). In the case of the test-based plume definition methods, the bias of  $\epsilon_n^p$  is also sensitive to the signal to noise ratio : the detection level increases with the signal-to-noise-ratio, which result in a decrease of the bias of  $\epsilon_n^p$  with the signal-to-noise-ratio.

#### 3.2.10.4 . Evaluation of the background estimation methods with perfectly known plume

In this section, the performance of the background estimation methods described on section 3.2.3.3 are analyzed based on the dependencies of the error distribution  $\epsilon_0^b$  (section 3.2.10.4) and  $\epsilon_n^b$  (section 3.2.10.4) to those methods and their parameters. The methods are compared and the some configurations set aside.

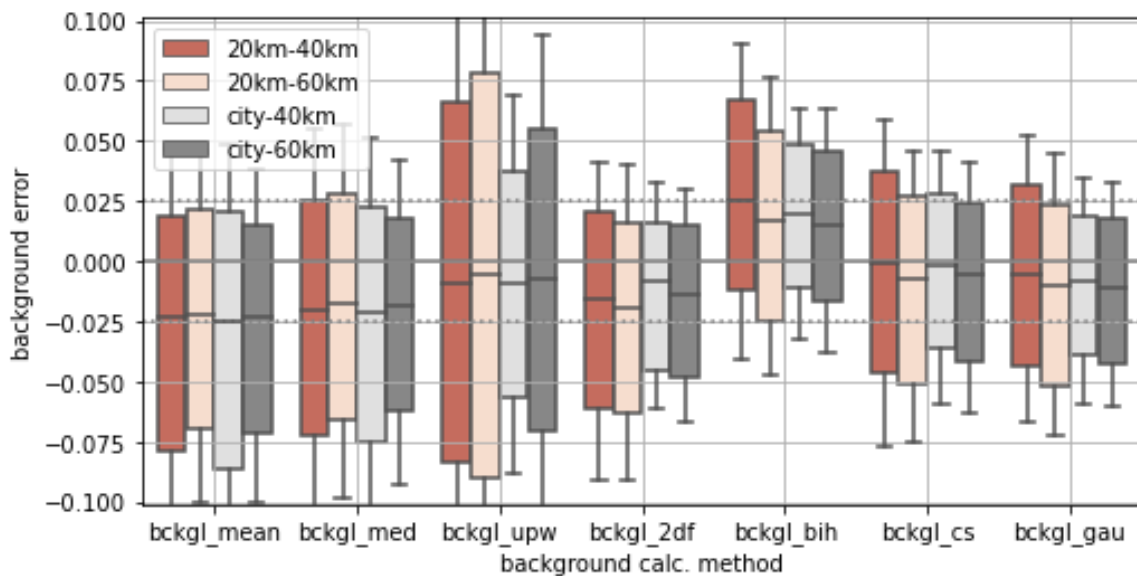


Figure 3.23 – Distribution of the background error in function of the background estimation method for the different plume analysis zones.

**Analysis of  $\epsilon_0^b$**  The mean error of the calculated background in the analysis zone of interest is calculated for each image and background calculation methods. We first study the distribution of this mean error (denoted background error in the following, see figure 3.23) in function of the analysis zone and background calculation methods to make a preselection of the background calculation methods.

For the analysis zone of the SP method, two background estimation methods stands out with a relatively small bias of the background error (absolute value of the median inferior to 0.01ppm) : ‘bckgl\_mean’ and ‘bckgl\_gauss’. For the analysis zones used by the other emission calculation methods, the bias and the IQR of the distribution of the background error are low (bias inferior to 0.01ppm and IQR inferior to 0.09ppm for all the analysis zone) when using ‘bckgl\_cs’ and ‘bckgl\_gau’ methods. The method based on biharmonic equation (‘bckgl\_bih’), albeit having a similar IQR, gives a median bias for the background error around 0.025 ppm, which results in a median bias around 25% for the distribution of  $\epsilon_0^b$ . We thus decide to focus on the ‘bckgl\_mean’ and ‘bckgl\_gauss’ methods for the source pixel analysis zone and on the ‘bckgl\_cs’ and ‘bckgl\_gau’ methods for the other plume analysis zones.

The error distribution  $\epsilon_0^b$  shows no sensitivity to the analysis zone (not shown), therefore the following results are presented using the ‘city-40km’ analysis zone for CS and IME methods and ‘20km-60km’ for the Gaussian inversions, but the conclusions can be extended to the other plume analysis zone.



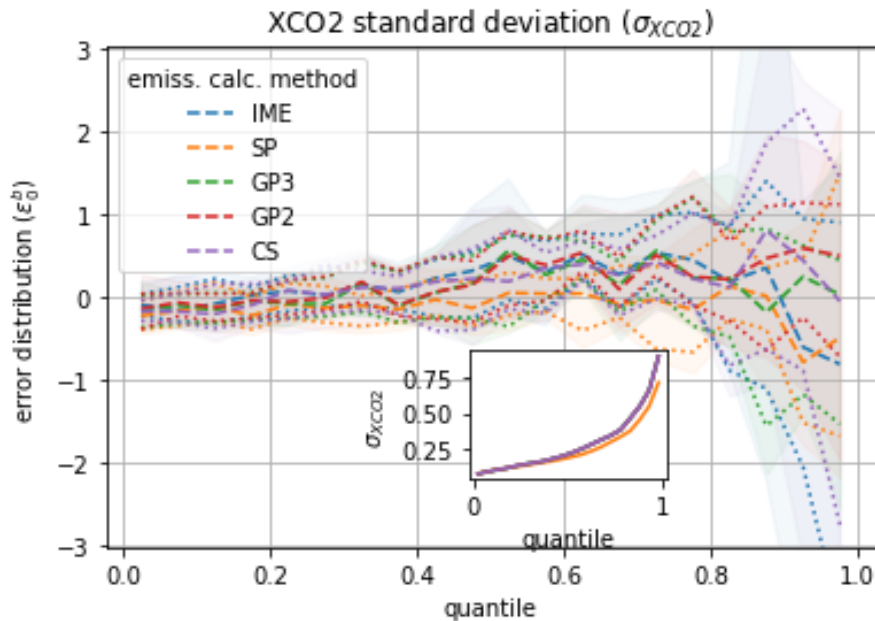


Figure 3.24 – Illustration with the ‘bckgl\_gau’ method of the evolution of the distribution  $\epsilon_0^b$  in function of the standard deviation of the XCO<sub>2</sub> signal in the image for the different emission calculation methods.

The complexity of the background, when too important, can not be modeled by the methods used for the background calculation. Therefore the IQR of the distribution  $\epsilon_0^b$  increases with the standard deviation of the XCO<sub>2</sub> field in the image (see figure 3.24) and this standard deviation is a good indicator of the expected accuracy of the emission calculation.

When the plume is occupying more than 40% of the image, the background methods faces difficulties to resolve the center of the plume. When the plume is unknown, the designs of our plume definition method do not allow for the plume detected to reach such size. Thus this effect is not a problem in our study but attention should be paid to this point when the city is occupying a bigger part of the image.

**Analysis of  $\epsilon_n^b$**  When the measurement noise is added, the background calculation methods show similar results than in the previous section. The distribution  $\epsilon_n^b$  is thus similar to  $\epsilon_0^b$  (see figure 3.25). The sensitivity to the standard deviation of the XCO<sub>2</sub> field in the image and the plume size are found to be the same.

### 3.2.10.5 . Combined effect of the plume and background methods

This section only concern the IME and CS methods and GP inversions as the SP method does not need a detection of the plume limits.

Only the background calculation methods selected in section 3.2.10.4 and the plume definition methods selected in 3.2.10.3 are studied. The performance of the plume definition and background calculation methods are studied regarding their results in terms of background error, detection level and detection precision (section 3.2.10.5) and by analyzing the error distributions  $\epsilon_b^p$  (section 3.2.10.5) and  $\epsilon_{nb}^p$  (section 3.2.10.5). The range of options is narrowed in each subsection.

**First evaluation of the methods performance** The simulation are made with a unknown plume and background and a 0.7ppm noise. A first evaluation is made of the combination of the retained background calculation methods

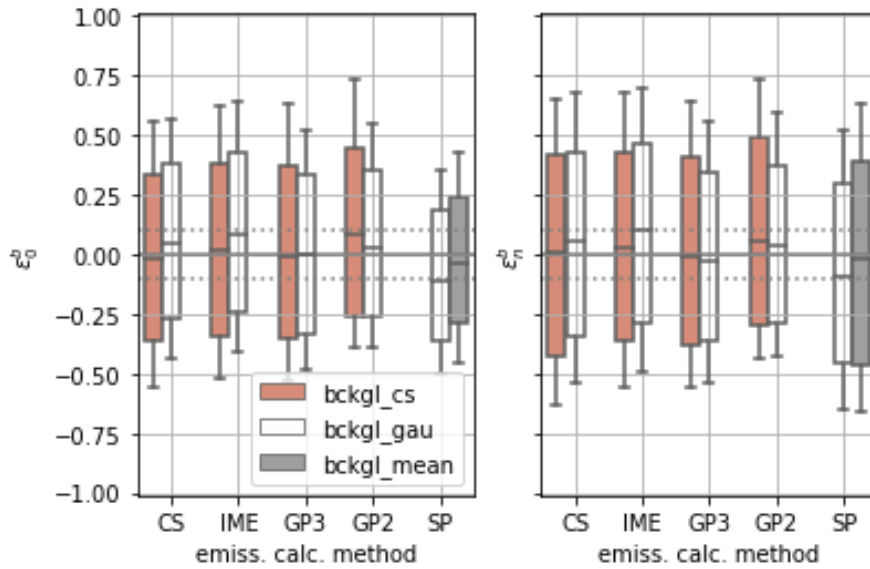


Figure 3.25 – Distribution of  $\epsilon_0^b$  and  $\epsilon_n^b$  in function of the background calculation methods for the different emission calculation methods.

(see section 3.2.10.4) and the plume definition methods in terms of background error in the analysis zones (see section 3.2.10.3), detection sensitivity, detection precision and number of plume successfully detected.

The for indicators show no sensitivity to the analysis zone (not shown), thus we focus on the 'city-60km' analysis zone hereafter. Figure 3.26 shows an illustration of the results for the selected plume analysis zone. We first focus on the tuning of the plume definition method adapted from [Kuhlmann et al., 2019] (figure 3.26) where the method for the a priori calculation of the background, the smoothing method and smoothing size have to be chosen. For a given a priori background calculation and smoothing size, the results given by the different smoothing method are very close : the pearson correlation between the smoothing methods for the detection sensitivity and precision are superior to 0.97. The for indicators show low sensitivity to the smoothing size : a 20 km smoothing size will give a slightly bigger background, a better detection precision but a lower detection sensitivity. This difference is more or less marked depending on the a priori background calculation method used.

Concerning the method for the a priori background calculation, the one based on a planar fit of the XCO<sub>2</sub> data (bckgp\_2df) shows a significant IQR (between 0.13 and 0.16ppm) compared to the other methods (between 0.09 and 0.12). This method gives also low detection precision compared to the other a priori background calculation methods. The methods based on the median and the mean of the XCO<sub>2</sub> data (resp. bckgp\_mean and bckgp\_med) give very similar results (correlation over 0.97 for the detection precision, detection sensitivity and background error). Therefore we choose to focus on the methods bckgp\_mean and bckgp\_upw. The bckgp\_mean method has a smaller background error than the bckgp\_upw method and shows a slightly better detection precision but a smaller detection sensitivity. We thus choose to keep in the following only two version of the plume definition method adapted from [Kuhlmann et al., 2020] : (i) an a priori calculation of the background with the bckgp\_upw method associated to a 20km smoothing size with the Uniform smoothing method and (ii) an a priori calculation of the background with the bckgp\_mean method associated to a 20km smoothing size with the Uniform smoothing method. Both background calculation methods tested (bckgl\_cs and bckgl\_gau) are kept.

The results given by the wind-based method are similar to the test-based methods retained in term of background error : the IQR of the background error distribution are around 0.08ppm and the bias is inferior to 0.005ppm for all of them. The detection precision and sensitivity are different with a much narrower IQR (detection precision : 0.19 for

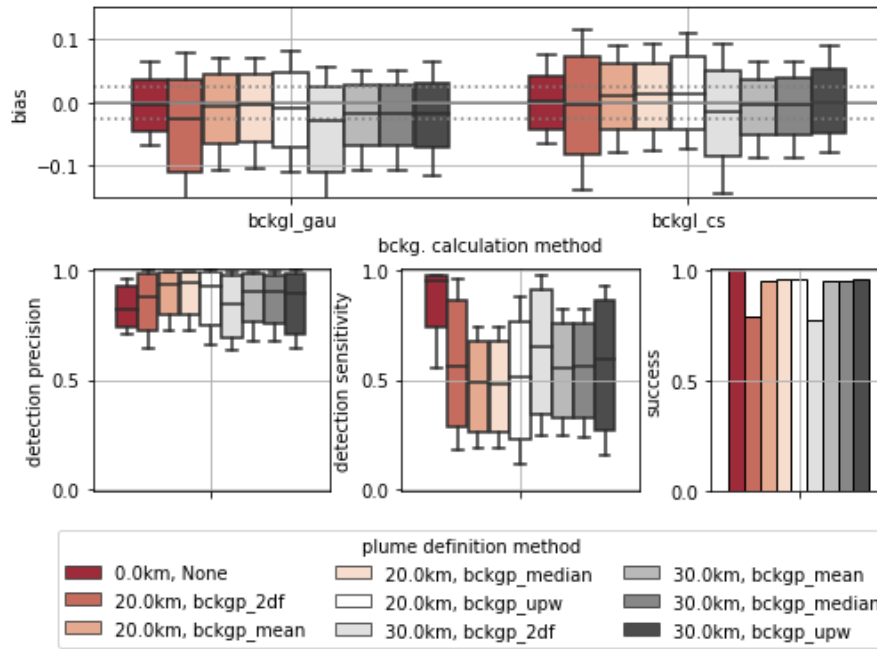


Figure 3.26 – Results of the different plume definition and background calculation methods in terms of background error, detection sensitivity, detection precision and number of plume successfully detected. The results are grouped by a priori background calculation method. Only the parametrizations of the test-based method using an uniform filter are shown.

the wind based, between 0.19 and 0.28 for the test-based ; detection sensitivity : 0.23 for the wind based, between 0.41 and 0.59 for the test-based). As in the case of  $\epsilon_n^p$ , for the wind-based method the median detection precision is slightly smaller (0.82 for the wind-based, 0.89 and 0.94 for the test-based) but the median detection sensitivity is far greater (0.94) than when the test-based methods are used (0.48 and 0.61).

**Analysis of  $\epsilon_b^p$**  The simulations are performed with an unknown background, unknown plume and no measurement noise in the configurations selected in section 3.2.10.5. The distribution of  $\epsilon_b^p$  shows a high sensitivity to the configuration parameters (plume analysis zone, background calculation and plume definition method).

The IQR of the distribution  $\epsilon_b^p$  increases with the distance of the analysis zone to the city center. Close to the core urban area, the targeted XCO<sub>2</sub> signal do not have time to diffuse and is thus strong and directly downwind of the core urban area. Thus the plume definition methods may perform better on analysis zone close to the core urban area and explain this sensitivity not seen in the previous section. The results described in the rest of the subsection being independent of the plume analysis zone, we present the results with the 'city-40.0km' analysis zone for the CS and IME methods and '20.0-40.0km' analysis zone for the GP inversions.

Figure 3.27 show the distribution of  $\epsilon_b^p$  in function of the emission calculation methods and plume definition methods for the two background calculation methods retained. The results outlined in the previous section are confirmed here. The statistical based methods for plume definition tends to have a high number of false positive in the detected plume, which results in a lower detection level compared to the one obtained with the wind based method. This results in a bigger IQR in the distribution  $\epsilon_b^p$  when using the statistical-based methods rather than the wind-based one for the plume definition. The use of the emission zone for the CS method reduce the IQR of the error distribution when using the test based plume definition methods, but not sufficiently for this methods to be interesting compared to the wind-based method.

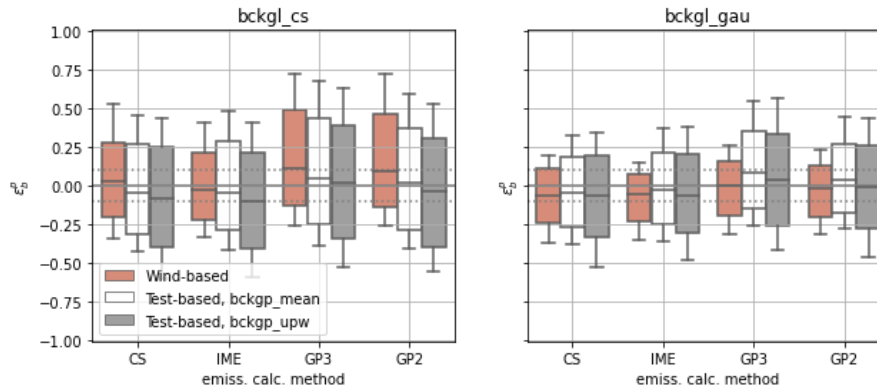


Figure 3.27 – Distribution of  $\epsilon_b^p$  in function of the emission calculation for the different plume definition methods when using the 'bckgl\_gau' (left panel) and 'bckgl\_cs' (right panel) background calculation methods. The results are shown when using a uniform smoothing at 20km for the test-based methods.

The slightly bigger IQR of the background error seen in figure 3.26 when using the 'bckgl\_cs' background calculation method rather than the 'bckgl\_gau' one is enhanced in the distribution  $\epsilon_b^p$ . Therefore, the best configuration seems, at this stage, the plume definition method based on the wind direction and the background calculation method based on Gaussian function. The application of the rescaling by the emission zone does not sufficiently improve the results of the test-based methods to be competitive with the wind-based methods.

The IQR of the distribution  $\epsilon_b^p$ , as the IQRs of the distributions  $\epsilon_n^p$ ,  $\epsilon_0^b$  and  $\epsilon_n^b$ , is sensitive to the signal-to-noise ratio and thus increases with the standard deviation of the  $\text{XCO}_2$  signal in the image.

### Analysis of $\epsilon_{nb}^p$ and narrowing of the range of options for the background calculation and plume definition

The simulations are performed with an unknown background, unknown plume and 0.7ppm measurement noise. The results found in the previous section in term of performance of the plume definition and background calculation methods are the same here. Therefore we focus on the results given by the plume definition method based on the wind direction and the background calculation method 'bckgl\_gau'. A sensitivity to the analysis zone similar than for  $\epsilon_b^p$  (see section 3.2.10.5) is visible for  $\epsilon_{nb}^p$ , except for the CS method. The IQR of the distribution  $\epsilon_{nb}^p$  -as the distributions  $\epsilon_n^p$ ,  $\epsilon_0^b$  and  $\epsilon_n^b$ - decreases with the signal to noise ratio. Furthermore, this IQR slightly increases with the distance of the analysis zone to the city.

In the following, only the plume definition method based on the wind direction with the 'bckgl\_gau' background calculation method are kept.

#### 3.2.10.6 . Analysis of $\epsilon_{nbp}^w$

The distribution of  $\epsilon_{nbp}^w$  show -as  $\epsilon_n^w$  and  $\epsilon_0^w$ - a more important IQR when the tangent wind is used (32% to 52% vs 13% to 21% when the mean wind is used), which correspond to the analysis zones encompassing the city. The uncertainty in the estimation of the  $\text{XCO}_2$  signal from the city, due to uncertainties in the plume limits and in the calculated background, impacts the estimation of the wind. Thus the IQR of  $\epsilon_{nbp}^w$  (13% to 52%) is more important than the IQR of  $\epsilon_n^w$  (10% to 47%). The bias is of the same order of magnitude (<10%).

When the signal to noise ratio is high, the weighting coefficient used to calculate the mean wind in the analysis zone are less accurate. Thus the IQR of the distribution increases with the signal to noise ratio and the standard deviation of the  $\text{XCO}_2$  signal in the image.



## 4 – Application préliminaire des méthodes à des données OCO-2 : cas-test sur Lahore

En parallèle du développement et du test des méthodes d'inversion avec les pseudo-images des émissions de Paris (cf chapitre 3), nous avons voulu tester rapidement nos méthodes sur des données réelles afin de mieux comprendre l'intérêt et les limites de l'étude avec des données synthétiques sur Paris. Ruixue Lei étudiait à PSU au même moment les données OCO-2 sous le vent de Lahore, y ayant repéré de nets accroissements dans les valeurs de  $XCO_2$ . Le but principal de cette étude était de voir si une tendance dans les émissions de Lahore peut être détectée à partir d'estimations des émissions de la ville réalisées avec les données OCO-2. Une collaboration a été faite sous son impulsion et celle de Thomas pour comparer les estimations des émissions que nous pouvions obtenir avec différentes méthodes d'estimation et voir si il y avait des éléments robustes sur lesquelles toutes s'accordaient (niveau moyen des émissions, tendances).

Trois méthodes d'inversion sont utilisées pour cette étude : une reposant sur un modèle eulérien, où l'estimation est obtenue en comparant les observations OCO-2 avec les simulations de concentrations atmosphériques réalisées avec le modèle WRF ; une reposant sur un modèle lagrangien (X-STILT), l'estimation des émissions se faisant là aussi en comparant les observations et les données simulées par le modèle ; et enfin la dernière méthode calcule directement le flux de  $CO_2$  traversant la trace de OCO-2 pour déterminer les émissions de la ville. L'estimation des émissions avec WRF a été réalisée par Ruixue Lei (PSU), celle avec X-STILT par Dien Wu (Caltech) et celle avec la méthode de flux par moi.

Cette étude a mené à un article ([Lei et al., 2021]) publié dans la revue *Remote Sensing of Environment* qui est joint dans les pages suivantes. Le code d'inversion pour les méthodes FCSI (adaptation de la méthode CS du chapitre 3) a été entièrement rédigé dans le cadre de cette thèse, ainsi que le code de traitement des résultats de cette méthode. J'ai de plus rédigé les sections 2.6, 3.4 et S1 de cet article avec l'aide, et parfois un gros travail de réécriture, de Grégoire Broquet et Thomas Lauvaux, mes deux encadrants. Dans la suite, nous présentons les différences existant entre la méthode d'inversion basée sur CS optimisée dans le chapitre précédent et celle utilisée ici. Nous résumons ensuite en français l'article. Ce dernier est mis en annexe de ce manuscrit (chapitre 7), avec les parties annexes qui ont été rédigées dans le cadre de cette thèse.

### 4.1 . Différence avec les méthodes d'inversion retenues dans le chapitre précédent

La méthode d'inversion utilisée dans cette étude, basée sur une estimation des émissions par la méthode par section transverse (*Cross-Sectional method*), comporte quelques différences avec celle décrite dans le chapitre précédent, cette étude ayant été finie avant celle du chapitre précédent, et donc avant l'optimisation finale de nos méthodes d'inversion. Ainsi, les méthodes utilisées ici pour les étapes d'estimation de la concentration de fond et de définition des limites du panache (cf chapitre 7, Supplementary material S1) ne sont pas celles finalement retenues dans le chapitre précédent, ces méthodes n'ayant pas encore été développées et testées au moment de la rédaction de cette étude. Comme dans le chapitre précédent, quand nous avons utilisé un échantillonnage type OCO-2 (cf section 3.2.2.3), la trace OCO-2 est utilisée comme section transverse du panache. De même, le vent effectif est estimé par le vent moyen dans la PBL.

Une méthode basée sur un test statistique étant utilisée pour définir le panache dans cette étude, nous avons, comme dans le chapitre précédent (cf section 3.2.3.2), essayé d'améliorer l'estimation des émissions en testant plusieurs redéfinitions de la zone d'émission ciblée correspondant à ces émissions. Plusieurs zones d'analyse ont été testées sans que nous en trouvions de réellement satisfaisant. Ces conclusions mitigées durant l'étude sur Lahore nous

ont poussés à tester une manière différente de définir le panache dans l'article sur Paris présenté dans le chapitre précédent, en se basant sur les données de vent plutôt que sur les données CO<sub>2</sub>.

## 4.2 . Résumé de l'article

Question personnelle : Quels sont les résultats des méthodes légères comparés à ceux des inversions plus lourdes (modèles eulérien et lagrangien) pour une ville spécifique en utilisant les données OCO-2 ?

Question globale : Peut-on détecter une tendance dans les émissions d'une ville comme Lahore à partir des 2 premières années de données OCO-2 ?

Après une introduction replaçant l'étude dans son contexte général et mettant en avant son intérêt, la première partie décrit les données utilisées, en expliquant notamment le choix de la ville de Lahore et la sélection des passages de OCO-2. Cette partie décrit aussi les différents modèles et système d'inversion utilisés.

Les résultats sont ensuite présentés, avec tout d'abord une analyse préliminaire sur la qualité des données (proportion des données passant le contrôle qualité) pour chaque continent (chapitre 7 section 3.2) mais aussi pour les 70 villes les plus peuplées au monde (chapitre 7 section 3.2). Les estimations d'émissions sont ensuite brièvement analysées, pour les méthodes utilisant les modèles WRF et X-STILT d'une part (chapitre 7 section 3.3) et notre méthode d'autre part (chapitre 7 section 3.4). Une comparaison entre les résultats obtenus quand toutes les données OCO-2 sont utilisées d'une part, et quand seulement les données de bonne qualité sont utilisées d'autre part, est réalisée. La restriction aux données de bonne qualité donne une médiane des émissions plus proche de l'estimation fournie par l'inventaire ODIAC et réduit le nombre d'estimations aberrantes. Cependant, le faible nombre de passages exploitable quand nous nous restreignons aux données de bonne qualité (8 passages avec la restriction, 25 sans) ne permet pas de conclure sur la meilleure performance d'une méthode d'inversion par rapport aux autres, ni de détecter une tendance dans les émissions de Lahore (chapitre 7 section 3.6).

La dernière partie discute les spécificités de la ville de Lahore par rapport à d'autres villes et l'amélioration que devrait (et pourrait) apporter les futures missions satellitaires dans le suivi des émissions urbaines.

## 5 - Définition de critères de discrimination des conditions d'observations

Dans le chapitre 3, nous avons étudié un ensemble de méthodes à faible temps de calcul pour estimer les émissions de CO<sub>2</sub> d'une ville à partir des images satellitaires de ses panaches atmosphériques de CO<sub>2</sub>. Cette étude a comparé de façon extensive ces méthodes, et diverses options pour leur paramétrisation, pour chaque étape du processus de détection et d'inversion de panaches atmosphériques, en utilisant des pseudo-images. Cela nous a permis de sélectionner les méthodes et configurations les plus adaptées, parmi celles testées, à l'estimation des émissions de Paris. Nous avons aussi pu montrer et quantifier les différentes incertitudes associées à une telle estimation pour une ville comme Paris. Nous avons ainsi vu que l'erreur sur l'estimation des émissions de CO<sub>2</sub> était sensible aux conditions météorologiques et plus précisément à (i) la variabilité spatiale de la direction du vent dans le panache ainsi qu'au (ii) champ de concentration de fond, c'est à dire au flux dans la zone et la période d'intérêt, voire au transport à grande échelle de structure synoptique de CO<sub>2</sub>.

Pendant cette précédente étude est limitée à une seule ville, donc à un unique type de source en termes d'amplitude et de distribution spatiale des émissions, à un seul type de topographie locale, à un type de champ de concentration de fond, et seulement aux conditions météorologiques des moyennes latitudes. Ces résultats, à la fois du point de vue de la distribution de l'erreur sur l'estimation des émissions (biais, IQR) et des sensibilités de cette erreur à la variabilité spatiale de la direction du vent et au champ de concentration de fond, ne sont pas valables pour toutes les villes. Comme nous avons établi les configurations d'inversion de panache les plus précises, parmi celles testées, avec le cas de Paris, nous allons désormais étendre l'étude des performances et sensibilités de ces configurations en étudiant d'autres villes. Nous faisons ici l'hypothèse que les configurations choisies dans le cadre de Paris restent les meilleures, quelque soit la ville choisie. Cette supposition nous semble justifiée, car les méthodes choisies se démarquaient des autres sur des critères objectifs universels, comme décrit dans le chapitre 3. Cette étude doit permettre de généraliser la connaissance du potentiel du traitement des images de XCO<sub>2</sub> pour la quantification des émissions de ville, et plus particulièrement d'identifier les villes et les conditions atmosphériques pour lesquelles on peut espérer réaliser une telle quantification. Dans le cas d'un instrument comme OCO-3, cela doit permettre d'identifier des critères pour sélectionner les cibles des SAMs. Pour le traitement de l'ensemble massif des données d'un imageur comme CO2M ou GeoCarb, cette approche devrait permettre de restreindre l'ensemble des portions locales des images qui valent la peine d'être traitées pour la détection et l'inversion de panaches. Enfin, les calculs d'inversion de panaches, avec le type de méthodes que nous utilisons, viennent souvent sans évaluation de l'erreur correspondante. Notre étude permettra d'obtenir une évaluation plus rigoureuse des erreurs en fonction des types de villes et des conditions atmosphériques ou d'observation, ou, a minima, un indice sur la fiabilité de ces inversions permettant de valider ou non les différentes estimations.

Dans une précédente étude, [Schuh et al., 2021] utilisent des simulations faites avec le modèle OLAM ([Walko and Avissar, 2008a, Walko and Avissar, 2008b]) pour classer les villes suivant le ratio entre l'amplitude moyenne au dessus de la ville du signal anthropique de la ville et la variabilité du signal de fond local au-dessus de la ville. Ce classement donne, a priori, une indication sur les villes pour lesquelles estimer les émissions par données satellitaires sera le plus facile, ces villes étant celles avec le plus fort ratio. Cette étude ne se base donc pas sur des inversions pour classer les villes mais sur un critère a priori. Ces simulations sont faites pour 31 villes dans le monde (parmi les 50 plus grandes). Nous les analysons plus en détails dans ce chapitre en nous intéressant directement à l'erreur sur l'estimation des émissions. Nous pouvons ainsi identifier des critères plus adéquats sur le vent et les émissions permettant de sélectionner les cas favorables à des estimations précises. [Wang et al., 2020] ont, quant à eux, fait une étude sur la capacité à estimer les émissions de la plupart des zones urbaines ( $\approx 5000$ , dont ils définissent eux-mêmes les contours,



cf [Wang et al., 2019]) et les centrales de production d'énergie avec des images semblables à celles de la mission CO2M. Cependant, leur calculs des incertitudes sur les inversions des émissions de ces sources ont fait abstraction des incertitudes sur la modélisation du transport atmosphérique (incertitudes sur la météorologie et sur le signal de fond), en le supposant parfaitement connu. Leur étude ne s'est intéressé qu'aux limites d'échantillonnage (fauchée, perte de données liées à la couverture nuageuse, résolution spatiale) et de précision de l'imagerie XCO<sub>2</sub>. Or l'incertitude sur la forme et la position du panache (et donc la météorologie, les caractéristiques des villes) peuvent aussi influencer les résultats et donc la capacité à estimer les émissions d'une ville. Nous faisons ici le choix d'étudier un nombre restreint de villes mais avec les simulations d'un modèle atmosphérique tri-dimensionnel, OLAM, capable de reproduire les variations et les champs de fond de CO<sub>2</sub> avec réalisme afin de tenir compte de l'incertitude sur la météo et le transport, et d'identifier les critères de classement des images sur les performances de l'inversion, contrairement à [Schuh et al., 2021] qui ont plus simplement approché le problème par le rapport signal-sur-bruit des concentrations.

L'objet de ce chapitre est donc d'étudier la sensibilité de l'erreur sur l'estimation des émissions à un ensemble de variables diverses. Cette étude doit permettre de définir des critères objectifs de choix pour cibler les villes, les jours, les inversions pertinentes, et pour évaluer la précision des inversions qui ont été réalisées. Plus spécifiquement, cette étude des sensibilités nous permettra d'apporter des informations pour répondre à 3 questions : (i) quelles villes et situations météorologiques choisir pour réduire les erreurs ? Cette identification des cibles les plus pertinentes est faite sur la base de l'analyse de la sensibilité de l'erreur aux conditions météorologiques et aux caractéristiques des villes ; (ii) une fois l'image acquise sur une des cibles préalablement identifiées, est-il pertinent de faire une inversion ? Ce choix est fait sur la base de la sensibilité aux caractéristiques de la scène présentée par l'image (taille du panache, concentration de fond détectée,...) ; (iii) une fois l'inversion effectuée, quelle est la qualité de cette inversion ? La qualification est faite sur la base de la sensibilité à des diagnostics de l'inversion (courbure de l'axe central du panache, résidu de l'optimisation pour les panaches gaussiens,...).

Nous allons analyser les sensibilités de l'erreur à ces différents paramètres pour déterminer lesquels sont les plus pertinents vis-à-vis de la question posée. En pratique, du fait du faible nombre de variables pertinentes pour la question (ii) (cf section 5.2.3), nous allons grouper les variables en 2 ensembles : les variables prédictibles (caractéristiques des villes et météorologiques) et les variables diagnostiques (caractéristiques de l'image et de l'inversion). Nous allons appliquer de manière successive à ces deux groupes un algorithme d'arbre de décision pour définir des critères objectifs de discrimination des cas pertinents d'inversions. Les pseudo-images utilisées en entrées du deuxième algorithme seront celles passant les critères de discrimination du premier algorithme.

Pour faire cela, nous utilisons les simulations avec le modèle OLAM précitées. La section 5.1 décrit brièvement la configuration du modèle utilisée pour faire les simulations et détaille la construction des pseudo-images et des zones d'émissions que nous ciblons. Les méthodes d'inversion utilisées sont les méthodes décrites dans le chapitre 3 dans leurs configurations optimales, que rappelle la section 5.2.1. La méthode avec des arbres de décision utilisée pour définir les critères de discrimination est décrite dans la section 5.2.2.2. Les analyses de l'erreur sur l'estimation des émissions en fonction des différentes variables étudiées et les critères définis sont finalement présentées dans la section 5.3.

## 5.1 . Simulations des images de XCO<sub>2</sub> sur un grand ensemble de villes

Le modèle OLAM (Ocean Land Atmospheric Model) est un modèle de circulation générale, couplé océan-atmosphère avec un coeur dynamique qui a été utilisé dans le Dynamical Core Model Intercomparison Project (DCMIP, [Ullrich et al., 2017]). La particularité première du modèle OLAM est sa grille à mailles hexagonales dont la taille est adaptative ([Walko and Avissar, 2008a, Walko and Avissar, 2008b]) ce qui permet d'affiner la haute résolution sur les zones d'intérêt (mésos-échelle non-hydrostatique) tout en conservant une maille grossière sur le reste du globe (modèle hydrostatique). Cette approche permet ainsi de réduire les besoins en temps de calcul tout en

conservant un domaine global. Le transport modélisé entre les différentes régions utilise des schémas physiques et dynamiques variables en fonction de la résolution, en particulier pour la convection sous-maille. La diffusion turbulente quant à elle est paramétrée à partir du modèle de Smagorinsky qui dépend directement de la résolution de la maille [Smagorinsky, 1963]. Pour la convection sous-maille, les cumulus, les précipitations et le mélange sont représentés suivant une méthode développée et décrite par [Grell and Dévényi, 2002].

Les niveaux verticaux sont à altitude constante et peuvent donc croiser le relief, ce qui permet d'éviter les erreurs de gradients sur des pentes fortes dans une grille en coordonnées de pression (ou hybride) ([Ullrich et al., 2017]). La grille horizontale adaptative permet de modéliser à plus haute résolution spatiale les zones où la dynamique est localement complexe, comme par exemple les zones montagneuses ou côtières. Elle permet également de raffiner la représentation des panaches urbains tout en limitant le temps de calcul par rapport à un modèle globale à taille de maille unique. Ainsi, au dessus des villes choisies, les mailles sont de l'ordre du kilomètre et s'élargissent progressivement jusqu'à atteindre plusieurs degrés au dessus des océans.

### **5.1.1 . Simulation du transport de CO<sub>2</sub> et traçage des signaux associés aux émissions des villes d'intérêt**

Le modèle de transport atmosphérique OLAM est donc utilisé pour simuler les champs météorologiques et de CO<sub>2</sub> nécessaire à l'élaboration de nos pseudo-images. Les flux issus du système d'inversion global CarbonTracker 2017 ([Peters et al., 2007]) sont utilisés comme données d'entrée du modèle pour les flux surfaciques biogéniques de CO<sub>2</sub>. Les émissions anthropiques de l'inventaire spatialisé ODIAC ([Oda et al., 2018], voir chapitre 3) sont utilisées pour représenter les villes, les industries, et les centrales d'énergie. Aucun profil temporel n'est appliqué sur les données ODIAC, ce qui signifie que les émissions anthropiques simulées sont donc constantes sur l'année. A partir de ces données, le modèle va simuler sur sa grille hexaédrique les champs de vent, de pression, d'humidité relative, de température (nécessaire au calcul de la hauteur de PBL, via le calcul du champ de température potentielle et la formule de [Nielsen-Gammon et al., 2008]) et les champs de concentration de CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère. Les résultats de ces simulations sont ensuite projetés sur une grille régulière pour simplifier l'analyse des sorties du modèle. Les simulations ont été faite pour 31 villes. Nous récupérons les champs 2D de XCO<sub>2</sub> (i.e. les colonnes intégrées du CO<sub>2</sub> pondéré par les niveaux de pression) ainsi que les champs 3D de pression, de vent, d'humidité relative et de température sur la grille régulière pour toutes les villes et leurs alentours.

Dans le chapitre 3, les émissions anthropiques de l'agglomération parisienne, les émissions anthropiques en dehors de l'agglomération et les émissions biogéniques étaient séparées et leur signaux suivis en utilisant trois traceurs distincts dans le module de chimie passive. Cela nous a permis de décomposer l'erreur due aux émissions de celles générées par les méthodes d'inversion, en ayant notamment accès aux limites réelles du panache et au champ de XCO<sub>2</sub> de fond (cf chapitre 3). Ici, une séparation pour chaque ville, et donc un traçage individuel, est réalisée dans le modèle OLAM. La base de données GRUMPv1.0 (Center for International Earth Science Information Network - CIESIN - Columbia University, International Food Policy Research Institute - IFPRI, The World Bank, and Centro Internacional de Agricultura Tropical - CIAT. 2011. <https://doi.org/10.7927/H4GH9FVG>.) a été utilisée pour définir les limites géographiques utilisées par les traceurs des émissions des 31 villes cibles. Cependant, cette séparation n'est pas adaptée à notre étude car (i) les extensions spatiales des villes ciblées retenues pour les entrées d'OLAM sont souvent plus larges que les images OCO-3 (plus de détail section 5.1.3) et car (ii) la diffusion numérique et la convection sous-maille génèrent des concentrations non-nulles aux environs des panaches ce qui empêche d'avoir une définition précise de l'étendue du panache urbain et donc de calculer précisément la concentration de fond (cf. section 5.3.1). Pour ces deux raisons, nous appliquons une méthode de détection des panaches plutôt que d'utiliser les panaches théoriques (sans influence de grande échelle). Cette approche introduit une erreur supplémentaire par rapport à l'étude sur Paris mais n'impacte en rien le calcul des erreurs totales sur les émissions urbaines.

### **5.1.2 . Génération des pseudo-images**

Les données fournies par CSU nous donne directement le champ de XCO<sub>2</sub> interpolé sur une grille régulière à 1km\*1km de résolution, résolution comparable à celle des SAMs OCO-3 (1.25km\*2.5km, [Eldering et al., 2019]) et celle prévue pour CO2M (2km\*3km, [Sierk et al., 2021]). Cette résolution, fournie par CSU, est légèrement plus fine que la résolution la plus fine de la grille adaptative du modèle, dont la maille la plus petite est un hexagone de 3km de côté. Loin de la ville, les pixels sont plus grands (hexagone jusqu'à 25km de côté). Les données calculées par le modèle sont donc projetées sur cette grille plus fine. Les simulations couvrent un peu plus d'un mois (08/01/2015-09/10/2015) et sont effectuées avec un pas de temps horaire. Pour chaque jour de la période simulée, nous retenons les champs horaires de XCO<sub>2</sub> entre 10h et 17h heure locale pour nos pseudo-images. Cette base de données simulées correspond à un total de 9920 images à 1km\*1km de résolution. L'extension spatiale des pseudo-images est restreinte à un carré de 150km de côté dont les axes suivent les méridiens et les parallèles et dont le centre est le barycentre de la ville correspondante (en terme d'émissions de CO<sub>2</sub>). Cette taille est proche de celle de l'étude sur Paris et est à mi-chemin entre celle des images OCO-3 et celle attendue pour CO2M.

Nous imposons un bruit supplémentaire aux pseudo-données XCO<sub>2</sub> pour représenter les erreurs de mesure, en utilisant un bruit blanc dont l'écart-type est égal à 0.7 ppm. Cette valeur correspond à la précision visée pour une mesure unique de XCO<sub>2</sub> de la mission CO<sub>2</sub>M ([Sierk et al., 2021]), similaire à la précision actuelle des mesures de XCO<sub>2</sub> de OCO-2 (voir [Worden et al., 2017]).

### 5.1.3 . Définition des limites des zones ciblées

Les zones urbaines sont définies par des frontières administratives qui varient en fonction des pays, et qui correspondent à des surfaces de plus de 6000km<sup>2</sup>. Cette valeur correspond aux dimensions d'une image OCO-3 (SAM) pour seulement 14 des 31 villes choisies. Seulement trois d'entre-elles occupent une aire de moins de 40km\*40km (environ 25% d'une SAM). Les villes, d'un point de vue politique, sont donc beaucoup trop étendues pour être ciblées par une SAM. Comme nous pouvons le voir sur la figure 5.1, les villes ont pour la plupart un unique pôle d'émissions (émissions élevées en leur centre, et qui diminuent à mesure qu'on s'approche du bord). Chicago (avec des sources ponctuelles fortement émettrices en périphérie), le bassin du Yangtze (avec un pôle principal et une petite dizaine de pôles secondaires) et Los Angeles (avec des émissions très étalées sans réel pôle) font exception. La plupart des émissions sont donc dans une zone plus restreinte que les limites utilisées dans le modèle OLAM. Nous allons donc redéfinir les limites de ces villes en les restreignant à une zone englobable par une SAM typique.

Nous avons donc, pour chaque ville, redéfini la zone dont les émissions sont estimées par les différentes méthodes d'inversion. Les nouvelles zones ciblées sont largement incluses dans un SAM typique et ont de plus une taille à peu près similaire pour les 31 villes, ce qui facilitera la définition de leurs caractéristiques ainsi que leur comparaison. Pour définir la nouvelle zone cible, nous commençons par fixer son centre au barycentre des émissions dans les limites OLAM de la ville. Nous nous restreignons ensuite à un disque de 2.5\*20km de rayon autour de ce centre en incluant indifféremment les émissions anthropiques de l'inventaire qui appartiennent ou pas à l'aire de la ville OLAM. Au sein de ce disque, nous sélectionnons seulement une fraction (16%) des pixels des pseudo-images XCO<sub>2</sub> les plus émetteurs. Ce chiffre de 16% s'explique par notre choix de travailler avec des zones cibles d'environ  $\pi * 20^2$ km<sup>2</sup>, *i.e.* 16% de la surface du disque de rayon 50km dans lequel l'analyse est réalisée. Afin de former un ensemble cohérent dans l'espace, nous élargissons la zone sélectionnée à tous les pixels à moins de 5km d'un des pixels retenus par cette première sélection. Cet élargissement nous permet d'éviter des découpages complexes de la ville et d'obtenir des groupes de pixels où les émissions sont statistiquement élevées. Les deux dernières étapes incluent (i) la sélection des pixels situés uniquement au-dessus du centre de la ville et (ii) l'ajout des pixels non-catégorisés comme appartenant à la zone cible mais totalement entourés par la zone cible. La zone cible finale couvre une surface d'environ 1300km<sup>2</sup> (aire d'un cercle de 20km de rayon). Dans la suite de ce manuscrit, et par abus de langage, nous appellerons cette zone cible "la ville".

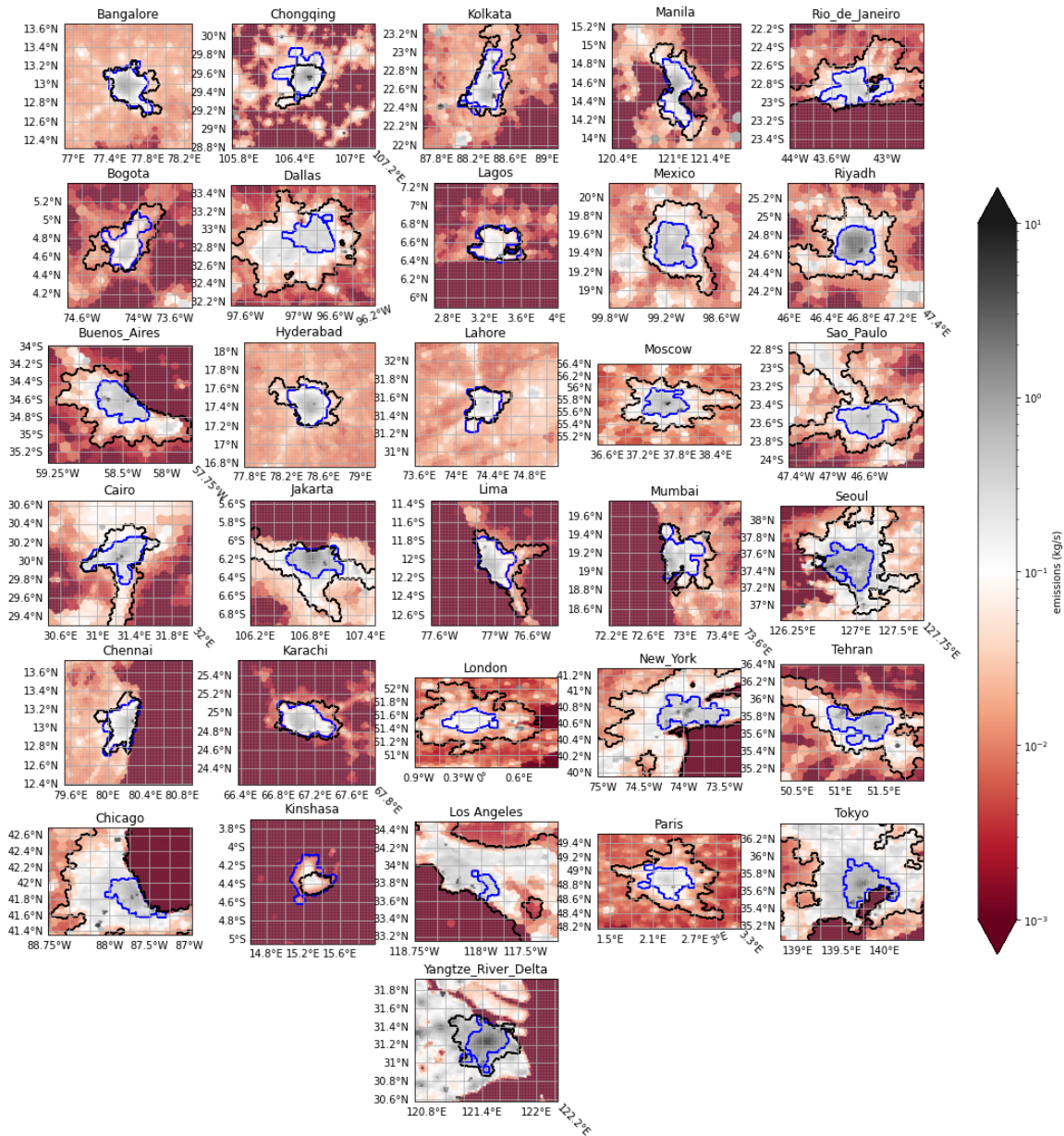


Figure 5.1 – Illustration des limites OLAM des villes et des limites des zones cibles retenues pour les inversions. En noir, la limite OLAM des villes, en bleu les limites des zones que nous ciblons. Le cadre des figures coïncide avec la surface couverte par les pseudo images de 150 km de côté décrites en 5.1.2

## 5.2 . Méthodes d'inversion et d'analyse

### 5.2.1 . Description des méthodes d'inversion

Au cours du chapitre 3, nous avons retenu 4 configurations d'inversion (cf sections 3.2.4.2 et 3.2.4.4), du fait de leurs performances. Ces 4 configurations, qui ont montré des résultats similaires (en termes de précision, d'exactitude mais aussi de sensibilité de l'erreur sur l'estimation des émissions aux conditions d'observations), reposent sur 4 méthodes d'estimation des émissions différentes : Cross-sectional method (CS), Integrated Mass Enhancement method (IME), et deux variantes d'inversion de modèles gaussiens -Gaussian plume model- (GP2 et GP3). L'étude de plusieurs villes permet d'ajouter des variables (topographie, répartition des émissions,...) aux quelles l'erreur sur l'estimation des émissions peut-être sensible. Cette sensibilité peut être différente suivant les méthodes, c'est pourquoi nous souhaitons continuer à utiliser un ensemble de méthodes, et non uniquement l'une d'elle. Pour rappel ces quatre méthodes suivent les mêmes étapes de traitement : (i) définition de la zone ciblée, (ii) définition du panache venant de cette zone ciblée, (iii) estimation de la concentration de fond, (iv) définition de l'axe central du panache, (v) définition de la zone d'analyse, (vi) estimation du vent effectif et (vii) estimation des émissions.

La définition des villes (étape i) se place désormais avant l'étape de définition du panache : en effet, la méthode de détection du panache retenue, basée sur le vent moyen dans la PBL (*wind-based*, cf section 3.2.3.1), nécessite que la zone cible soit définie au préalable, le panache étant défini à partir de la bordure de cette zone. Ici, la définition des zones ciblées est décrite en section 5.1.3. Les étapes (ii), (iii), (iv), (vi), (vii) restent les mêmes que dans le chapitre 3 : le panache est défini en utilisant la direction du vent et les limites de la ville (méthode *wind-based*) ; la concentration de fond est calculée en extrapolant les concentrations en dehors du panache à l'aide d'un noyau gaussien (méthode *bckgl\_gau*) ; l'axe central du panache est défini à l'aide d'un polynôme de degré 5 ; le vent effectif est défini, suivant que la zone d'analyse englobe ou non la ville, en extrayant sur la verticale des analyses météorologiques à disposition le vent tangent à l'axe central du panache (*tangent wind*, utilisé pour CS, IME) ou le vent moyen dans la PBL (mean wind in PBL, pour GP2/3) ; et les émissions sont estimées avec les méthodes CS, IME, GP2 et GP3.

La définition de la zone d'analyse reste la même pour les inversions basées sur CS et IME. Pour celles basées sur GP2 et GP3, nous faisons le choix de faire une zone d'analyse plus rapprochée (et plus petite) que dans le chapitre 3. La nouvelle zone d'analyse est située entre la bordure de la ville ( $\approx 20\text{km}$ ) et 1.5 fois le rayon de la ville ( $\approx 30\text{km}$ ) le long de l'axe central du panache, tandis qu'elle était située entre la bordure de la ville ( $\approx 20\text{km}$ ) et 2 fois le rayon de la ville ( $\approx 40\text{km}$ ) le long de l'axe central du panache dans le chapitre 3. Nous n'avons pas testé cette option pour la zone d'analyse dans le chapitre 3. Cependant nos conclusions sur la sensibilité des inversions à la zone d'analyse indiquent dans le chapitre 3 que plus la zone d'analyse est proche de la ville, meilleure est l'estimation (cf section 3.2.4.2).

La méthode de définition du panache a été légèrement adaptée par rapport au chapitre 3. La zone d'émission ciblée pour Paris dans le chapitre 3 (*core urban area*) était quasiment un disque de rayon 20km, ce qui nous a permis de définir le panache comme le disque de 20km centré sur le centre de Paris et la zone sous le vent de ce disque, en utilisant le vent moyen dans la PBL. Or, la plupart des villes ont ici des formes moins circulaires (cf figure 5.1), ce qui nécessite une adaptation de la définition du panache, ne pouvant plus assimiler la ville à un disque. Le panache est donc défini comme les pixels directement au-dessus de la ville (et non plus dans un cercle de rayon le rayon approximatif de la ville) et les pixels sous le vent des pixels directement au-dessus de la ville, toujours en utilisant le vent moyen dans la PBL.

### 5.2.2 . Principe général de l'analyse des sensibilités aux conditions d'observations

Les variables prédictibles dans un premier temps, et diagnostiques dans un deuxième temps, sont analysées de la même manière. La description de l'analyse ci-dessous est donc appliquée à chacun des 2 groupes de variables.

Tout d'abord, nous inspectons séparément la relation entre chaque variable du groupe choisi (prédictible ou diagnostique) et l'erreur sur l'estimation des émissions. Cette analyse préliminaire permet d'avoir un premier aperçu

des variables auxquelles l'erreur est sensible. Après cette première étape, nous analysons de manière synthétique les relations entre les variables et l'erreur pour identifier la ou les deux variables auxquelles l'erreur est la plus sensible. Cette identification est faite à l'aide d'un arbre de décision, dont la profondeur fixe le nombre de variables identifiées. Celui-ci définit directement des seuils sur ces variables, seuils qui sont utilisés pour l'acceptation/rejet des pseudo-images. Ces variables identifiées, ainsi que leurs seuils respectifs, peuvent être utilisés pour indiquer le niveau d'erreur d'une estimation obtenue lors d'une inversion.

### 5.2.2.1 . Analyse préliminaire

Pour inspecter la sensibilité de l'erreur sur l'estimation des émissions à une variable météorologique, diagnostiquée par le traitement des images ou diagnostiquée par l'inversion, nous ordonnons nos pseudo-images suivant les valeurs prises par cette variable d'intérêt. Pour l'analyse avec les variables prédictibles (respectivement diagnostiques), nous séparons notre ensemble de 9920 pseudo-images (resp.  $\approx 4259$ , cf 5.3.4) ainsi ordonné en sous-ensembles de 496 (resp. 213) pseudo-images (5% du nombre total). Par exemple, si la variable d'intérêt est le vent moyen dans la PBL (*i.e.* une variable prédictible), le premier sous-ensemble sera composé des 496 pseudo-images correspondant aux 496 plus petites valeurs du vent moyen dans la PBL, le deuxième sous-ensemble sera composée des 496 images correspondant aux valeurs du vent moyen dans la PBL classées entre la 497<sup>ème</sup> et la 992<sup>ème</sup> position, etc... jusqu'au dernier sous-ensemble qui sera constitué des 496 pseudo-images correspondant aux 496 plus grandes valeurs du vent moyen dans la PBL. Nous traçons ensuite la distribution de l'erreur pour ces sous-ensembles en fonction de leur rang pour voir si une tendance se dégage (voir figure 5.5 pour exemple).

Les simulations que nous utilisons reposent sur un inventaire des émissions anthropiques sans variations temporelles. En conséquence, les variables liées aux émissions et à la forme ou à l'environnement topographique de la ville n'ont pas de variabilité temporelle et ne prennent donc que 31 valeurs. Notre étude de la sensibilité de l'erreur à ces variables repose donc directement sur l'analyse de la distribution de l'erreur en fonction de la valeur prise par la variable d'intérêt.

### 5.2.2.2 . Analyse avec l'algorithme d'apprentissage par arbre de décision

Nous appliquons maintenant une méthode d'apprentissage par arbre de décision pour définir des seuils d'acceptation/rejet des pseudo-images en fonction de ces variables analysées. Nous allons d'abord décrire ce qu'est un arbre de décision avant de présenter ce qu'est une méthode d'apprentissage par arbre de décision et finalement décrire comment nous l'utilisons.

**Description d'un arbre de décision** Un arbre de décision est un algorithme d'aide à la décision qui permet de répartir une population d'individus en groupes homogènes selon un ensemble de variables discriminantes. Dans notre cas, nous cherchons à répartir les pseudo-images selon la précision de l'estimation des émissions en utilisant les variables prédictibles (ou diagnostiques, suivant l'analyse). Un individu est donc pour nous une pseudo-image avec les valeurs prises par les variables prédictibles/diagnostiques pour cette observation. Les variables discriminantes sont l'objet de cette analyse et la méthode utilisée pour les déterminer est décrite dans le paragraphe suivant. Le fonctionnement d'un arbre de décision est illustré figure 5.2. Les décisions (ellipses oranges) et les conditions (rectangles roses) sont les *nœuds* de l'arbre. La première condition, par laquelle on rentre dans l'arbre, est appelée *nœud racine* ; les nœuds terminaux (les décisions, représentées par des ellipses oranges) sont les *feuilles* de l'arbre. Les nœuds qui ne sont pas des feuilles sont appelés *nœuds internes*. Le chemin suivi par un individu (*i.e.* les conditions qui ont été testées pour cet individu) pour arriver à une feuille est appelée *chemin de décision*. La longueur d'un chemin de décision est égal au nombre de conditions testées lors de ce chemin (*i.e.* nombre de nœuds internes traversés). La profondeur de l'arbre est la longueur du plus long chemin de décision.

Nous faisons le choix de classifier nos pseudo-images avec un arbre de décision plutôt qu'une autre méthode plus

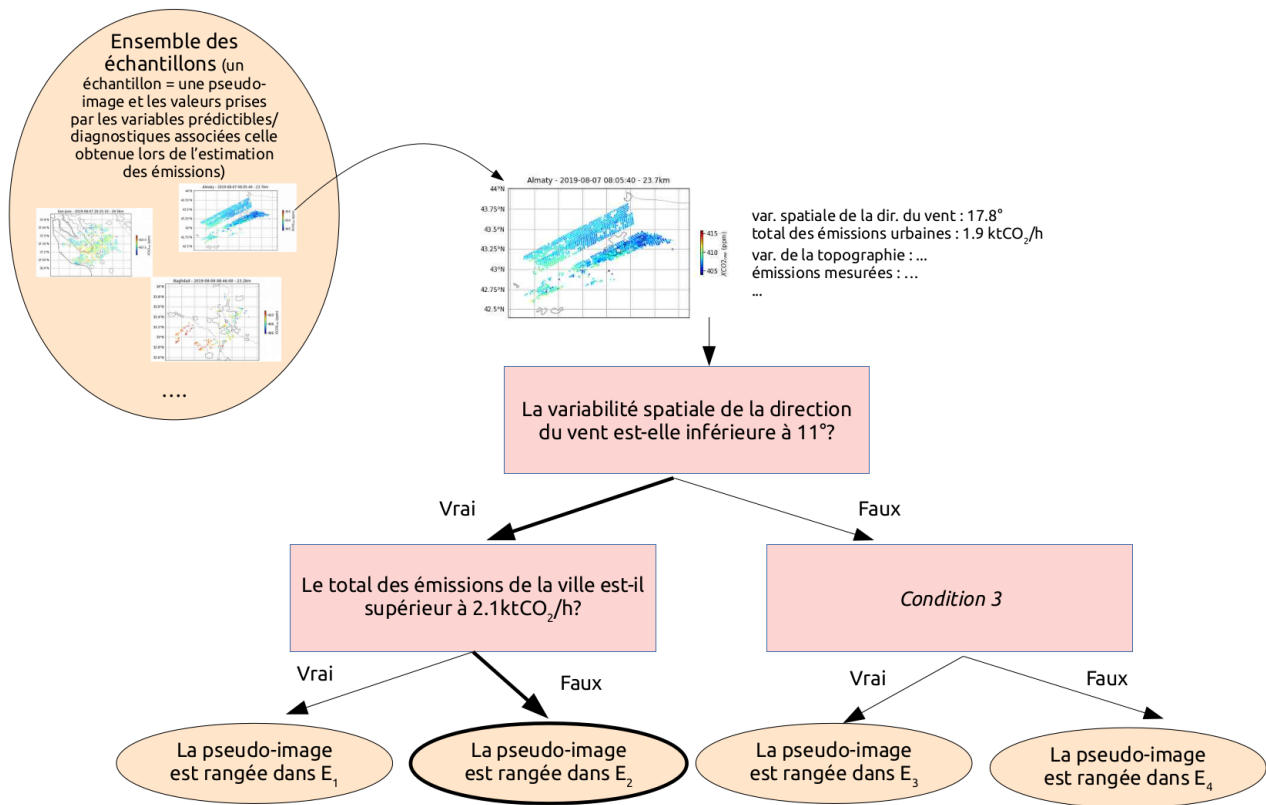


Figure 5.2 – Illustration du fonctionnement d'un arbre de décision. La pseudo-image en entrée va suivre le chemin de décision en gras et sera classé dans la feuille en gras.

complexe, comme par exemple un partitionnement en *k-moyennes*<sup>1</sup> (plus connu sous le nom anglais *K-means*), pour la facilité de sa représentation et de sa compréhension, le but étant de définir des critères aisément utilisables.

**Description de l'algorithme d'apprentissage par arbre de décision** Pour déterminer notre arbre de décision, nous utilisons un algorithme d'apprentissage par arbre de décision, qui est une méthode d'apprentissage dit supervisé. L'arbre est construit selon un processus récursif : à la première étape, l'algorithme va séparer l'ensemble (au nœud racine) en deux sous-ensembles (qui vont être les *nœuds fils* du *nœud racine*) en utilisant une valeur seuil pour une des variables d'intérêt, de manière à minimiser une fonction de coût ; l'algorithme va en suite séparer les 2 sous-ensembles (les 2 *nœuds fils* du *nœud racine*) selon le même processus, et ainsi de suite. La récursion s'achève quand la profondeur maximale fixée par l'utilisateur est atteinte ou quand tout les sous-ensembles ont la même valeur de la variable cible, ou quand la séparation n'améliore plus le résultat de la fonction de coût. L'algorithme est un algorithme glouton : pour déterminer la variable d'intérêt utilisé pour la séparation et son seuil, il teste toutes les valeurs de toutes les variables. Les variables d'intérêt sont, dans notre cas, les variables prédictibles dans un premier temps, et les variables diagnostiques dans un second temps. La variable cible est la valeur absolue de l'erreur relative sur l'estimation des émissions. La profondeur maximale de l'arbre est fixée à 2 et nous imposons que les feuilles doivent au minimum contenir 10% de l'ensemble de départ. L'ensemble de départ (au *nœud racine*) est décrit dans le paragraphe suivant.

1. <https://fr.wikipedia.org/wiki/K-moyennes>

**Description de notre méthode pour déterminer les critères de décision** Une approche simple est d'utiliser l'ensemble total des pseudo-images (9920 pseudo images dans le cas de l'analyse des variables prédictibles,  $\approx 4259$  pseudo-images dans le cas des variables diagnostiques) comme ensemble d'entrée de la méthode d'apprentissage. Nous obtenons ainsi au plus 4 sous-ensembles et sélectionnons celui avec la plus petite erreur moyenne absolue *Mean-absolute-Error* (MAE) sur l'estimation des émissions. Ce sous-ensemble est considéré comme le sous-ensemble des pseudo-images "faciles à inverser" et le reste des pseudo-images comme celles "difficiles à inverser". Nous étudions alors la distribution de l'erreur pour cet ensemble ainsi que de la paire de critères ayant amené cette partition. En faisant cela, nous n'avons pas d'informations sur la stabilité des critères et des seuils vis-à-vis de l'ensemble de départ. Ceci est problématique, d'autant plus que les caractéristiques des villes ne peuvent prendre que 31 valeurs pour les 9920 images, ce qui rend le risque de surapprentissage non négligeable.

Pour pallier à ce problème et avoir un aperçu de la stabilité des critères, nous créons 100 échantillons composés chacun de 10% de notre ensemble total de pseudo-images. Nous appliquons l'algorithme d'apprentissage à chacun des 100 échantillons. Nous regardons les sous-ensembles correspondant à chaque feuille et sélectionnons celui avec la plus petite MAE. Le chemin de décision ayant mené à cette feuille nous donne la paire de critère que nous retenons. Nous avons ainsi 100 paires de critères. Nous analysons la redondance des critères à travers cette centaine de paires et la stabilité des valeurs seuils de la paire ayant la plus forte occurrence. Les différentes valeurs seuils trouvées pour la paire avec la plus forte occurrence sont appliquées pour classer notre ensemble total de pseudo-images en sous-ensemble de pseudo-images "facile à inverser", et les distributions de ces sous-ensembles de pseudo-images "faciles à inverser" sont étudiées pour déterminer la précision des valeurs seuils des critères.

### 5.2.3 . Liste des variables

La liste des variables est indiquée (avec la manière dont elle sont calculées) dans la table 5.1. Nous testons donc 15 variables prédictibles et entre 6 et 10 variables diagnostiques, suivant la configuration d'inversion.

Les variables prédictibles rassemblent donc les caractéristiques des villes, caractéristiques spatiales ou basées sur leurs émissions, et les conditions météorologiques, avec des variables caractérisant principalement le champ de vent. Les valeurs utilisés pour ces variables prédictibles sont ici leurs réelles valeurs dans le modèle. Quand nous utiliserons des pseudo-images, ces valeurs ne seront plus que des estimations, donc erronées. Cela est à garder en tête lors de nos évaluations, les seuils définis section 5.3.4 seront en effet comparés à des estimations approximatives, ce qui peut résulter dans des erreurs de classification.

Les variables diagnostiques rassemblent une variable diagnostique sur l'image et des variables diagnostiques sur l'inversion. Contrairement aux variables prédictibles, les valeurs calculées en données réelles ne sont pas des estimations et nous n'aurons donc pas d'erreur de classification due à cela. Cependant, les valeurs prises par les variables n'ont pas forcément la même distribution dans cette étude théorique que dans les conditions réelles. Par exemple, la distribution que nous utilisons pour simuler le bruit de mesure dans nos simulations est bien plus simple que dans la réalité (cf section 3.2.5.3). Ce problème de représentativité est là aussi à garder en tête lors de nos évaluations.

## 5.3 . Résultats

### 5.3.1 . Problème lié à l'extension spatiale des panaches et abandon de l'analyse des composantes de l'erreur

Cette section documente les analyses préliminaires que nous avons réalisées sur les champs de  $XCO_2$  de OLAM, quand nous espérons travailler, au départ, avec les définitions des villes de OLAM et leurs traceurs associés. Cette approche était identique à celle utilisée sur Paris (même décomposition d'erreur) décrite dans le chapitre 3. Les résultats présentés ici expliquent l'absence d'une décomposition de l'erreur (erreurs liées à l'erreur sur l'estimation de la concentration de fond, sur l'estimation du vent effectif, sur la définition des limites du panache,..) et expliquent



groupe d'analyse	nom	expression	type	
variables prédictibles	vent moyen dans la PBL	$\frac{\sum_{PBL} \vec{W} * dP_{air}}{\sum_{PBL} dP_{air}}$	conditions météorologiques	
	variabilité spatiale de la vitesse du vent	$\sigma(\ \vec{W}\ )_{PBL}$		
	variabilité spatiale de la direction du vent	$\sigma(\theta_{\vec{W}})_{PBL}$		
	hauteur de la PBL	$\langle z_{PBL}^{a.g.l} \rangle_{pseudo-image}$		
	divergence moyenne du vent 2D	$\langle \frac{\partial u^{2D}}{\partial x} + \frac{\partial v^{2D}}{\partial y} \rangle_{pseudo-image}$		
	vorticité moyenne du vent 2D	$\langle \frac{\partial v^{2D}}{\partial x} - \frac{\partial u^{2D}}{\partial y} \rangle_{pseudo-image}$		
	stress moyen du vent 2D	$\langle \frac{\partial u^{2D}}{\partial x} - \frac{\partial v^{2D}}{\partial y} \rangle_{pseudo-image}$		
	cisaillement moyenne du vent 2D	$\langle \frac{\partial v^{2D}}{\partial x} + \frac{\partial u^{2D}}{\partial y} \rangle_{pseudo-image}$		
	<i>petit axe</i> de l'ellipse englobant la ville	ellipse défini avec la librairie <i>opencv</i>		caractéristiques de la ville (ne prennent que 31 valeurs distinctes)
<i>grand axe</i> de l'ellipse englobant la ville				
variance des émissions dans la ville	$\sigma(\text{émiss})_{ville}$			
aire de la ville	$A_{ville} = \sum_{ville} 1$			
densité des émissions	$\sum_{ville} \text{émiss} / A_{ville}$			
variabilité topographique de la ville	$q_{90}(z_{surf}^{a.s.l}(x,y))_{\sqrt{x^2+y^2} < 50km} - q_{10}(z_{surf}^{a.s.l}(x,y))_{\sqrt{x^2+y^2} < 50km}$			
bilan d'émission	$\sum_{ville} \text{émiss}$			
variables diagnostiques	variabilité spatiale de la concentration XCO <sub>2</sub>	$\sigma(XCO_2^{obs})_{pseudo-image}$	diagnostique de l'image	
	vent utilisé	$\ \vec{W}_{eff}\ $	diagnostiques de l'inversion	
	erreur d'optimisation (GP2/3)	$\sqrt{\langle (\delta\Omega^{modèle} - \delta\Omega^{obs})^2 \rangle_{panache} / \langle \delta\Omega^{obs} \rangle_{panache}}$		
	paramètre de Pasquill optimisé (GP2/3)	/		
	rayon de la ville optimisé (GP2/3)	/		
	direction du panache optimisée (GP2)	/		
	taille du panache	$\sum_{panache} 1$		
	rapport signal sur fond estimé	$\frac{\langle XCO_2^{obs} - XCO_2^{bckg,calc} \rangle_{a.z.}}{\sigma(XCO_2^{obs})_{panache}}$		
	variabilité spatiale de la concentration XCO <sub>2</sub> hors du panache	$\sigma(XCO_2^{obs})_{panache}$		
courbure de l'axe central du panache	distance moyenne entre les centres des sections transverses et l'axe central linéaire du panache (cf section 3.2.3.5)			

Table 5.1 – Liste des variables d'intérêt réparties par groupe d'analyse et type. Les opérateurs  $\langle X \rangle_E$ ,  $\sigma(X)_E$ ,  $q_{90}(X)_E$  et  $q_{10}(X)_E$  désignent respectivement la moyenne, la déviation standard, le 9<sup>ème</sup> décile et le 1<sup>er</sup> décile de la variable  $X$  sur l'ensemble  $E$ . Les ensembles *a.z.*, *panache*, *panache*, *ville* et *pseudo-image* désignent respectivement l'ensemble des pixels dans la zone d'analyse, dans le panache, hors du panache, au-dessus de la ville et tous les pixels de la pseudo-image. Le repère utilisé pour le calcul de la divergence, la vorticité, le stress, le cisaillement du vent et la variabilité topographique est le repère orthogonal de centre le centre de la ville avec pour axe horizontal la direction du vent moyen dans la PBL.  $\vec{W}^{2D} = (u^{2D} \ v^{2D})^T$  est calculé comme la moyenne vertical du vent dans la PBL, pondéré par la masse d'air sèche.

l'approche choisie qui nous oblige à redéfinir les limites des villes, au delà du problème de l'extension spatiale décrit en section 5.1.3.

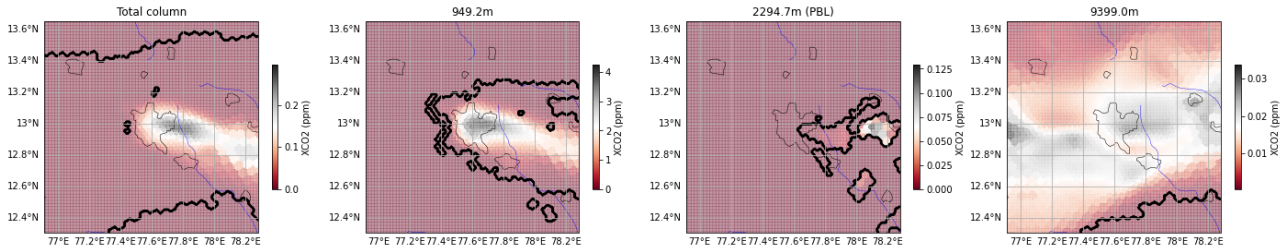


Figure 5.3 – Concentrations moyennes de CO<sub>2</sub> associées aux émissions de Bangalore sur des colonnes partielles le 3/08/2019 à 10h au-dessus de la ville tel que simulé par OLAM (a) sur toute la colonne (XCO<sub>2</sub>), (b) à 0.9km, (c) à 2.3km (niveau de la PBL) et (d) à 9.4km. Le trait noir délimite le signal supérieur à 10<sup>-3</sup>ppm. L'image a été choisie car représentant une situation où le panache rée de la ville telle que définie dans les simulations OLAM englobe un signal diffus en amont de la ville.

Avec la simulation des champs de XCO<sub>2</sub> par OLAM, nous rencontrons un problème quand nous voulons définir le panache de la ville. Les concentrations en XCO<sub>2</sub> obtenues avec le traceur des émissions de la ville occupent une grande partie de l'image, et sont parfois non nulles en amont de la ville par rapport au vent, sans que l'on puisse toujours relier cela à un vent ayant tourné dans les heures précédentes. La raison principale est liée au schéma de convection aux endroits où la résolution du modèle change : des courants ascendants injectent, parfois de manière anormale, du CO<sub>2</sub> en haute troposphère et y font parvenir rapidement (quelques heures après le début de la simulation) du CO<sub>2</sub> émis par la ville (cf exemple figure 5.3). Dans le cas montré en exemple, cette anomalie dans le transport injecte du CO<sub>2</sub> de la PBL jusqu'à la haute troposphère (autour du point 78.1°E, 13°N), et ce CO<sub>2</sub> est ensuite advecté horizontalement au-dessus de la ville. Ce phénomène s'amplifie avec le temps, au fur et à mesure que le CO<sub>2</sub> est injecté en haute troposphère par convection. Pour la plupart des villes, la taille des panaches détectés augmente avec le temps (corrélation médiane entre la taille du vrai panache et le temps de 30%, min de -58%, max de 91.1%). 8 villes ('Cairo', 'Jakarta', 'Buenos\_Aires', 'Paris', 'Lagos', 'Chicago', 'Tokyo', 'Mexico\_City') sur les 32 montrent une corrélation négative. 20 ont une corrélation supérieure à 10%.

Ce signal dans la haute troposphère n'est pas forcément réaliste et augmente l'étendue du panache détecté. Celui-ci peut occuper plus de la moitié de l'image, l'estimation de la concentration de fond et du vent effectif est alors impossible quand nous supposons les limites du panaches connues. La définition d'un vrai panache, dont les limites seraient cohérentes avec le vent dans la PBL, et basée sur l'analyse du traceur des émissions de la ville telle que définie dans OLAM, n'est alors plus faisable. Le filtrage par des valeurs seuils ne permet pas non plus d'améliorer nos statistiques.

Ce problème de définition du panache n'affecte cependant pas l'analyse conduite ici (*i.e.* une analyse sans décomposition d'erreur), la masse étant injectée le plus souvent loin de la ville et des zones d'analyses. Il ne remet donc pas en cause l'utilisation des simulations OLAM pour cette étude, mais nous oblige cependant à traiter les champs simulés comme des cas réels (*i.e.* un champ 2D de XCO<sub>2</sub>) dans lequel nous identifions chaque composante (panache de la ville, background, hauteur,...).

### 5.3.2 . Résultats généraux et comparaison des méthodes d'inversions

Dans cette section nous comparons les résultats d'estimation d'émissions obtenus avec les 4 méthodes présentées dans la partie 5.2.1.

Au premier abord, la distribution de l'erreur sur l'estimation des émissions semble moins biaisée pour CS et IME (biais inférieur à 10%) que pour GP2 et GP3 (biais entre -13 et -16%). Les IQRs des distributions de l'erreur sont cependant plus grands pour CS et IME (90-91%) que pour GP2 et GP3 (78-86%). Quand nous appliquons le filtrage

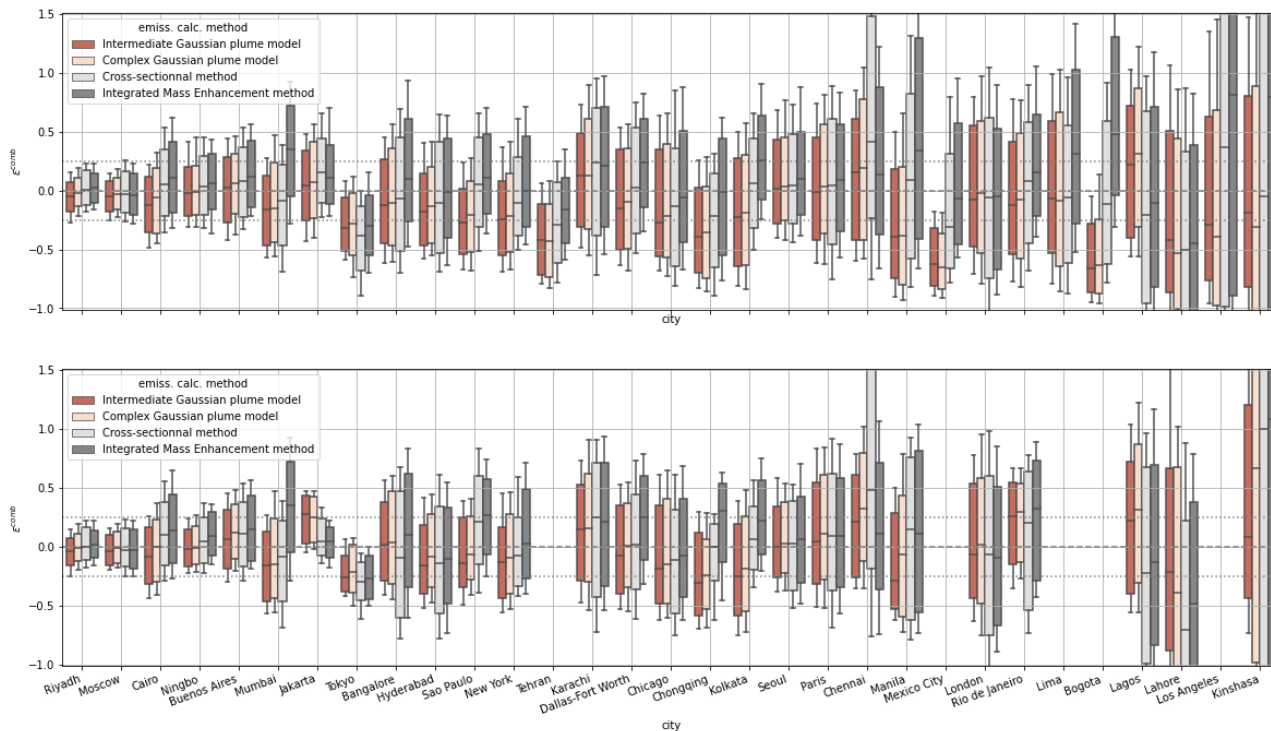


Figure 5.4 – Distribution de l'erreur sur l'estimation des émissions pour les différentes villes avec chaque méthodes d'inversion sans (haut) et avec (bas) l'application du filtrage des pseudo-images avec une forte variabilité spatiale de la direction du vent tel que définit dans l'étude sur Paris.

des pseudo-images basé sur la variabilité spatiale de la direction du vent défini dans l'article sur Paris (*i.e.* en gardant les pseudo-images pour lesquelles la variabilité spatiale de la direction du vent est inférieure à  $7^\circ$ ), la sous-estimation des émissions par les méthodes GP2 et GP3 disparaît : les distributions d'erreur ont un biais entre -5 et 7% pour les inversions basées sur GP2 et GP3, tout comme pour celles basées sur CS et IME. L'IQR des distributions diminue aussi : il est de 75-76% pour les inversions basées sur CS et IME et entre 64 et 67% pour celles basées sur GP2 et GP3. Après filtrage, il nous reste 53% des images. Comparé à l'étude sur Paris, le filtrage nous fait perdre un peu plus de données mais nous donne un plus petit IQR : entre 64 et 76% des émissions ici, 74 et 89% dans le chapitre 3. Les inversions basées sur les modèles gaussiens semblent par ailleurs légèrement meilleures (car donnant de plus faibles IQRs) que celles basées sur CS et IME.

Malgré le filtrage des simulations avec une grande variabilité spatiale de la direction du vent, l'erreur relative sur les émissions montre de fortes disparités entre les villes, quelque soit la méthode d'inversion utilisée. Pour certaines villes (Bogota, Los-Angeles, Mexico), aucune image ne passe le critère de discrimination associé à la variabilité du vent. Parmi les villes restantes, les différences restent importantes : l'erreur pour Riyadh (ville avec la plus petite *Mean-Absolute-Error* -MAE- sur les estimations des émissions) a un biais de -6% et un IQR de 24% avec la méthode GP2, alors que nous avons un biais de -28% et un IQR de 147% pour Lahore avec la méthode GP2 (ville avec la plus grande MAE sur les estimations des émissions). Cela confirme que, bien que le critère défini dans l'article sur Paris soit pertinent, il ne semble pas suffisant pour sélectionner les pseudo-images et que d'autres variables semblent importantes pour discriminer les pseudo-images et les résultats d'inversion. La forte disparité entre les villes laisse présager que des variables liées à la ville (que ce soit aux émissions, à la topographie ou aux conditions atmosphériques particulière à celle-ci) jouent aussi un rôle dans l'erreur sur l'estimation de émissions.

### 5.3.3 . Analyse préliminaire des sensibilités de l'erreur aux conditions d'observation

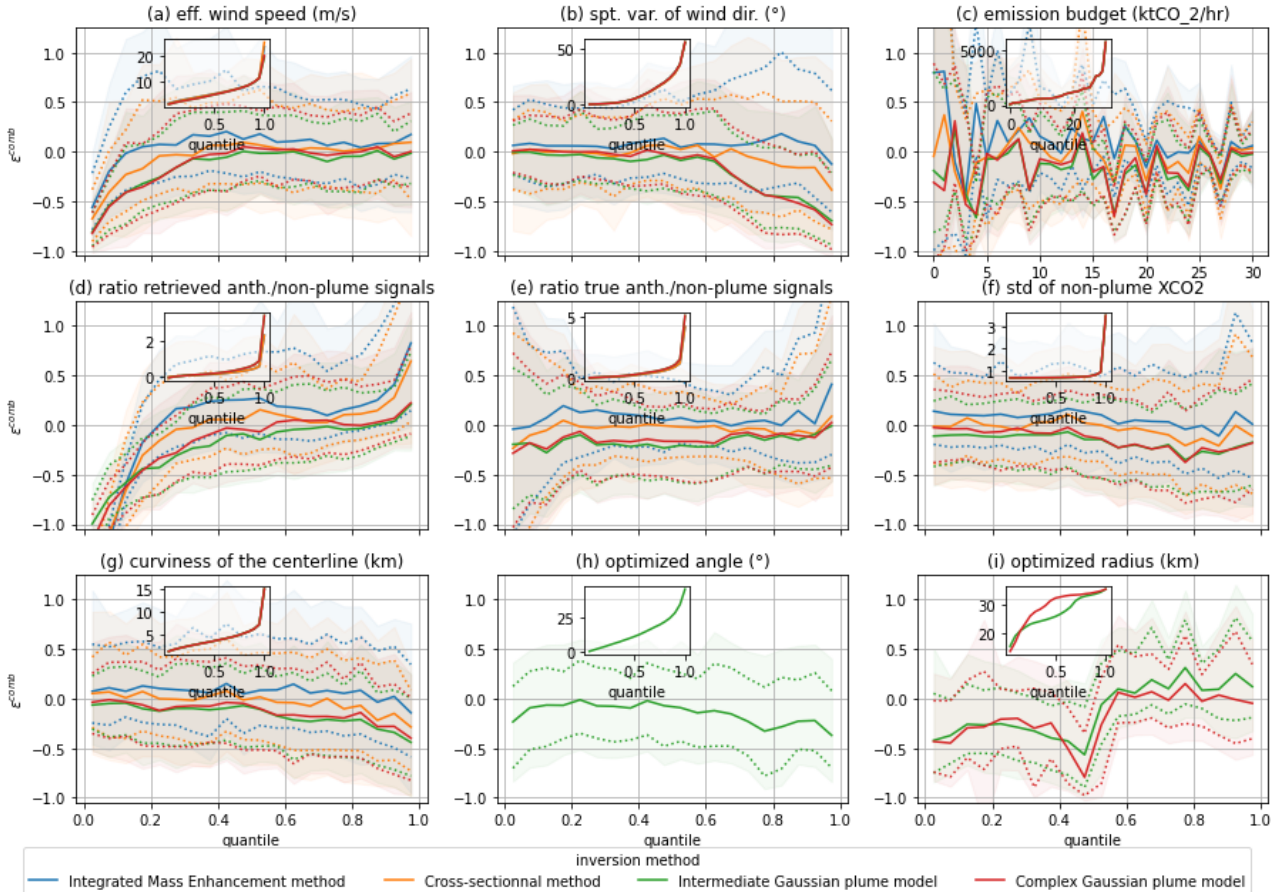


Figure 5.5 – Distribution de l'erreur sur l'estimation des émissions en fonction de différentes variables d'intérêt.

Comme dans l'étude sur Paris, les émissions sont fortement sous-estimées quand le vent est faible ou quand la variabilité spatiale de la direction du vent est forte (cf figure 5.5 (a) et (b)). Ces 2 variables sont ici aussi fortement corrélées (corrélation spearman de -0.75). La remarque faite dans l'étude sur Paris reste donc valable : les résultats sont plus précis (biais et IQR plus faibles) lorsque les conditions météorologiques favorisent la ventilation du CO<sub>2</sub> émis dans un panache peu diffus et rectiligne, c'est-à-dire avec une vitesse de vent élevée et une faible variabilité de la direction du vent ; mais lorsque le CO<sub>2</sub> émis s'accumule au-dessus et au voisinage de la ville en un panache diffus avec des valeurs élevées de XCO<sub>2</sub> ou forme un panache avec une structure complexe, les résultats comportent des erreurs significatives.

La figure 5.5 (c) montre une sensibilité de l'erreur sur l'estimation des émissions au bilan d'émission réel. Malgré un bruit important, nous pouvons voir que l'IQR de l'erreur diminue quand les émissions augmentent. Les villes avec de fortes émissions ont un panache se détachant plus fortement du signal de fond et permettent une estimation des émissions plus précise.

La sensibilité de l'erreur au rapport entre la moyenne du signal anthropique et la variabilité du signal de fond est illustré figure 5.5 (d) pour le signal anthropique estimé et (e) pour le signal anthropique réel. Ce rapport signal-fond réel est proche de celui utilisé par [Schuh et al., 2021]. Les sensibilités de l'erreur à ces 2 rapports sont très similaires quand ce rapport est élevé, c'est-à-dire quand le signal venant de la ville se démarque le plus fortement

de la variabilité du signal de fond. Dans ce cas, le signal anthropique estimé est proche du signal anthropique réel. Les sensibilités de l'erreur à ces 2 rapports sont toutefois très différentes quand ces rapports sont faibles. Ceci peut s'expliquer par des raisons différentes engendrant ces faibles rapports. Pour le rapport signal-fond estimé, des limites de panache mal définies entraînent une surestimation du signal de fond et donc un signal anthropique estimé faible et une sous-estimation des émissions. Pour le rapport signal-fond réel, des émissions faibles entraînent un signal anthropique faible, difficilement discernable, et donc une plus grande incertitude dans l'estimation des émissions.

La sensibilité de l'erreur sur l'estimation des émissions à la variabilité du signal de fond est moins forte que lors de l'étude du chapitre 3. Nous observons tout de même que l'IQR de cette erreur augmente avec cette variabilité (cf figure 5.5 (g)). L'erreur sur l'estimation des émissions semble bien plus sensible aux rapports signal-fond (estimé comme réel). L'étude du chapitre 3 ne permettait pas de voir cela, les émissions dans ce cas (et donc l'amplitude du signal) montrant moins de variabilité comme nos pseudo-images ne couvraient qu'une ville.

Pour les inversions basées sur GP2, l'erreur sur l'estimation des émissions est sensible aussi à la différence entre l'angle optimisé lors de l'inversion et la direction du vent moyen dans la PBL. Au delà d'une vingtaine de degrés de différence, les émissions sont sous-estimées (cf figure 5.5 (h)). De même, quand l'axe central du panache est fortement courbé, nous avons une sous-estimation des émissions (cf 5.5 (g)).

Enfin, l'erreur sur l'estimation des émissions est très sensible au rayon de la ville optimisé lors de l'inversion pour les inversions basées sur un panache gaussien (GP2 et GP3, cf figure 5.5 (i)). Cependant, quand nous appliquons le filtrage des pseudo-images basé sur la variabilité spatiale de la direction du vent défini au chapitre 3, cette sensibilité disparaît presque totalement. Quand la variabilité spatiale de la direction du vent est grande, un dôme, ou tout au moins un panache très diffus, se forme au dessus de la ville et perturbe l'optimisation du rayon de la ville.

L'erreur sur l'estimation des émissions montre donc des sensibilités à plusieurs variables, dont certaines sont corrélées. Ces sensibilités peuvent être complexes et il est difficile à ce stade de déterminer sur la base de ces sensibilités lesquelles des variables sont les plus discriminantes, et donc de définir les critères de discrimination des pseudo-images les plus optimaux.

### **5.3.4 . Application de la méthode par arbres de décision aux inversions obtenues avec GP2..**

Nous nous concentrons tout d'abord sur les résultat des inversions avec la méthode GP2, dont l'erreur sur l'estimation des émissions à le plus faible IQR (78% des émissions, >85% pour les inversions avec les autres méthodes).

#### **5.3.4.1 . .. pour les variables prédictibles**

Nous utilisons les résultats de l'inversion des 9920 pseudo-images avec la méthode GP2 pour cette première analyse avec la méthode d'apprentissage par arbres de décision.

Nous nous intéressons ici aux critères de discrimination donnés par notre méthode d'apprentissage avec les 100 échantillons différents, comme décrit dans la section 5.2.2.2. Pour 82 des 100 échantillons, la paire de critères est basée sur la variabilité spatiale de la direction du vent et le bilan d'émission. Pour les 18 autres échantillons, la variabilité de la direction du vent apparaît 9 fois dans la paire de critère et le bilan d'émission 7. Les autres variables apparaissant dans les paires de critères des 18 échantillons sont la variabilité spatial des émissions dans la ville (5 occurrences), la variabilité spatiale de la direction du vent (4 occurrences), la hauteur moyenne de la PBL (2 occurrences) et la longueur du petit axe de l'ellipse (2 occurrences). Pour 6 échantillons, la paire de critères est en fait un singleton. La variabilité spatiale de la direction du vent et les émissions au sein de la ville se démarquent donc très fortement.

Nous allons maintenant étudier en détail les valeurs de seuil prises par la variabilité spatiale de la direction du vent et le bilan d'émissions de la ville pour ces 82 paires de critères. La distribution du seuil sur la variabilité spatiale de la direction du vent est caractérisée par une médiane de  $12^\circ$  et un IQR de  $5^\circ$  (cf 5.6). 10% des inversions se trouvent entre les bornes formées par les quartiles de cette distribution ( $9^\circ$  et  $14^\circ$ ). La distribution du bilan d'émissions est caractérisé par une médiane de  $2.1\text{ktCO}_2/\text{h}=4.8\text{MtC}/\text{yr}$  et un IQR de  $0.7\text{ktCO}_2/\text{h}$ . 22% des situations se trouvent entre les bornes formées par les quartiles de cette distribution ( $2.6\text{ktCO}_2/\text{h}$  et  $1.9\text{ktCO}_2/\text{h}$ ). Les distribution des

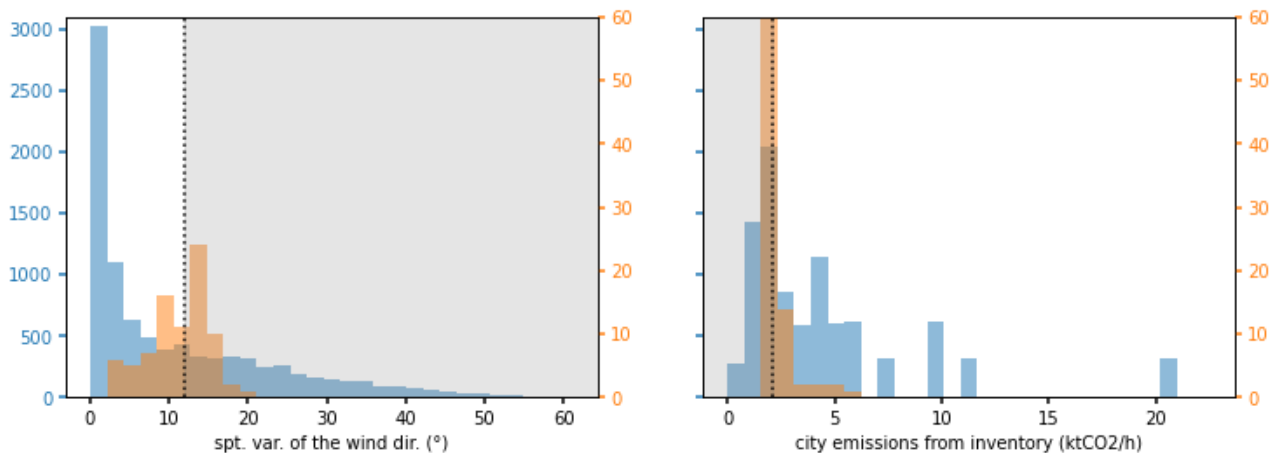


Figure 5.6 – Distributions de la variabilité spatiale de la direction du vent (gauche) et des émissions de la ville (droite). En orange la distribution est celle des valeurs du critère et en bleue celle des simulations. La ligne noire indique le seuil médian trouvé et la zone grisée le sous-ensemble écarté.

critères sont donc étalées. Les sous-ensembles qui en ressortent sont homogènes du point de vue de la médiane de la distribution de l'erreur (-7% [-6%, -8%]) et de l'IQR (55% [52%, 58%]). Cela est moins le cas du point de vue de la taille (45% [36%, 52%]) des pseudo-images selon les arbres de décision). A titre de comparaison, d'autres études comme [Wang et al., 2019] ou [Lespinas et al., 2020] ont trouvé des seuils plus bas (respectivement 2MtC/an et 0.5MtC/an) conduisant à des estimations plus précises (incertitudes de moins de 20%). Mais ces études, qui suivent toutes les 2 le même formalisme, incluent moins de sources d'erreurs, ce qui explique notre seuil et notre incertitude plus élevés.

Nous prenons comme seuil pour ces 2 critères les médianes de leurs distributions. Le sous-ensemble formé par les pseudo-images respectant ces deux critères est caractérisé par une erreur médiane des émissions estimées de -7% des émissions de la ville, un IQR de 56% et comprend 47% des pseudo-images. Le sous-ensemble formé par les pseudo-images ne respectant pas ces deux critères est caractérisé par une erreur médiane des émissions estimées de -31% des émissions de la ville, un IQR de 99% et comprend 53% des pseudo-images. Les critères permettent donc bien d'isoler les pseudo-images qui se prêtent le mieux à l'inversion, les pseudo-images ne passant pas les critères donnant en effet des estimations fortement biaisées.

Le critère de discrimination basé sur la variabilité spatiale de la direction du vent permet de réduire le biais et l'IQR de l'erreur, quand celui basé sur le bilan d'émissions permet de réduire l'IQR de l'erreur. En effet en appliquant uniquement le critère de discrimination basé sur la variabilité spatiale de la direction du vent, nous obtenons pour le sous-ensemble passant le critère un biais de l'erreur de -5% et un IQR de 68% (-31% et 99% respectivement pour les pseudo-images ne passant pas le critère). Appliquer uniquement le critère de discrimination basé sur le bilan d'émissions nous donne, pour le sous-ensemble des pseudo-images passant le critère, un biais de -16% et l'IQR de 66% (-17% et 110% respectivement pour les pseudo-images ne passant pas le critère). Ainsi le critère basé sur la variabilité spatiale de la direction du vent est un critère de sélection (les pseudo-images ne le passant pas sont jugées inutilisables), et le critère basé sur le bilan d'émissions est un critère de discrimination (les pseudo-images ne le passant pas donneront une estimation des émissions moins précise).

#### 5.3.4.2 . . . pour les variables diagnostiques

Dans cette section, l'ensemble des pseudo-images utilisé pour l'analyse est celui formé par les pseudo-images (47% de notre ensemble précédent) passant les critères sur la variabilité de la direction du vent et sur le bilan des

émissions, critères définis section 5.3.4.1.

Pour 42 échantillons, c'est la paire rapport signal sur fond estimé et variabilité spatiale de la concentration en XCO<sub>2</sub> en dehors du panache qui ressort. Nous obtenons pour les autres échantillons 20 paires différentes. La variabilité spatiale de la concentration en XCO<sub>2</sub> en dehors du panache est de plus utilisée dans le calcul du rapport signal sur fond estimé. Les deux variables ont une corrélation de 0.34. Nous choisissons de réduire la profondeur des arbres à 1 et d'enlever le rapport signal sur fond de notre liste de variable d'intérêt. Le choix de la variable à retirer entre les 2 est fait sur le nombre d'occurrences à travers les paires (54 pour le rapport signal sur fond estimé, 77 pour la variabilité du signal XCO<sub>2</sub>).

Dans cette nouvelle configuration, 72 échantillons sur 100 donnent comme critère la variabilité du signal XCO<sub>2</sub>. La distribution des valeurs seuil trouvées pour ce critère a une médiane égale à 0.72ppm et un IQR de 0.02ppm. 19% des pseudo-images de l'ensemble testé sont comprises entre les bornes formées par les quartiles de cette distribution. En prenant comme critère de discrimination la médiane de cette distribution, nous obtenons deux sous-ensembles qui contiennent respectivement 30% et 70% de l'ensemble testé et sont caractérisés par des biais sur l'estimation des émissions de -6% et -7%, et des IQR de 74% et 50%. Ce critère de discrimination permet de diminuer l'IQR mais non le biais (comme nous pouvons déjà le voir sur la figure 5.5). Cependant la précision sur ce critère pose question : 50% des valeurs prises par la variabilité du signal en dehors du panache sont comprises entre 0.70 (qui correspond au bruit de mesure) et 0.73ppm. Une légère (0.01ppm) variation de ce critère de séparation a de fort impact sur les distributions d'erreur des 2 sous-ensembles. Nous faisons donc le choix de ne pas retenir ce critère.

### 5.3.4.3 . Étude des résultats par ville

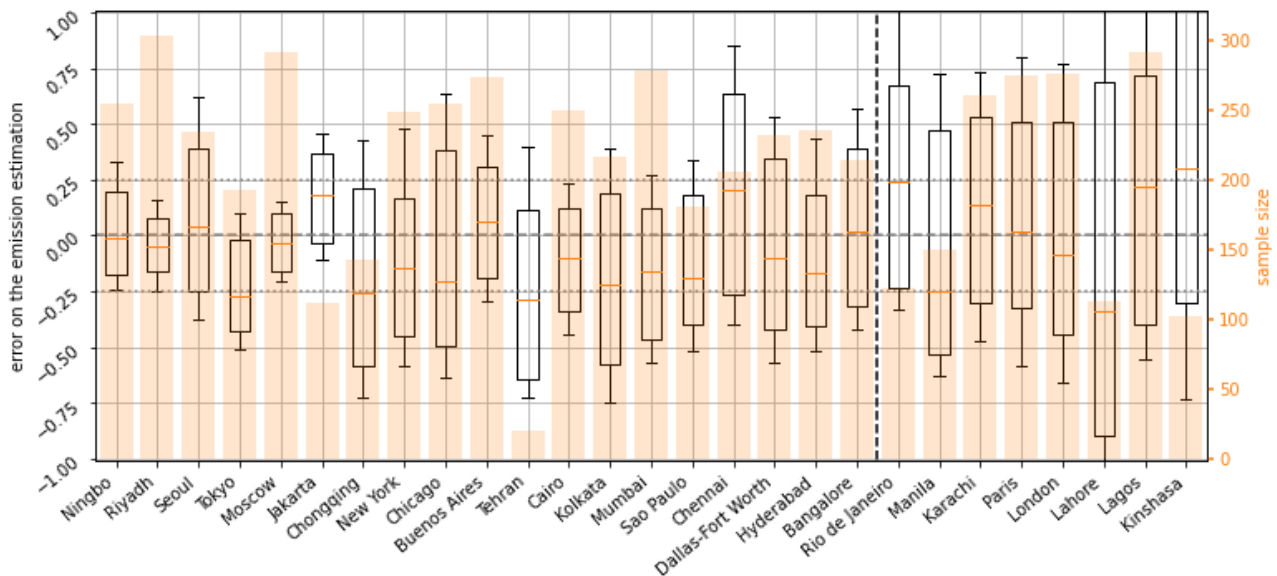


Figure 5.7 – Distribution de l'erreur sur les estimations des émissions (boxplot) obtenue avec la méthode GP2 pour les pseudo-images passant le critère de sélection sur la variabilité spatiale de la direction du vent (>11°). Les barres oranges montrent le nombre de pseudo-images utilisées. La ligne pointillée sépare les villes suivant le critère de discrimination sur le budget d'émissions de la ville avec à gauche les villes passant le critère (émissions >2.1ktCO<sub>2</sub>/h) et à droite les villes ne le passant pas. Les villes sont classées de manière décroissante suivant leur budget d'émissions.

Sur les 31 villes, cinq (Bogota, Lima, Los Angeles, Mexico et Téhéran) ont plus de 90% des pseudo-images qui ne passent pas le critère de sélection basé sur la variabilité spatiale de la direction du vent. Nous avons donc moins de 30 images passant le critère de sélection pour ces villes qui sont mises de côté.

Sur les 26 villes restants, 7 ont leur budget d'émissions en-dessous du seuil du critère sur le budget d'émissions (cf figure 5.7) et devraient donc avoir des estimations peu précises. Paris fait partie de ces villes dans nos simulations, avec des émissions de 1.8ktCO<sub>2</sub>/h pour la zone ciblée. La distribution de l'erreur sur l'estimation des émissions pour la ville de Paris a un biais de 2% et un IQR de 83% pour les pseudo-images passant le critère de sélection sur la variabilité spatiale de la direction du vent (86% des pseudo-images). Ces résultats sont proches de ceux obtenus dans le chapitre 3 avec les pseudo-images de Paris générées par WRF : la distribution de l'erreur sur l'estimation des émissions avait un biais de 4%, un IQR de 74% et 57% des pseudo-images passaient le critère alors défini. L'IQR est plus grand dans ce chapitre, et le nombre d'images passant le critère plus élevé. Ceci peut s'expliquer par le fait que le critère était plus stricte dans le chapitre 3 (<7°, <11° dans ce chapitre), et que les mois utilisés ne sont pas les mêmes (Décembre-Avril, Août dans ce chapitre).

Nous pouvons voir (figure 5.7) que la précision de l'estimation diminue avec le budget des émissions. Cependant ce critère ne suffit pas à lui seul à classer les villes. Le biais en particulier varie de manière non négligeable d'une ville à l'autre. Seules 8 villes (Bangalore, Buenos Aires, Londres, Moscou, Ningbo, Paris, Riyadh et Séoul) ont une distribution de l'erreur sur les estimations de leurs émissions avec un biais inférieur à 10%. Notre sélection nous a permis de filtrer grossièrement les situations les moins adéquates pour l'estimation des émissions avec notre méthode, mais pas encore de comprendre totalement les dépendances de l'erreur.

### 5.3.5 . Application aux autres méthodes

#### 5.3.5.1 . .. pour les variables prédictibles

méthodes d'inversion et distribution des critères	ss-ens. des pseudos-images	distrib. biais erreur	distrib IQR erreur	taille ss-ens.
GP2 (82 occurrences) (12 [9;14] ° ; 2.1 [1.9;2.6] ktCO <sub>2</sub> /h)	passant les critères	-7% [-6%;-8%]	55% [52%;58%]	45% [36%;52%]
	ne passant pas les critères	-29% [-25%;-31%]	97% [96%;99%]	55% [48%;64%]
GP3 (95 occurrences) (10 [8;13] ° ; 1.9 [1.9;2.1] ktCO <sub>2</sub> /h)	passant les critères	-3% [-2%;-3%]	61% [56%;64%]	49% [40%;55%]
	ne passant pas les critères	-33% [-27%;-37%]	107% [106%;109%]	51% [45%;60%]
IME (63 occurrences) (11 [9;12] ° ; 1.9 [1.9;2.1] ktCO <sub>2</sub> /h)	passant les critères	8% [8%;8%]	68% [65%;69%]	51% [45%;54%]
	ne passant pas les critères	6% [6%;7%]	125% [121%;126%]	49% [46%;55%]
CS (53 occurrences) (10 [9;12] ° ; 2.0 [1.9;2.1] ktCO <sub>2</sub> /h)	passant les critères	1% [0%;2%]	65% [62%;67%]	48% [44%;51%]
	ne passant pas les critères	-10% [-8%;-12%]	123% [121%;125%]	52% [49%;56%]

Table 5.2 – Résultats de la méthode par arbres de décisions appliquée aux variables prédictibles pour les méthodes d'inversion.

L'application de notre méthode par arbres d'apprentissage aux inversions avec GP3 donnent des résultats très similaires que ceux décrit pour GP2 section 5.3.4.2 (cf table 5.2). La paire de critères qui ressort est la même (variabilité spatiale de la direction du vent et bilan d'émissions) avec un nombre d'occurrence légèrement supérieur (95 pour GP3, 82 pour GP2). Pour les inversions avec CS et IME, là aussi la même paire de critère ressort, mais avec un nombre d'occurrence plus faible (resp. 53 et 63).

Les biais (<10%) et IQR (entre 52% et 70%) sur l'estimation des émission pour les sous-ensembles de pseudo-images passant les critères sont proches pour les différentes configurations d'inversion (cf table 5.2), ainsi que la taille de ces sous-ensembles (entre 36% et 55%).

Les sous-ensembles ne passant pas les critères de discrimination montrent, quant à eux, des différences suivant la configuration d'inversion. Les résultats avec GP3 sont semblables à ceux avec GP2 en termes de biais, IQR de l'erreur sur l'estimation des émissions et taille du panache ; mais pour CS et IME les biais sont plus faibles (entre 6 et 12% en valeur absolue pour CS et IME, entre -25 et -37% pour GP2 et GP3) et les IQR plus grands (supérieur à 120% pour CS et IME, inférieur à 107% pour GP2 et GP3).



### 5.3.5.2 . .. pour les variables diagnostiques

Dans cette section, l'ensemble des pseudo-images utilisé pour l'analyse est celui formé par les pseudo-images passant les critères sur la variabilité de la direction du vent et sur le bilan des émissions. Les méthodes d'inversions (GP3, IME, CS) sont testées séparément. Pour toutes ces méthodes, aucune paire de critère n'a plus de 40 occurrences quand la profondeur des arbres est fixée à 2. Nous réduisons donc là aussi la profondeur des arbres à 1. La taille du panache apparaît alors comme le critère principal pour IME et CS, avec respectivement 44 et 42 occurrences, sans pour autant se démarquer fortement (apparaît pour moins de la moitié des échantillons). Pour GP3, l'erreur de l'optimisation apparaît comme le critère principal, sans se démarquer là aussi (42 occurrences). Nous faisons donc le choix de ne pas retenir ces critères.

## 5.4 . Discussion

Certaines sources d'erreurs potentielles non prises en compte ici (complexité de l'erreur de mesure, perte des données du fait -entre autres- de la couverture nuageuse et des aérosols) ont déjà été discutées dans le chapitre 3 (voir section 3.2.5.3) et ne sont donc pas reprises ici.

Une différence majeure des simulations de ce chapitre avec celles du chapitre 3 est l'absence de variabilité temporelle des émissions utilisées. Dans la réalité, le panache est constitué par les émissions des heures précédentes, émissions qui varient. L'optimisation avec la panache gaussien pourrait donc se faire sur une partie du panache correspondant à des molécules de CO<sub>2</sub> ayant été émises 3 heures avant, par exemple, et comparer l'estimation des émissions aux émissions à l'heure du pseudo-passage introduit une erreur supplémentaire. Le risque est donc que nous ayons des barres d'erreur optimiste, la variabilité temporelle des émissions n'étant pas présente. En pratique, nous avons vu que dans le chapitre 3 que les zones d'analyse retenues correspondent à des émissions la plupart du temps très récentes (moins de 2h). Ainsi, réaliser cette étude avec des émissions variables ne devrait pas changer les résultats, en supposant que les émissions d'une ville varient peu en l'espace de deux heures. Cependant, la question de la variation temporelle des émissions se pose avec les données réelles quand nous comparons nos estimations d'émissions avec des inventaires. Pour les villes ne disposant pas de bilan d'émissions à l'échelle horaire (ou si la comparaison est faite avec un inventaire ne variant pas à l'échelle horaire), nous aurons une source d'erreur additionnelle qui viendra cette fois-ci du bilan d'émission estimé avec l'inventaire.

Le fait qu'un des critères soit basé sur le bilan d'émission de la ville peut poser problème quand nous passerons aux données réelles. En effet, nous aurons besoin d'une valeur a priori pour réaliser ce classement des villes, valeur qui sera estimée à partir d'un inventaire. Ainsi, se baser sur des bilans d'émissions d'inventaire pour classer les villes pourrait résulter dans des erreurs de classement.

## 5.5 . Conclusion

Quelque soit la méthode d'inversion, l'analyse des sensibilités de l'erreur aux conditions météorologiques et aux caractéristiques de la ville (*i.e.* sensibilité aux variables prédictibles) conduit à l'identification de la variabilité spatiale de la direction du vent et du bilan d'émission comme étant les principaux critères de discrimination des pseudo-images. L'analyse des sensibilités de l'erreur aux diagnostics sur l'image et l'inversion ne montre pas de critère discriminant. L'application de nos critères de discrimination nous permet de séparer nos pseudo-images en deux groupes : le premier contenant 47% des pseudo-images et pour lequel l'application de la méthode d'inversion basée sur GP2 donne une erreur sur l'estimation avec un biais de -7% et un IQR de 56% ; et le deuxième contenant 53% des pseudo-images et pour lequel l'application de la méthode d'inversion basée sur GP2 donne une erreur sur l'estimation avec un biais de -31% et un IQR de 99%. Cette séparation améliore les résultats de l'erreur sur Paris. Cependant, nous avons tout de même de fortes disparités entre les villes, ce qui pourrait suggérer que d'autres variables, non identifiées ici,

pourraient être pertinentes vis-a-vis de la sensibilité de l'erreur.



## 6 - Application aux données réelles OCO-3

L'objectif général de ce chapitre est d'étudier l'applicabilité de nos méthodes pour quantifier les émissions de CO<sub>2</sub> urbaines avec les images issues de la mission OCO-3. Plusieurs groupes travaillent à l'heure actuelle pour quantifier des émissions urbaines avec les images collectées en mode SAM, comme en témoigne les présentations faites durant les deux dernières réunions scientifiques<sup>1</sup> des missions OCO-2/3 (OCO Science Team Meeting). A l'exception de l'étude de [Nassar et al., 2022] sur les panaches de centrales d'énergie, seules deux études [Chevallier et al., 2022, Wu et al., 2022] ont utilisé les données OCO-3 pour quantifier des émissions de CO<sub>2</sub>, urbaines et issues de centrales d'énergie. [Chevallier et al., 2022] ont appliqué la méthode automatique d'estimation basé sur un calcul direct de flux développé par [Zheng et al., 2020] et [Chevallier et al., 2020] à des données OCO-3 en mode SAM, mais en utilisant les fauchées séparément, sans tirer parti de la couverture spéciale des SAMs. Cette étude a montré des similitudes dans les variations temporelles des émissions estimées avec l'inventaire spatialisé EDGAR ([Crippa et al., 2021]) et celles estimées avec OCO-2 et OCO-3. Dans un article actuellement en relecture, [Wu et al., 2022] étudient des images temporellement proches de CO de TROPOMI et de XCO<sub>2</sub> de OCO-2 et OCO-3 pour calculer des ratios d'émissions de CO et CO<sub>2</sub> et discuter des efficacités de combustions des différentes sources ciblées. Cette étude tire parti cette fois de l'extension spatiale des SAMs OCO-3, mais sans chercher à fournir des estimations d'émissions. [Kiel et al., 2021] ont eux aussi utilisé les SAMs OCO-3 pour vérifier les capacités de l'instrument à détecter des accroissements au-dessus de la ville de Los Angeles. Ils ont notamment comparé ces accroissements et leur distribution spatiale à des mesures TCCON, à des simulations de distribution de XCO<sub>2</sub> faites avec WRF et X-STILT, et à des panaches de NO<sub>2</sub> observés avec TROPOMI. Ils concluent que les observations faites avec les SAMs sont cohérentes avec ces autres données et que ces observations permettent d'observer des variations intra-urbaines de XCO<sub>2</sub>. Cependant cette étude ne vise pas à quantifier les émissions de Los Angeles. Quant à [Lei et al., 2022], la relation entre NO<sub>2</sub> de TROPOMI et XCO<sub>2</sub> de OCO-3 a été étudiée sur plusieurs semaines au dessus de Washington D.C. et de la ville de Mexico. Leur étude montre que les corrélations spatiales et temporelles entre les deux gaz n'apparaissent que sur des échelles de temps de 10 images ou plus, en utilisant un modèle méso-échelle pour réconcilier les heures de passage des deux satellites (distantes de plusieurs heures). Jusqu'à présent, aucune étude n'a été publiée pour quantifier des émissions de CO<sub>2</sub> urbaines de grandes métropoles, et cela tout en utilisant pleinement le potentiel de la couverture spatiale unique des SAMs OCO-3. Nous allons donc maintenant vérifier l'applicabilité de nos méthodes à quantifier des émissions de CO<sub>2</sub> urbaines à partir de SAMs OCO-3.

Dans le chapitre précédent nous avons défini des critères de discrimination pour des pseudo-images de XCO<sub>2</sub>, critères basés sur deux conditions d'observation : la variabilité spatiale de la direction du vent et le bilan d'émissions de la ville. Le premier critère permet de rejeter les images pour lesquelles l'estimation des émissions sera fortement biaisée. Une forte variabilité spatiale de la direction du vent (>11°) conduit en effet à une forte sous-estimation des émissions (médiane de la distribution de l'erreur relative sur l'estimation des émissions de -45% pour les inversion basées sur GP2). Le deuxième critère, quant à lui, donne une indication sur la précision des résultats : les villes faiblement émettrices (<2MtC/an) auront une distribution de l'estimation des émissions avec un fort IQR relatif (56% pour les inversions basées sur GP2, après filtrage sur la variabilité spatiale de la direction du vent), alors que celles fortement émettrices auront une plus faible incertitude (102% pour les inversions basées sur GP2, après filtrage sur la variabilité spatiale de la direction du vent).

Cette étude est cependant réalisée avec des données synthétiques et ne représente donc que partiellement les sources d'erreurs en conditions réelles. En particulier, les erreurs dans les champs de vent utilisés et les erreurs de représentation (faible résolution spatiale des analyses météorologiques) vont accroître les erreurs relatives et absolues.

---

1. programmes accessibles à : <https://sites.google.com/view/ocostm-march2022/breakout-details> et <https://sites.google.com/view/ocostmoct2022/breakout-details>

Dans la majeure partie des analyses réalisées dans cette thèse, notamment pour établir les critères de discrimination, nous avons utilisé des pseudo-images avec une fauchée de 150 km, une résolution de 1km<sup>2</sup> et un échantillonnage dense (pas de nuages, pas de pixels perdus au contrôle qualité ou du fait des surface aqueuses). L'incertitude sur l'estimation des émissions sera donc plus grande avec l'échantillonnage réel d'une SAM (cf section 3.2.4.5). Les erreurs de mesures ont été également approchées par des statistiques moyennes. Dans le cas de données réelles, l'analyse et la réduction de ces erreurs sont une priorité pour les missions OCO, comme en témoigne la récente mise à jour des données L2 de OCO-3 qui s'est terminée en mars 2022<sup>2</sup>. Les erreurs dans les données XCO<sub>2</sub> des missions OCO et de toutes les missions effectuant des mesures dans le proche infra-rouge ne sont pas exemptes d'erreurs corrélées dans l'espace, et parfois dans le temps (erreurs systématiques), notamment dues aux aérosols et à l'albédo de surface dans le processus d'inversion du transfert radiatif utilisé pour produire des données de XCO<sub>2</sub> ([Bell et al., 2022]). Il est aussi important de noter des sources d'erreurs instrumentales dues au vieillissement de l'appareil et aux cycles de nettoyage des capteurs. Certaines de ces erreurs sont connues et en partie corrigées lors du traitement des données XCO<sub>2</sub> utilisées ici ([Taylor et al., 2020]).

Pour étudier l'applicabilité de nos méthodes de quantification des émissions urbaines, nous procédons en trois étapes. Tout d'abord, nous révisons les critères trouvés dans le chapitre précédent, et regardons en outre si, connaissant les sources d'erreurs non prises en compte dans le chapitre précédent, nous trouvons de nouveaux critères pertinents. Par exemple, pour évaluer l'erreur liée au champ de vent (venant ici de ERA5, cf section 6.1.2), nous utilisons des observations satellitaires de NO<sub>2</sub>, dont les panaches urbains sont plus distincts que ceux de CO<sub>2</sub>. Cela nous permet de vérifier si les panaches détectés dans ces images (venant ici de TROPOMI, cf section 6.1.3) sont cohérents avec les champs de vent. Nous allons donc revisiter l'étude détaillée des sensibilités de l'erreur sur les estimations des émissions aux conditions d'observation faite dans le chapitre 5, en comparant ces sensibilités à celles de la différence relative entre l'estimation des émissions faites par nos inversions de SAMs et l'estimation des émissions par un inventaire spatialisé (ici ODIAC, cf section 6.1.4). Cette différence relative entre l'estimation des émissions faites par nos inversions de SAMs et l'estimation des émissions par un inventaire spatialisé est appelée dans la suite *écart inversion-inventaire*. Dans le cas des SAMs, cet écart inclut les erreurs de nos méthodes et les erreurs de l'inventaire, alors qu'elle n'inclut que les erreurs de nos méthodes dans le cas des pseudo-images. En l'absence d'émissions connues, et en se basant sur les études récentes qui montrent des écarts de l'ordre de 30% sur des inventaires globaux spatialisés [Chen et al., 2020], cet écart nous donne un indicateur de l'erreur faite dans nos estimations. La deuxième étape est de voir si les critères objectifs définis dans le chapitre 5, et révisés dans l'étape précédente, sont suffisants pour traiter automatiquement les SAMs, c'est-à-dire si notre traitement nécessite ou non un contrôle subjectif des résultats. Enfin, pour valider le potentiel de quantification des émissions urbaines par nos méthodes, nous regardons si les conclusions sur les émissions anthropiques faites par de précédentes études utilisant des données XCO<sub>2</sub> satellitaires peuvent être retrouvées en utilisant nos méthodes d'estimation des émissions. Nos analyses sont faites à la fois sur les villes et les centrales thermiques (parfois les deux en même temps), les SAMs de centrales thermiques étant utilisées là aussi pour vérifier le potentiel de nos méthodes, comme les panaches de ces sources sont censés être plus nets du fait de la quasi-ponctualité et des émissions importantes de ces sources.

La section 6.1 détaille les données utilisées pour les analyses faites dans ce chapitre (données XCO<sub>2</sub> de OCO-3, données météorologiques de ERA5, données d'inventaires de ODIAC et données NO<sub>2</sub> de TROPOMI). La section 6.2 détaille les changements appliqués à nos méthodes d'inversion pour s'adapter aux cas des données réelles ainsi que les variables caractérisant les conditions d'observations utilisées pour l'étude des sensibilités de l'écart inversion-inventaire. La section 6.3 présente quelques SAMs pour mettre en évidence les particularités de ces images et illustrer les difficultés auxquelles nous pouvons faire face. Nous présentons ensuite les résultats dans les sections 6.4, 6.5, et 6.6, en commençant par comparer (i) les sensibilités aux conditions d'observation de l'écart inversion-inventaire à (ii) les

---

2. <https://disc-beta.gsfc.nasa.gov/information/alerts?keywords=OCO-3&title=OCO-3%20v10.4r%20Lite%20Files%20Reprocessing%20Complete>

sensibilités aux conditions d'observation de l'erreur sur l'estimation des émissions obtenue au chapitre précédent avec des pseudo-images (section 6.4). Nous conduisons ensuite (section 6.5) une rapide analyse des variations temporelles des estimations des émissions en nous inspirant de [Chevallier et al., 2022] avant d'analyser les résultats pour des villes particulières (6.6). Les limites de nos analyses sont discutées dans la section 6.7.

## 6.1 . Description des données utilisées

### 6.1.1 . Données XCO<sub>2</sub> : SAMs OCO-3

Les données XCO<sub>2</sub> utilisés ici proviennent de la version v10.4r des produits de niveau L2 de la mission OCO-3 (fichiers *OCO3\_L2\_Lite\_FP*, [Payne et al., 2022]). Nous nous intéressons uniquement aux données acquises en mode SAM, c'est-à-dire dans le mode produisant des images de  $\approx 80\text{km} \times 80\text{km}$  de concentration de XCO<sub>2</sub>. Ces images sont prises au-dessus de plusieurs types de zones d'intérêts, l'un d'eux étant les sources anthropiques de CO<sub>2</sub> (villes, centrales thermiques).

Nous utilisons la liste fournie sur le site officiel de la mission (<https://ocov3.jpl.nasa.gov/sams/>, dernier accès le 25/04/2022) pour récupérer les caractéristiques des SAMs (date de début, date de fin, nom de la zone ciblée, taille de la SAM) et les sélectionner. Nous ne gardons que les SAMs ciblant des sources anthropiques (dont l'en-tête du nom est "*fossil\_*") ayant plus de 1000 pixels dans le produit de niveau L2, quelque soit le résultat du contrôle qualité (indiqué par la valeur de la variable booléenne *quality flag*). Ce nombre est fixé arbitrairement pour nous garantir un nombre élevé de pixel dans la SAM, et représente environ 50% d'une image complète afin de maximiser nos statistiques de détection du panache et l'estimation de la concentration de fond. Pour nos inversions, nous n'utilisons que les données passant le contrôle qualité. Le contrôle qualité est basé sur différents critères (liés aux aérosols, à la géométrie du terrain, à l'albédo de surface,...) dont les intervalles sont fixés par comparaison des données OCO-3 au réseau de mesures TCCON. Notre sélection nous fournit une base de données comprenant 2557 SAMs pour 216 cibles (171 villes et 45 centrales thermiques), pour des dates allant du 06/08/2019 au 22/04/2022.

Lors des inversions, nous utilisons les données *vertex\_longitude* et *vertex\_latitude*, qui indiquent les coordonnées des coins des pixels, *longitude* et *latitude*, qui indiquent les coordonnées des pixels, et *xco2* qui indique les valeurs estimées par l'algorithme d'inversion du transfert radiatif (décrit en section 2.2.1) pour les valeurs de XCO<sub>2</sub>. Nous ne conservons que les pixels ayant passés le contrôle qualité (*xco2\_quality\_flag*=0). Les données *psurf*, indiquant la pression de surface estimée par l'algorithme d'inversion du transfert radiatif, et *tcwv*, indiquant la masse de vapeur dans la colonne estimée par l'algorithme d'inversion du transfert radiatif, sont utilisées pour calculer la pression sèche à la surface, variable nécessaire pour le calcul de la masse surfacique de CO<sub>2</sub> dans la colonne qui est utilisée lors de l'inversion (cf section 3.2.9.4).

### 6.1.2 . Données météo : ERA5

ERA5 est un jeu de données de réanalyses produit par ECMWF pour le climat et la météo. Ce produit est couramment utilisé pour l'analyse de panaches (e.g. [Chevallier et al., 2020, Chevallier et al., 2022, Lei et al., 2021, Nassar et al., 2022, Zheng et al., 2020]), malgré sa résolution qui peut s'avérer limitante dans des zones à forte topographie (Los Angeles, Mexico,...). Deux types de données sont utilisés ici : (i) les données horaires ERA5 sur les niveaux simples de 1959 à aujourd'hui et (ii) les données horaires ERA5 sur les niveaux de pression de 1959 à aujourd'hui. Comme leur nom l'indique, ces données ont une résolution temporelle d'une heure. Leur résolution spatiale est de  $0.25^\circ \times 0.25^\circ$  et ils sont mis à jour quotidiennement, la latence étant de 5 jours maximum pour la production de la réanalyse (avec des corrections pouvant survenir jusqu'à 3 mois après).

Les variables qui nous intéressent sont, dans le jeu de données (i), le géopotential *geopotential* (utilisé pour calculer l'altitude de chaque niveau), le champ de vent longitudinal *v\_component\_of\_wind*, le champ de vent zonal *u\_component\_of\_wind*; et, dans le jeu de données (ii), le géopotential à la surface *geopotential* (utilisé pour

calculer la surface du sol en le divisant par l'accélération de la pesanteur terrestre) et la hauteur de couche limite *boundary\_layer\_height*. Les 2 géopotentiels et la hauteur de couche limite sont utilisés pour déterminer quels points de la grille du jeu de données (i) sont situés dans la PBL.

Pour chaque SAM, les valeurs utilisés sont une interpolation temporelle des 2 réanalyses les plus proches (celle de l'heure d'avant et celle de l'heure d'après). Spatialement, les données à moins de 2° du centre-ville latitudinalement et longitudinalement, et les niveaux à 600hPa et plus (pour les données de (ii)) sont téléchargées. Cela donne des fichiers avec une grille horizontale de 16x16 points, 14 niveaux verticaux et une seule valeur temporelle.

Ces données sont utilisées pour estimer le vent effectif nécessaire à nos inversions (3.2.3.6) et pour estimer les paramètres météorologiques (tel que la variabilité spatiale de la direction du vent) utilisés lors de l'étude des sensibilités de l'estimation des émissions aux conditions d'observation (cf section 6.2.3).

### 6.1.3 . Données NO<sub>2</sub> : TROPOMI

L'instrument TROPOMI, à bord du satellite Sentinel-5P, a été lancé en octobre 2017. L'instrument a été développé par plusieurs instituts de recherche néerlandais et fait partie des missions Sentinel de l'Agence Spatiale Européenne. Cet instrument fournit des données sur les concentrations atmosphériques de gaz ayant un impact sur la qualité de l'air et le climat. Parmi ces gaz figure le dioxyde d'azote (NO<sub>2</sub>), qui provient des émissions de NO<sub>x</sub> (NO et NO<sub>2</sub>)<sup>3</sup>, eux-mêmes co-émis avec le CO<sub>2</sub> lors de la combustion d'énergie fossile. Les ratios d'émissions NO<sub>x</sub>/CO<sub>2</sub> sont très variables suivant les systèmes et les combustibles ; les centrales thermiques et les moteurs diesel des voitures ont par exemple des ratio très élevés. Du fait de sa réactivité importante dans l'atmosphère, ce gaz présente une concentration de fond peu élevée, au contraire du CO<sub>2</sub>, ce qui permet aux panaches des villes d'être plus facilement détectable. La quantification du panache et la définition de sa structure spatiale peuvent donc aider à détecter les limites des panaches de CO<sub>2</sub> urbains s'ils sont co-émis, même à des taux variables. Cela suppose néanmoins que la mesure de CO<sub>2</sub> et de NO<sub>2</sub> soient très proches temporellement et que la distribution spatiale (horizontale et verticale) des émissions de ces deux gaz soient similaires au sein de la source (ville ou site industriel) ciblée. Le potentiel d'une mesure simultanée de ces deux gaz pour détecter les panaches urbains et estimer les émissions de CO<sub>2</sub> correspondantes a été étudiée en données synthétiques par [Kuhlmann et al., 2019] en support de la mission CO2M. Les données de NO<sub>2</sub> sont fournies à une résolution 5.5km\*3.5km pour une fauchée de 2600km. Son heure de passage est à environ 13h30 en heure locale, et sa couverture est globale sur une journée.

Pour chaque SAM, nous regardons une à une les orbites les plus proches temporellement de la date d'acquisition de la SAM (écart de 3h au maximum) et sélectionnons la première ayant au moins 1000 pixels dans le carré de 4° de côté centre sur le centre de la ville. Nous conservons les pixels de l'orbite dans ce carré et utilisons les données *nitrogendioxide\_tropospheric\_column* pour lesquelles l'indice de qualité (variable *qa\_value*) est supérieure à 0.75, comme préconisé dans [Lambert et al., 2022]. Nous appliquons un lissage uniforme pour réduire le bruit d'échantillonnage par pixel : à chaque pixel est assignée la valeur moyenne des pixels à moins de 10km. N'ayant besoin que d'une estimation grossière du panache de NO<sub>2</sub>, nous le définissons comme les 20% de pixels les plus élevées. Une régression linéaire est effectuée sur les pixels appartenant au panache de NO<sub>2</sub> ainsi délimité en utilisant les valeurs lissées de concentration de NO<sub>2</sub> comme pondération. La pente donne la direction du panache de NO<sub>2</sub>. Cette direction est comparée à celle du vent moyen dans la PBL et du panache de CO<sub>2</sub>, en faisant l'hypothèse que la différence entre les deux soit représentative de l'erreur dans les champs de vent et dans le signal de CO<sub>2</sub> anthropique que nous avons isolé pour estimer les émissions de CO<sub>2</sub>.

### 6.1.4 . Données émissions : inventaire ODIAC

Nous avons recours à un inventaire spatialisé pour 2 raisons : tout d'abord, lors de l'inversion, pour définir la zone cible (cf section 5.1.3) qui nous permettra de définir les limites du panaches ; et ensuite lors du traitement des

---

3. Une grande part des molécules de NO émises lors de ces combustions va rapidement réagir pour se transformer en NO<sub>2</sub>.

résultats pour calculer l'écart inversion-inventaire. L'analyse des sensibilités de cet écart inversion-inventaire et sa comparaison aux analyses des chapitres précédents nous apportera des informations pour évaluer la pertinence de ces dernières. Nous gardons en tête que les émissions fournies dans cet inventaire ne sont que des estimations, ayant elles-même potentiellement leurs propres biais et sensibilités.

Comme inventaire de référence, nous utilisons encore une fois ODIAC. Les données pour les années 2020, 2021 et 2022 n'étant pas encore accessible quand nous avons effectué les inversions, nous utilisons l'année 2019 comme référence. Les facteurs moyens de corrections temporels de [Nassar et al., 2013b] sont appliqués pour représenter le cycle diurne des émissions de CO<sub>2</sub>. Les facteurs de correction hebdomadaire n'étant plus disponibles sur le ftp ([https://cdiac.ess-dive.lbl.gov/ftp/Nassar\\_Emissions\\_Scale\\_Factors/](https://cdiac.ess-dive.lbl.gov/ftp/Nassar_Emissions_Scale_Factors/)), aucun facteur de correction hebdomadaire n'est donc appliqué. De nombreuses villes parmi celles ciblées font leurs propres bilans d'émissions, parfois spatialisés, bilans qui devraient être théoriquement plus précis que l'inventaire ODIAC sans toutefois être résolus en dessous de l'échelle annuelle. Nous faisons le choix d'ODIAC pour sa couverture mondiale et sa résolution fine. Notre analyse devra tenir compte de l'absence d'estimations précises pour un jour donné et pour une heure donnée, augmentant ainsi l'écart théorique entre ODIAC et nos estimations.

## 6.2 . Méthode

### 6.2.1 . Description des méthodes d'inversion

Nous utilisons les même méthodes que dans le chapitre précédent, à l'exception de la méthode GP3. Plusieurs raisons ont amené à son éviction : la complexité de l'adaptation nécessaire pour les SAMs avec peu de pixels et les résultats similaires entre les méthodes GP2 et GP3 dans nos études en données synthétiques (chapitres 3 et 5). Les méthodes d'inversion basées sur les méthodes CS, IME et GP2 sont utilisées dans les configurations décrites dans les chapitres précédents. Pour rappel, les étapes du processus d'inversion sont : (i) définition de la zone ciblée (cf sections 5.1.3 et 6.2.1.1, 6.2.1.2 pour les cas particuliers), (ii) définition du panache venant de la zone ciblée (cf section 3.2.3.1), (iii) estimation de la concentration de fond (cf section 3.2.3.3), (iv) définition de l'axe central du panache (cf section 3.2.3.4 avec adaptation section 6.2.1.4), (v) définition de la zone d'analyse (cf section 3.2.3.2 avec les paramètres décrits en section 5.2.1 pour les villes et en section 6.2.1.2 pour les centrales thermiques), (vi) estimation du vent effectif (cf section 3.2.3.6 et adaptation décrite en section 6.2.1.3) et (vii) estimation des émissions (cf section 3.2.3.7).

Il a été nécessaire d'adapter les étapes (ii), (iv) et (vi), à l'échantillonnage des SAMs et à la résolution des champs de vent qui sont ici plus faibles que dans les chapitres précédents. Les étapes (i), (v) et (vi) sont aussi adaptées pour le cas particulier des centrales thermiques, qui sont considérées comme des sources de 2km de diamètre. Ces adaptations sont décrites dans cette section, ainsi que la façon dont sont définis les centres des villes, définition qui diffère du chapitre précédent.

#### 6.2.1.1 . Ciblage automatique des villes

Nous utilisons la librairie *geopy.geocoders* avec l'API Nominatim pour définir le centre des villes et le site <https://www.gem.wiki> pour la localisation des centrales thermiques. Un algorithme a été codé pour faire ces recherches automatiquement à partir du nom des cibles des SAMs. Les noms de 2 des cibles (*fossil\_Baabda\_Lebanon* et *fossil\_Chios\_Turkey*) ne correspondent pas aux villes réellement ciblées (Tripoli et Bursa). Une correction manuelle est donc effectuée pour ces deux cas. Les localisations de 11 centrales thermiques sur les 45 ne sont pas trouvées par notre algorithme et sont donc renseignées manuellement. Nous n'avons pas trouvée d'émetteurs anthropiques dans le voisinage immédiat d'une des cibles (*fossil\_Tropomi\_2\_powerplant*) et nous n'avons donc pas traitées les SAMs correspondants.

Dans le chapitre précédent, le centre des villes était défini comme le barycentre des émissions au sein des limites



de la zone urbaine, zone urbaine définie avec la base de données GRUMPv1.0 (cf sections 5.1 et 5.1.3). Ici, les villes ciblées font parfois partie d'agglomérations dont elles ne sont pas le pôle principal d'émissions, et définir leur centre comme le barycentre des émissions de l'agglomération à laquelle elles appartiennent pourrait résulter en une localisation du centre de la ville assez éloignée de la ville. C'est pourquoi nous privilégions une définition administrative.

#### **6.2.1.2 . Adaptation pour les centrales thermiques**

Pour les centrales thermiques, la zone ciblée est définie comme le disque de rayon 2km et de centre la localisation de la centrale thermique. La zone d'analyse utilisée est la zone comprise entre 20km et 30km de la centrale thermique le long de l'axe du panache pour la méthode GP2, et entre la centrale thermique et 20km de la centrale thermique le long de l'axe du panache pour CS et IME. Les zones d'analyses sont choisies ainsi pour faire approximativement la même longueur que celles des villes et ainsi faciliter la comparaison.

#### **6.2.1.3 . Adaptation du calcul du vent effectif**

Pour chaque inversion, deux estimations du vent effectif sont effectuées : la première à l'étape (ii), en utilisant le vent moyen dans la PBL, pour définir les limites du panaches; et la deuxième à l'étape (vi), en utilisant le vent moyen dans la PBL ou le vent tangent à l'axe central du panache suivant la méthode d'inversion, pour définir le vent effectif qui sera utilisé à l'étape (vii) de l'inversion (l'estimation des émissions).

Dans les chapitres 3 et 5, la première estimation est réalisée en prenant la moyenne du vent dans la PBL dans la zone couverte par la pseudo-image. Nous avons alors de grandes images, à haute résolution, et l'échantillonnage du champ de vent était le même que celui de XCO<sub>2</sub>. Dans le cas des SAM, les images sont moins denses, plus petites que les pseudo-images, parfois très allongées et l'échantillonnage du champ de vent n'est pas le même que celui des SAMs, sa résolution en particulier est beaucoup plus faible. C'est pourquoi nous fixons cette fois-ci la zone typique dans laquelle nous calculons la moyenne du vent dans la PBL de manière indépendante de la SAM. La zone choisie est approximativement la même que précédemment : un carré de 150km de côté centré sur le centre de la ville.

La deuxième estimation est réalisée dans les chapitres 3 et 5 en utilisant les points de la grille du champ de vent dans la zone d'analyse (pour le vent moyen dans la PBL) ou dans une section transversale du panache (pour le vent tangent, cf sections 3.2.3.6 et 5.2.1). Pour les mêmes raisons que dans le paragraphe précédent, nous utilisons comme zone pour estimer le vent effectif le disque centré sur la ville et de rayon la borne supérieure de la zone d'analyse ( $\approx 20$  ou  $\approx 30$ km selon la méthode d'inversion, cf section 5.2.1), à la place de la zone d'analyse et de la section transversale.

#### **6.2.1.4 . Adaptation du calcul de l'axe central du panache**

Les SAMs peuvent avoir des formes parfois très allongés selon l'orbite ou ne pas être centrés sur la ville. Ces situations perturbent le calcul de l'axe central du panache. Pour éviter cela nous n'utilisons pour le calcul que les pixels situés à l'intersection des 2 zones suivantes : (zone 1) le disque de centre le centre de la ville (ou la centrale thermique) et de rayon deux fois le rayon de la ville (ou 40km pour les centrales thermiques) et (zone 2) le demi-espace situé entre 5km avant le centre-ville et l'infini dans la direction du vent (cf figure 6.1). L'extension de la zone a des valeurs situées avant le centre-ville est inspirée de [Kuhlmann et al., 2019] et permet de stabiliser l'origine du panache. Les valeurs utilisées lors de l'optimisation de l'axe central sont, comme dans les chapitres précédent, le champ de XCO<sub>2</sub> mesuré moins le champ de concentration de fond calculé.

### **6.2.2 . Estimation des critères de sélection des SAMs définis au chapitre précédent**

Deux critères sont retenus dans le chapitre précédent pour discriminer les images : la variabilité spatiale de la direction du vent (avec un seuil à 11° pour les inversions basées sur GP2) et le bilan des émissions (avec un seuil à 2.1ktCO<sub>2</sub>/h pour les inversions basées sur GP2). Ces deux variables sont estimées à partir des données ERA5 pour la variabilité spatiale de la direction du vent et avec ODIAC pour le bilan des émissions. Comme ces critères sont des estimations, et non les valeurs exactes comme dans le chapitre précédent, l'impact des erreurs est discuté en

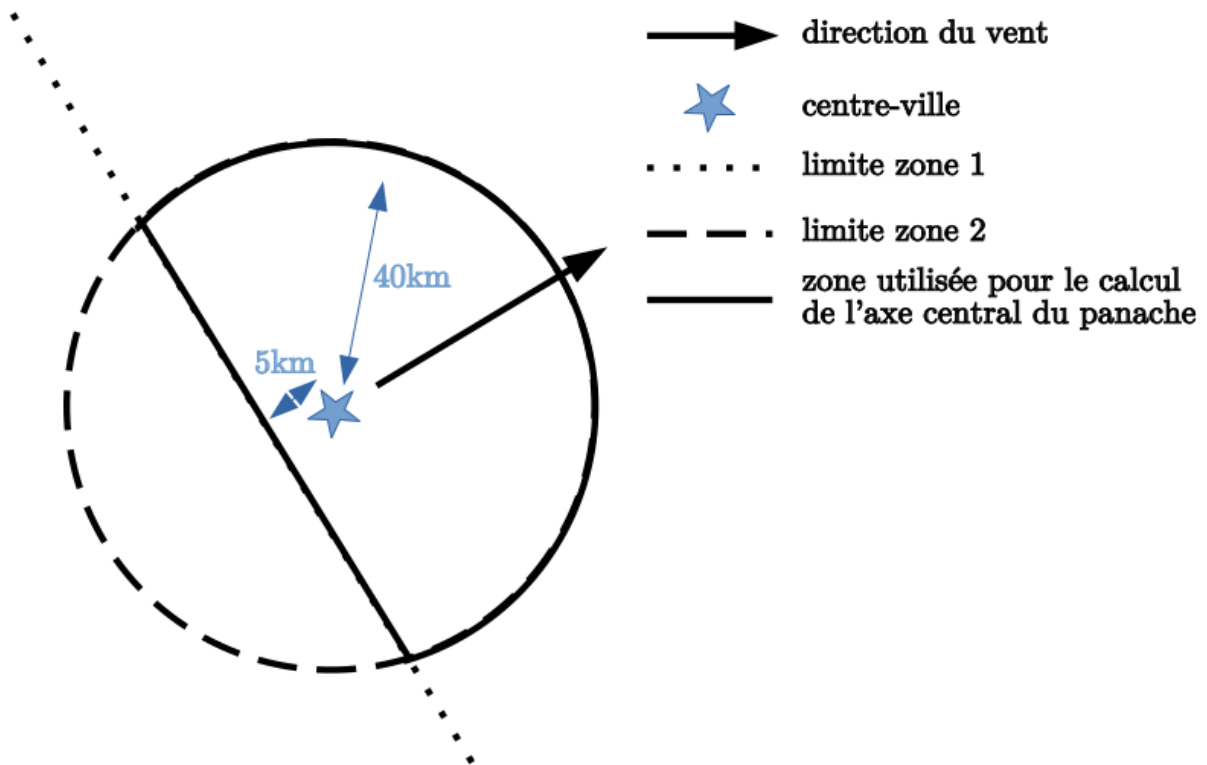


Figure 6.1 – Illustration de la zone utilisée pour le calcul de l'axe central du panache.

section 6.7, ainsi que l'impact de la faible résolution du champ de vent sur l'estimation de la variabilité spatiale de la direction du vent.

### 6.2.3 . Variables retenues pour l'analyse de la sensibilité de l'écart inversion-inventaire

Parmi les variables prédictibles listées dans le tableau 5.1, seul le vent moyen dans la PBL a été retenu en plus des variables utilisées pour les critères de discrimination (variabilité spatiale de la direction du vent et le bilan d'émissions). L'abandon des autres variables est justifié par le fait que ni l'analyse par arbres de décision, ni notre analyse préliminaire n'ont montré de sensibilité de l'erreur sur l'estimation des émissions à ces variables. Toutes les variables diagnostiques ont, quant à elles, été conservées.

Nous avons de plus regardé de manière exploratoire si nous pouvions voir une sensibilité de l'écart inversion-inventaire aux moyennes des différentes variables fournies dans les fichiers *OCO3\_L2\_Lite\_FP*. Ces variables couvrent des paramètres géométriques (angle azimutal du Soleil, angle azimutal du détecteur,...), des paramètres météorologiques estimés par l'algorithme d'extraction des concentrations en  $XCO_2$  (vent de surface, pression de surface,...), des caractéristiques des mesures de radiance (comme les rapports signal sur bruit pour chaque bande) ou d'autres paramètres estimés par l'algorithme d'inversion du transfert radiatif (comme l'albédo de surface pour chaque bande, l'épaisseur optique des aérosols). Cette analyse vise à voir si une variable semble corrélée avec l'écart inversion-inventaire, et donc pourrait potentiellement indiquer une erreur systématique liée à cette variable. Nous avons choisi de conserver toutes les variables et de comprendre a posteriori les raisons physiques des sensibilités que nous pourrions repérer.

Trois autres paramètres sont enfin ajoutés : (i) la différence entre la direction du vent moyen dans la PBL et la direction moyenne du panache de  $CO_2$ , (ii) la différence entre la direction du vent moyen dans la PBL et la direction

moyenne du panache de  $\text{NO}_2$  pour l'image TROPOMI la plus proche temporellement de l'acquisition de la SAM et (iii) la direction moyenne du panache de  $\text{NO}_2$  et la direction moyenne du panache de  $\text{CO}_2$ .

Pour comparer les sensibilités de l'écart inversion-inventaire et de l'erreur sur l'estimation des émissions du chapitre précédent, nous traçons les distributions de ces 2 variables cibles pour chaque décile des variables d'intérêt, de la même manière que décrit dans le paragraphe "Analyse préliminaire" de la section 5.2.2.

Nous avons pu voir que certaines villes (Ahvaz et Al-Hofuf) n'étaient pas couvertes par ODIAC, elles ne sont donc pas incluses dans nos analyses.

### 6.3 . Illustration des différents types de SAMs et comportements des inversions

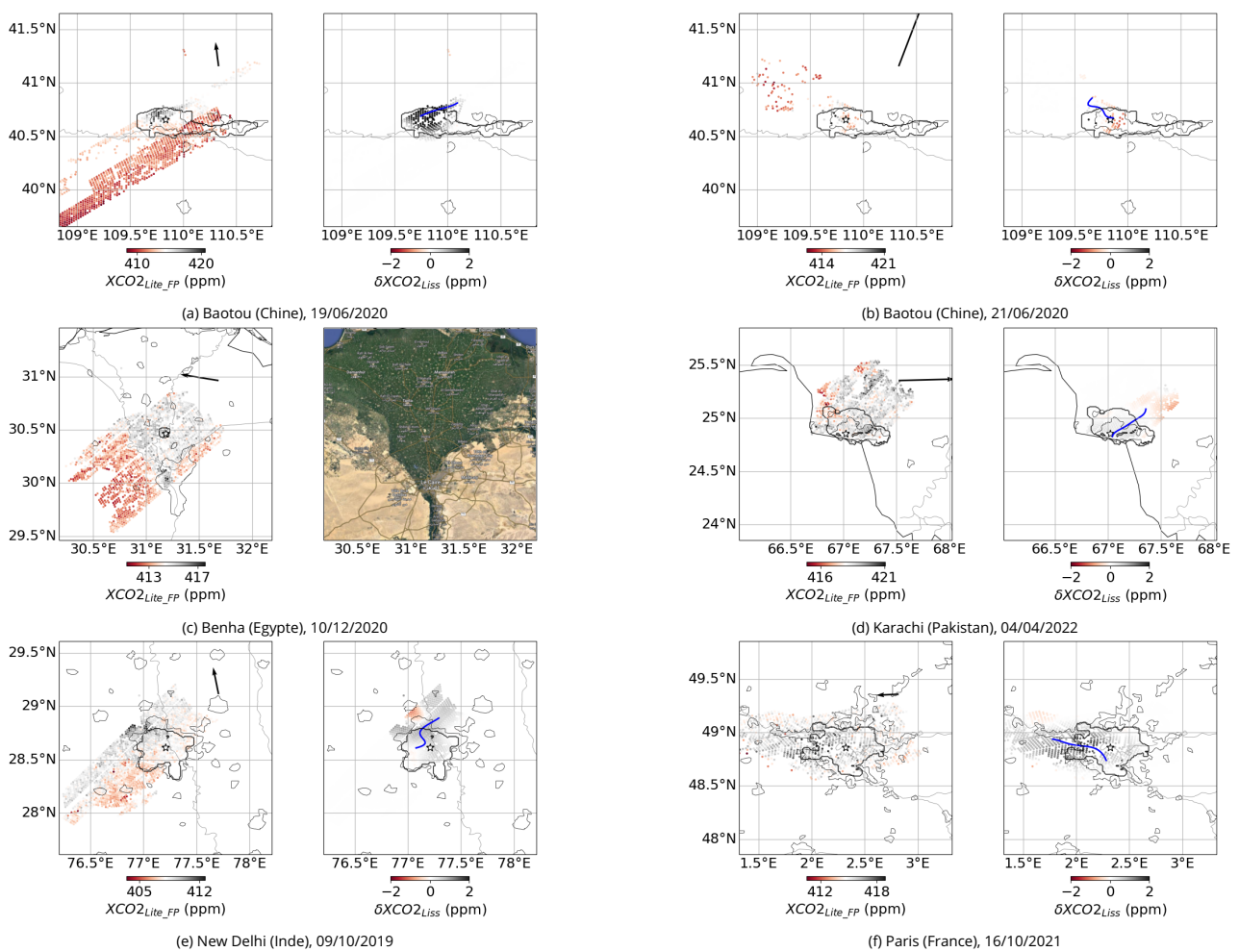


Figure 6.2 – Illustration des observations de  $X\text{CO}_2$  avant (figure de droite) et après lissage et soustraction des concentrations de fond estimées (figure de gauche). Pour Benha, la figure de gauche montre une image satellite de la surface prise dans le visible afin de montrer le changement d'albédo de surface. Les flèches noires dans les coins gauches des images indiquent la direction du vent moyen dans la PBL et sa force relative, la ligne bleue l'axe central du panache et le contour gris les limites de la zone ciblée.

La figure 6.2 montre des exemples de SAMs typiques. Pour tout ces SAMs, nos méthodes d'inversion ont fournies une estimation des émissions de la zone ciblée. Cependant les SAMs exposées, à l'exception de la SAM sur Paris en figure 6.2f, montrent des caractéristiques qui peuvent nous faire douter de la pertinence de l'estimation (axe central

du panache incohérent avec la direction du vent, faible nombre de points dans la SAM/panache). La proportion d'estimation en lesquelles nous avons confiance dans ces exemples (1/6) n'a pas pour but d'être représentative de la vraie proportion d'estimations en lesquelles nous pouvons avoir confiance.

La figure 6.2a montre une SAM pris au dessus de Baotou en Chine. Cette métropole de 2,3 millions d'habitants (en 2020) est située dans la province de Mongolie Intérieure et est un important centre de production d'acier et de traitement de métaux rares<sup>4</sup>. Ses émissions sont de 7ktCO<sub>2</sub>/h dans ODIAC pour le mois d'octobre de l'année 2019. Nous pouvons voir que la SAM présente une forme très allongé dans la direction Sud-Ouest - Nord-Est. Cette direction est quasiment perpendiculaire à la direction du vent moyen dans la PBL au moment de l'acquisition de la SAM, vent qui vient du Sud-Sud-Est. Nous avons ainsi peu de pixels sous le vent par rapport à la ville. Ce panache tronqué aux limites aval de la ville par rapport au vent donne une part trop importante aux pixels au-dessus et sur les bords de la ville qui sont perpendiculaires à la direction du vent. Ceci fait que l'estimation que nous faisons de l'axe central du panache est orientée vers le Nord-Ouest et est donc incohérente avec le vent moyen dans la PBL.

La figure 6.2b montre une SAM pris au-dessus de Baotou 3 jours après la précédente. Cette fois-ci, la SAM a un faible nombre de point. Cela impacte, entre autres, l'estimation de la concentrations de fond : nous pouvons ainsi voir que les pixels dans le panache, après soustraction de la concentration de fond, montrent des valeurs négatives. Là aussi, l'axe centrale du panache détecté (vers le nord-Ouest) est incohérent avec le vent moyen dans la PBL (venant du Sud-Sud-Ouest).

La figure 6.2c illustre une SAM pris au-dessus de Benha en Egypte. Cette métropole de 2.5 millions d'habitants (en 2012) est situé au coeur du delta du Nil<sup>5</sup>. Nous pouvons distinguer sur ce SAM des variations de concentrations en XCO<sub>2</sub> très marquées au dessus de la zone de changement d'albédo (désert - delta du Nil). Ces variations sont probablement la signature d'erreurs liées à l'albédo dans les données et affectent la précision de l'estimation sur les émissions.

La figure 6.2d correspond à une SAM pris au-dessus de Karachi au Pakistan. Nous pouvons distinguer deux panaches (image de gauche), dont les origines sont situées au coeur de la ville (coordonnées 24.9°N 67.1°E) et au nord de la ville (25.2°N 67.1°E). Le premier panache montre un écart d'environ 45° avec la direction du vent, quand le deuxième semble bien aligné avec cette direction. Une source potentielle du premier panache est une fabrique de ciment situé aux coordonnées 24.85°N 67.09°E. Pour le deuxième panache, nous n'avons repéré aucune source pouvant fournir un signal aussi localisé dans les environs, ni de variations dans l'albédo de surface, la source semblant être au abords de l'aéroport de Karachi. Quoiqu'il en soit, la source du premier panache, que nous supposons provenir de la cimenterie, est située en dehors de la zone que nous ciblons mais recoupe en partie le panache que nous définissons pour la ville. Cela perturbe notre estimation des concentrations de fond et nous pouvons voir des concentrations négatives, et donc irréalistes, dans les valeurs de XCO<sub>2</sub> à l'intérieur du panache de la ville (figure de droite) aux abords de la localisation du panache de la cimenterie. Ces valeurs perturbent notre estimation de l'axe central du panache (incohérent avec le panache apparent) et notre estimation des émissions.

La figure 6.2e correspond à une SAM pris au-dessus de New-Delhi en Inde, ville d'environ 32 millions d'habitants. Là aussi un panache se distingue dans les observations de XCO<sub>2</sub> avant soustraction des concentrations de fond. Cependant ce panache est dans la direction de l'Ouest quand le vent moyen dans la PBL souffle vers le Nord-Nord-Ouest. Les orientations de ce panache et du vent ne sont donc pas cohérents et le panache tel que nous le définissons, basé sur sur le vent moyen dans la PBL, vient couper ce panache visible. Une partie du panache visible est donc exclu du panache que nous définissons. De plus, une partie des pixels de ce panache visible est utilisée pour estimer les concentrations de fond. Nous nous retrouvons ainsi, après soustraction des concentrations de fond, avec des valeurs négatives dans les données XCO<sub>2</sub> du panache tel que nous le définissons.

La figure 6.2f correspond à une SAM pris au-dessus de Paris en France. Cette fois-ci, le panache visible est

---

4. <https://en.wikipedia.org/wiki/Baotou>

5. <https://en.wikipedia.org/wiki/Benha>

cohérent avec la direction du vent, l'échantillonnage est dense et nous avons une zone étendue autour de la ville et des deux côtés de son panache. Toutes les conditions semblent réunies pour avoir une bonne estimation des émissions. L'inventaire ODIAC donne une estimation pour la zone ciblée de 2.9ktCO<sub>2</sub>/h et notre inversion 5.5ktCO<sub>2</sub>/h. A titre de comparaison, l'inventaire utilisé dans le chapitre 3 donne des estimations comprises entre 2.0 et 4.8ktCO<sub>2</sub>/h.

Nous avons montré ici des SAMs pour lesquelles l'inversion a donné une estimation. Cependant l'analyse visuelle de ces résultats nous fait douter dans certains cas de la qualité de cette estimation. Ces SAMs typiques n'ont pas forcément passés les critères définis dans le chapitre précédent. Cependant les problèmes décrits ici ne sont pas liés aux critères de sélection. D'autres critères semblent nécessaire à la vue de ces résultats pour sélectionner les résultats d'inversion.

## 6.4 . Comparaison des résultats des inversions obtenus avec les pseudo-images du chapitre 5 et avec les SAMs

### 6.4.1 . Performance du traitement automatique

	Méthode d'inversion			Commentaires	
	GP2	IME	CS		
Total	2557	2557	2557		
Échecs	emiss. calc. method	160	897	970	(étape vii de l'inversion).
	zone d'analyse	703	0	0	(étape v).
	axe central	75	75	75	(étape iv).
	nb. pixels	445	445	445	Moins de 30 pixels dans le panache (étape i).
	pas de données	79	79	79	Aucun pixel n'est labellisé comme étant de bonne qualité.
	pas de fichier	15	15	15	Aucune données répondant aux critères (données XCO <sub>2</sub> Lite entre la date de début et la date de fin indiquées sur le site officiel et à moins de 2° de la cible) n'a été trouvée lors du téléchargement.
	chargement des fichiers	5	5	5	Les fichiers téléchargés sont corrompus (malgré plusieurs essais de téléchargement).
Succès	1075	1041	968	L'inversion a convergé et nous avons une estimation.	

Table 6.1 – Répartition des pseudo-images suivant l'échec ou la réussite de l'inversion pour les 3 configurations d'inversion (référencées par souci de simplicité par la méthode d'estimation des émissions utilisée).

Le principal intérêt de nos méthodes à faible temps de calcul est de pouvoir les appliquer de manière automatique à toutes les images de XCO<sub>2</sub> disponibles (*i.e.* les SAMs OCO-3). Sur l'ensemble des SAMs OCO-3, les méthodes d'inversion arrivent à produire une estimation des émissions pour la zone ciblée dans seulement ≈40% des cas (cf tableau 6.1). A titre de comparaison, les inversions du chapitre précédent produisaient une estimation des émissions pour 92% des pseudo-images avec la méthode GP2, et pour 99% des pseudo-images avec les méthodes CS et IME. Dans le cas des SAMs, pour 20% d'entre elles, l'échec de l'inversion est directement lié à l'échantillonnage : au trop faible nombre de pixels de bonne qualité (17% des SAMs) ou au trop faible nombre de pixels dans le panache (3% des SAMs). Les autres raisons d'échecs sont toutefois aussi souvent liées à l'échantillonnage : faible nombre de pixels sous le vent de la ville, ce qui pose problème lors de la définition de l'axe central du panache ; absence de pixels dans la zone d'analyse ; faible nombre de pixels dans la zone d'analyse, ce qui pose problème lors de l'estimation des émissions,...

La médiane de la distribution de l'écart inversion-inventaire est négative, en particulier pour CS et IME (-91% et -88%, *i.e.* un facteur 10 entre les estimations par l'inversion et l'inventaire), ainsi que pour GP2 dans une moindre mesure (-31%). Cette différence entre les méthodes par bilan de masse (CS et IME) d'un côté et optimisation (GP2) de l'autre peut s'expliquer par les données manquantes dans les SAMs : un pixel manquant, si nous ne le compensons pas, résulte en une sous-estimation de la masse dans le panache pour la méthode IME (ou du flux dans la cross-section pour CS) et donc une sous-estimation des émissions. La méthode GP2, reposant sur une optimisation pixel par pixel,

n'est pas sensible à ce problème. L'écart inversion-inventaire est corrélée à la densité de la couverture de la SAM<sup>6</sup> pour les méthodes CS (corrélation de 12%) et IME (15%), mais pas pour GP2 (corrélation de -2%). Nous devrions donc interpoler les valeurs de XCO<sub>2</sub> pour les pixels manquants et dans les interstices entre les pixels pour pouvoir utiliser les méthodes IME et CS de façon rigoureuse. Nous avons préféré abandonner les méthodes CS et IME dans la suite, par manque de temps pour développer ces méthodes d'interpolation non-biaisée. Dans la suite, les résultats sont ceux des inversions basées sur la méthode GP2.

Pour 5 villes (Baltimore, Chios, Cologne, Maebashi, Peshawar) sur les 171 villes ciblées, la définition automatique des limites des villes donne une zone de plus de  $\pi * 30^2 \text{km}^2$  (resp.  $\pi * 32^2 \text{km}^2$ ,  $\pi * 54^2 \text{km}^2$ ,  $\pi * 34^2 \text{km}^2$ ,  $\pi * 56^2 \text{km}^2$ ,  $\pi * 33^2 \text{km}^2$ ). Ces 5 villes sont des villes mineures au sein même de larges conurbations (e.g. Baltimore proche de Washington D.C., Maebashi proche de Tokyo).

#### 6.4.2 . Étude de la sensibilité de l'écart inversion-inventaire aux conditions d'observation

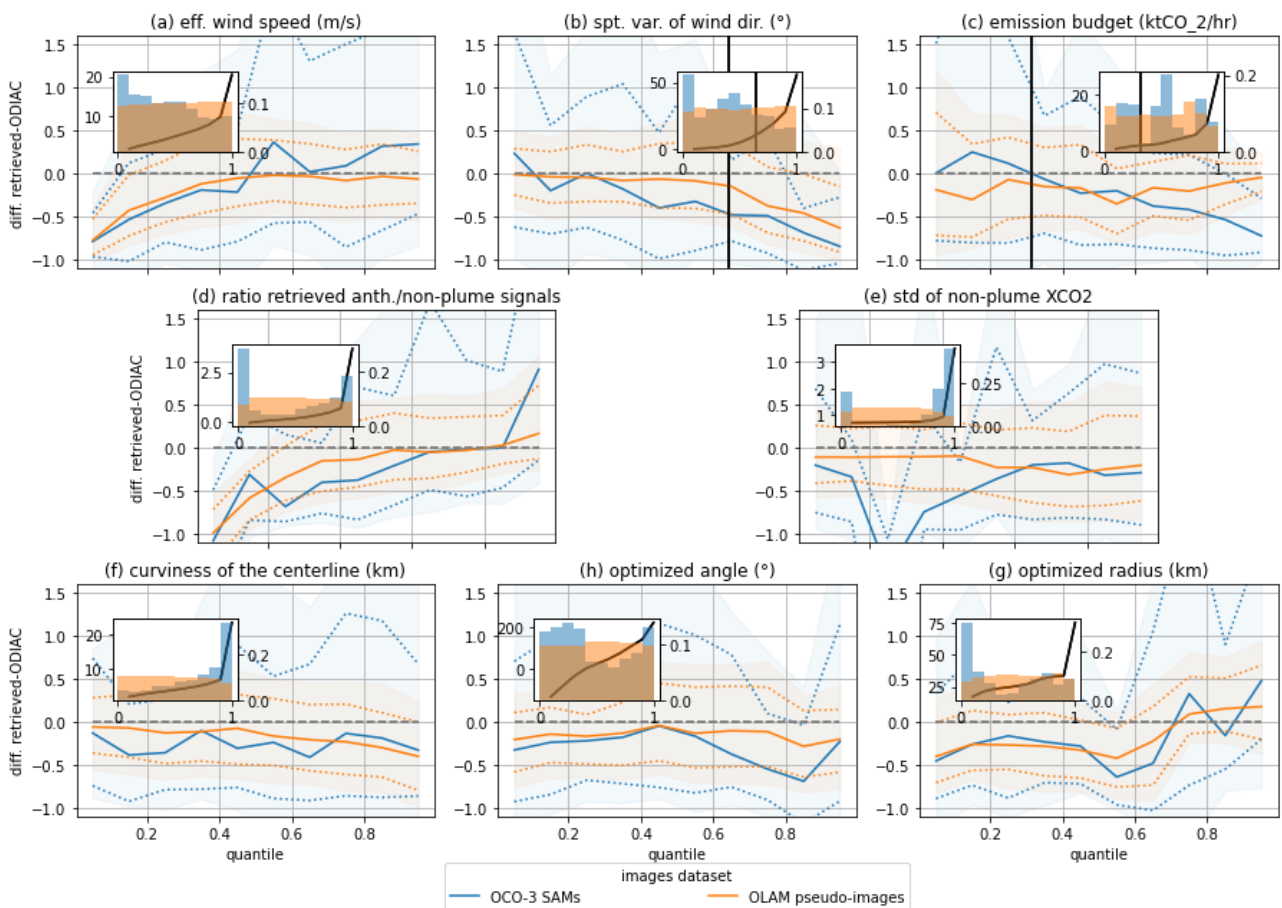


Figure 6.3 – Relation entre l'écart inversion-inventaire et les variables pour lesquelles cet écart montre la plus grande sensibilité. Les résultats sont montrés pour les inversions basées sur la méthode GP2 et appliquées aux SAMs (en bleu) et aux pseudo-images du chapitre précédent (en orange). Les lignes verticales noires indiquent les valeurs pour les critères de sélection définis dans le chapitre 5.

Les sensibilités de l'erreur relative sur l'estimation des émissions que nous avons identifiées dans le chapitre précédent se retrouvent ici dans l'écart inversion-inventaire (cf figure 6.4.2). Les sensibilités identifiées étaient à la

6. Cette densité est calculée comme le rapport entre (i) la somme des aires des pixels au-dessus de la zone ciblée et (ii) l'aire de la zone ciblée.

vitesse du vent effectif (figure 6.4.2 (a)), la variabilité spatiale de la direction du vent (figure 6.4.2 (b)), le bilan d'émission (figure 6.4.2 (c)), le rapport entre le signal anthropique estimé et la variabilité du signal XCO<sub>2</sub> en dehors du panache (figure 6.4.2 (d)), la variabilité du signal XCO<sub>2</sub> en dehors du panache (figure 6.4.2 (e)), la courbure de l'axe central du panache (figure (f)), l'angle optimisé lors de l'inversion (figure 6.4.2 (h)) et le rayon optimisé lors de l'inversion (figure 6.4.2 (i)).

Des différences dans les sensibilités entre les inversions faites sur les SAMs et celles sur les pseudo-images peuvent être observées. Tout d'abord l'IQR de l'écart inversion-inventaire est bien plus important quand les inversions sont faites avec les SAMs par rapport aux inversions avec les pseudo-images, et ce quelque soit la variable d'intérêt. Plusieurs raisons peuvent être avancées a priori : erreurs dans le champ de vent utilisé, erreur dans l'estimation des émissions par l'inventaire, plus faible échantillonnage des SAMs par rapport aux pseudo-images... Les comparaisons de la suite de ce chapitre vont nous donner des indications sur l'importance de chacune.

Concernant la sensibilité de l'écart inversion-inventaire à la variabilité spatiale de la direction du vent (figure 6.4.2 (b)), le biais de l'écart inversion-inventaire est faible (<10%) pour les inversions avec les pseudo-images et quand cette variabilité est inférieure au critère de sélection défini dans le chapitre 5. La corrélation entre l'écart inversion-inventaire et la variabilité spatiale de la direction du vent est alors nulle (corrélation de -0.01). Ce n'est pas le cas pour les inversions avec les SAMs. En effet, nous pouvons voir une corrélation négative (-0.11) qui subsiste après application du critère de sélection sur la variabilité spatiale de la direction du vent. Cette différence peut en partie s'expliquer par une mauvaise estimation de la variabilité de la direction du vent due au plus faible nombre de points utilisés pour réaliser cette estimation. Cette raison peut expliquer que le biais négatif dans l'écart inversion-inventaire apparaisse avant le critère de sélection pour les inversions faites avec les SAMs. Mais cela n'explique pas que ce biais négatif soit plus important quand les inversions sont faites avec les SAMs que quand elles sont faites avec les pseudo-images. Une raison pourrait expliquer ce biais est qu'une forte variabilité de la direction du vent peut être liée à des erreurs plus importantes dans le champ de vent utilisé, erreurs qui résultent en une sous-estimation des émissions lors de l'inversion (cf section 3.2.5.1).

Concernant la sensibilité de l'écart inversion-inventaire au budget d'émissions estimé avec l'inventaire (figure 6.4.2 (c)), l'IQR de l'écart inversion-inventaire est plus important pour les villes émettant moins que le critère de sélection défini dans le chapitre 5 que pour celle émettant plus, et ce pour les inversions faites avec les SAMs et celles faites avec les pseudo-images. Cependant, nous avons une corrélation négative visible entre l'écart inversion-inventaire et le budget d'émission de l'inventaire pour les inversions faite avec les SAMs mais pas pour celles faites avec les pseudo-images. Cette corrélation est encore plus prononcée quand nous appliquons la sélection des SAMs et des pseudo-images basée sur la variabilité de la direction du vent : la corrélation est alors de -0.24 pour les inversions faites avec les SAMs et -0.05 pour celles faites avec les pseudo-images. Cette corrélation implique que (i) soit nos méthodes d'inversion surestiment les émissions des villes à faibles émissions et sous-estiment celles des villes à fortes émissions, (ii) soit que l'inventaire ODIAC sous-estime les émissions des villes à faibles émissions et surestime les émissions des villes à fortes émissions. Cette question étant complexe, nous l'étudions à part dans la section 6.4.5.

Concernant la sensibilité de l'écart inversion-inventaire à la variabilité du signal XCO<sub>2</sub> hors du panache (figure 6.4.2 (e)), une variation importante de l'écart inversion-inventaire pour les inversions faites avec les SAMs est visible, variation non présente pour les inversions faites avec les pseudo-images. Cela peut s'expliquer par le très faible nombre de SAMs pour le décile concerné de la variabilité du signal XCO<sub>2</sub> hors du panache. Nous pouvons voir que la distribution de la variabilité du signal XCO<sub>2</sub> hors du panache est très différente pour les SAMs de celle pour les pseudo-images. Cette différence pose question sur la représentativité (i) soit des concentrations de fond simulées par notre modèle pour nos pseudo-images, (ii) soit du bruit de mesure dans nos pseudo-images. Nous pensons que la différence s'explique par la représentativité du bruit de mesure dans nos pseudo-images. En effet nous avons une corrélation entre (i) la moyenne pour une SAM de l'incertitude estimée pour les valeurs de XCO<sub>2</sub> (*xco2\_uncertainty* dans le produit L2) et (ii) la variabilité du signal XCO<sub>2</sub> hors du panache de 0.35 pour les SAMs. Mais cette conclusion

est discutable, de fortes concentrations de fond pouvant entraîner une forte incertitude estimée pour les valeurs de XCO<sub>2</sub>. Il n'y a pas de différences notables entre les inversions avec les pseudo-images et avec les SAMs pour les sensibilités aux autres variables.

### 6.4.3 . Vérification des critères de sélection définis dans le chapitre précédent

Quand nous n'appliquons aucun des critères de sélection définis au chapitre 5, l'écart inversion-inventaire a une distribution caractérisée par une médiane et un IQR de -16% et 78% avec les pseudo-images du chapitre 5, et de -28% et 164% avec les SAMs (cf tableau 6.2). Nous avons donc à la fois un biais et un IQR plus grand dans le cas des inversions avec les SAMs par rapport à celles avec les pseudo-images du chapitre précédent.

	pseudo-images chap. 5	SAMs OCO-3
pas de criteres	-16% [-53%,25%] (100%)	-31% [-84%,73%] (100%)
var. spt. de la dir. du vent	-5% [-34%,32%] (63%)	-10% [-68%,123%] (52%)
budget d'émissions	-15% [-48%,18%] (69%)	-42% [-86%,35%] (66%)
2 critères combinés	-6% [-32%,23%] (46%)	-22% [-74%,87%] (36%)

Table 6.2 – Distribution (médiane [1er quartile, 3eme quartile] (pourcentage de (pseudo-)images retenues) de l'écart inversion-inventaire avec la méthode GP2. Les résultats sont présentés en appliquant (ou non) les critères de sélection définis au chapitre précédent.

Quand nous appliquons seulement le critère de sélection sur la variabilité spatiale de la direction du vent, le biais de l'écart inversion-inventaire tombe à -5% pour les inversions avec les pseudo-images et -6% pour celles avec les SAMs. L'IQR de l'écart inversion-inventaire reste bien plus important pour les inversions avec les SAMs (IQR de 191%) que pour les inversions avec les pseudo-images (IQR de 66%).

Le biais de l'écart inversion-inventaire pour les inversions avec les pseudo-images reste le même avec et sans application du critère de discrimination sur le budget d'émission (cf table 6.2). Pour les inversions avec les SAMs, le biais augmente fortement quand nous appliquons le critère de discrimination, passant de -28% à -42%. Cette augmentation du biais est due à la corrélation négative entre le budget d'émission et l'écart inversion-inventaire, corrélation que nous avons mise en avant dans la sous-section précédente pour les inversions avec les SAMs. Pour rappel cette corrélation n'est pas présente pour les inversions avec les pseudo-images. Concernant l'IQR de l'écart inversion-inventaire, il diminue quand nous appliquons le critère de discrimination des (pseudo-)images basé sur le budget des émissions (cf table 6.2).

Quand les 2 critères de sélection sont appliqués, le biais et l'IQR sont assez faible (-6% et 55%) pour les inversions avec les pseudo-images, et importants (-22% et 161%) pour les inversions avec les SAMs. Pour les inversion avec les pseudo-images, le critère de sélection sur la variabilité spatiale de la direction du vent permet principalement de réduire le biais de l'écart inversion-inventaire, quand le critère de discrimination sur le budget d'émission permet de réduire l'IQR. Pour les inversions avec les SAMs, nous avons une réduction du biais inversion-inventaire grâce au critère sur la variabilité spatiale de la direction du vent mais une augmentation du biais avec l'application du critère de discrimination basé sur le budget d'émission. Comme nous l'avons vu, cette augmentation est due à une corrélation entre l'écart inversion-inventaire et le budget d'émissions, réalisé à partir de l'inventaire. Nous pensons que ce biais trouve son origine principalement dans des erreurs dans le budget d'émissions de l'inventaire, comme nous l'avons décrit dans la sous-section précédente. Ainsi, nous choisissons de ne garder que le critère de sélection sur la variabilité de la direction du vent dans la suite de ce chapitre.

### 6.4.4 . Étude de nouveaux critères

Nous étudions la sensibilité de la différence des estimations inversion-inventaire pour les SAMs ayant passés le critère de sélection sur la variabilité spatiale du vent dans la PBL. La figure 6.4 montre les sensibilités aux variables que nous avons identifiées par l'analyse mentionnée en section 6.2.2

Nous montrons que l'IQR de l'écart inversion-inventaire diminue avec la taille des SAMs, ce qui semble indiquer que notre inversion est plus précise pour les SAMs avec le plus de pixels, comme nous pouvions nous y attendre.



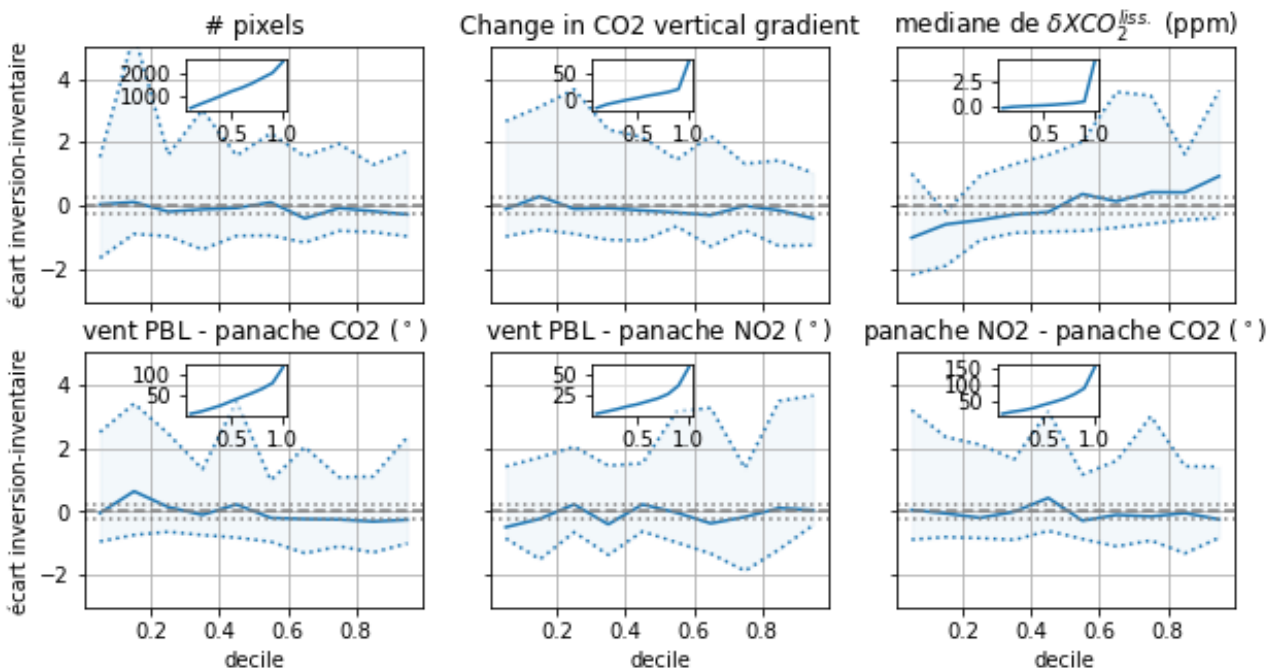


Figure 6.4 – Sensibilité de l'écart inversion-inventaire à différents paramètres identifiés lors de l'analyse.

Aucune tendance nette ne se dessine dans les sensibilités des différences entre les directions des panaches de CO<sub>2</sub>, de NO<sub>2</sub>, ou du vent moyen dans la PBL. Une sensibilité à l'une des différences impliquant la direction du vent dans la PBL pourrait indiquer que les erreurs du champ de vent sont importantes par rapport aux autres sources d'erreurs. Cette absence de sensibilité, au contraire, semble indiquer que les erreurs dans la direction des champ de vent ne sont pas prépondérante pour expliquer l'écart inversion-inventaire, et donc que elle n'influence que faiblement l'erreur que nous faisons sur l'estimation des émissions.

L'IQR de l'écart inversion-inventaire semble diminuer avec la moyenne de la variable *co2\_grad\_del*. Cette variable représente le changement dans le gradient vertical de CO<sub>2</sub> entre le gradient fourni a priori à l'algorithme d'inversion du transfert radiatif et le gradient estimé par cet algorithme. Comme nous l'avons vu dans la section 2.2, l'algorithme d'inversion du transfert radiatif calcule non pas la colonne de XCO<sub>2</sub> mais la concentration en CO<sub>2</sub> à plusieurs niveaux de l'atmosphère. Ce gradient de CO<sub>2</sub> est calculé pour chaque pixel comme la concentration de CO<sub>2</sub> à la surface moins la concentration de CO<sub>2</sub> au niveau situé à 0.63 fois la pression de surface ([Osterman, 2020]). Ce changement dans le gradient vertical de CO<sub>2</sub> est corrélé (0.13) aux émissions dans ODIAC. Cette corrélation pourrait s'expliquer si les flux de surface des villes ne sont pas utilisés pour calculer le profil a priori de CO<sub>2</sub>. Au-dessus des villes fortement émettrices, nous aurions un fort gradient de CO<sub>2</sub> estimé par l'algorithme de transfert radiatif et un faible gradient a priori. Cela résulterait en un changement important. A l'inverse de faibles émissions résulteraient en un faible changement du gradient. Or les faibles émissions, comme nous l'avons vu, sont plus difficiles à estimer. Nous aurions donc des émissions faibles qui, d'une part, donneraient un fort IQR dans l'écart inversion-inventaire et, d'autre part, donneraient un faible changement dans le gradient de CO<sub>2</sub>. Nous aurions ainsi une corrélation sans causalité. Cependant, une autre raison peut être avancée. Ce paramètre est identifié par l'équipe OCO comme ayant une corrélation avec des variations jugées fallacieuses dans les données XCO<sub>2</sub> qui sont calculées par l'algorithme d'inversion du transfert radiatif ([Osterman et al., 2017]). Cette corrélation et ces variations fallacieuses ont été identifiées en comparant les valeurs de XCO<sub>2</sub> calculées par l'algorithme d'inversion du transfert radiatif aux mesures

TCCON. La correction paramétrique du biais faite pour calculer les données XCO<sub>2</sub> utilisées ici se sert de ce paramètre. Ce paramètre est aussi utilisé pour le contrôle qualité des données. Ainsi, ces variations pourraient être un résidu de ces corrections.

Nous pouvons de plus voir une corrélation positive entre le biais de l'écart inversion-inventaire et la médiane des valeurs lissées de XCO<sub>2</sub> dans le panache. Cette médiane représente l'amplitude typique du panache. Plusieurs explications peuvent-être données : (i) les forts signaux sont factices ; (ii) il y a un biais dans l'inventaire, celui-ci sous-estimerait les villes fortement émettrices et sur-estimerait les faibles, (iii) nos méthodes sont biaisées quand appliquées aux données OCO-3, nous sur-estimerions les villes à fortes émissions et sous-estimerions les villes à faibles émissions.

Mis à part la variable *co2\_grad\_del*, aucune sensibilité de l'écart inversion-inventaire aux variables des fichiers *OCO3\_L2\_Lite\_FP* n'a été détecté, malgré une attention particulière portée aux variables caractérisant l'albédo de surface pour les différentes bandes spectrales ou les variables caractérisant la présence d'aérosols.

#### 6.4.5 . Comparaison des sensibilités de l'écart inversion-inventaire aux estimation d'émissions de l'inventaire et de l'inversion

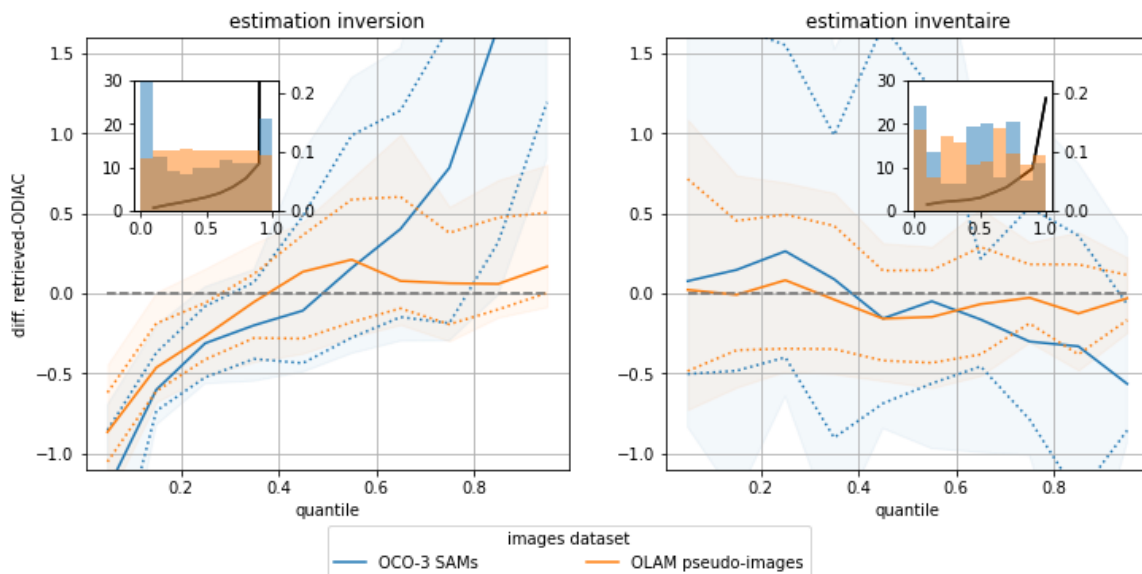


Figure 6.5 – Évolution de l'écart inversion-inventaire pour les SAMs (bleu) et l'erreur sur l'estimation des émissions pour les pseudo-images OLAM (orange) en fonction de l'estimation par l'inversion (gauche) et l'estimation par inventaire (droite).

Dans le cas des inversions avec des pseudo-images, le résultat d'une inversion donnant de faibles émissions a de grandes chances d'être sous-estimée (cf figure 6.5). La remarque semble valoir aussi pour les inversions avec les SAMs. À l'opposé, le résultat d'une inversion donnant de fortes émissions a de grandes chances d'être exacte (non biaisé) dans le cas des pseudo-images. Cela ne semble pas être le cas pour les inversions de SAMs, où nous avons des écarts de l'ordre de +100% par rapport aux estimations d'ODIAC. Nous n'avons pas d'explications pour ces dynamiques différentes. Cela confirme tout de même que l'IQR important de l'écart inversion-inventaire vient majoritairement de la dégradation de la précision de nos méthodes quand nous passons des pseudo-images aux SAMs, et ne vient pas, ou en tout cas beaucoup moins, des erreurs dans l'inventaire.

La sensibilité de l'écart inversion-inventaire à l'estimation des émissions par l'inventaire a déjà été présentée plus haut (cf section 6.4.2). La corrélation négative entre l'écart inversion-inventaire et l'estimation de l'inventaire implique que (i) soit nos méthodes d'inversion surestiment les émissions des villes à faibles émissions et sous-estiment celles

des villes à fortes émissions, (ii) soit que l'inventaire ODIAC sous-estime les émissions des villes à faibles émissions et surestime les émissions des villes à fortes émissions. Nous avons vu dans le paragraphe précédent (panel droit de la figure 6.5) que nos estimations d'émissions élevées sont très probablement surestimées, mais cela ne veut pas dire que nous surestimons les émissions fortes et donc que nous pouvons rejeter l'hypothèse (i). En l'absence d'études, à notre connaissance, ayant montré une sous-estimation par ODIAC des émissions des villes, nous ne pouvons trancher entre les deux hypothèses.

## 6.5 . Étude des variations temporelles des émissions

L'analyse faite ici reprend celle effectuée par [Chevallier et al., 2022]. Notre étude se sert de l'inventaire ODIAC comme référence tandis que celle de [Chevallier et al., 2022] utilise EDGAR<sup>7</sup>. Nous étudions les estimations d'émissions pour les SAMs ayant passés le critère de sélection sur la variabilité spatiale du vent dans la PBL. Nous mettons de côté les estimations pouvant être considérées comme aberrantes : les estimations d'émissions négatives (81 SAMs) et une SAM (Boston, 16/06/2021) dont l'inversion donne des émissions de 2GtCO<sub>2</sub>/hr, soit un dixième des émissions anthropiques mondiales annuelles émises en une heure.

La régression en base logarithmique entre les estimations des émissions de l'inversion et celles de l'inventaire donne des résultats similaires à ceux de [Chevallier et al., 2022] quand nous utilisons tous les SAMs, avec une pente légèrement plus forte que la bissectrice (voir figure 6.6). Notre régression donne  $y = 0.47 * x^{0.9}$  pour un  $r^2$  de 0.56, quand le  $r^2$  de [Chevallier et al., 2022] est de 0.41 avec les données OCO-3 (pas forcément en mode SAM) et 0.44 avec les données OCO-2. Cependant, contrairement à cette étude, notre régression linéaire en base 10 (système décimal usuel) ne donne pas des droites proche de la bissectrice. Toujours en utilisant les SAMs des villes et des centrales thermiques, nous avons un cycle saisonnier médian cohérent entre l'inventaire et l'inversion (amplitudes respective de 2.4-3.4ktCO<sub>2</sub>/h et 2.9-4.5ktCO<sub>2</sub>/h) avec un minimum en juillet-août. Les mois montrant les minimums sont les mêmes que ceux trouvés par [Chevallier et al., 2022], cependant nos variations d'amplitude sont plus faibles d'un facteur 3. Contrairement à [Chevallier et al., 2022], les variations sont légèrement plus importantes à l'échelle de la semaine avec une amplitude de 3.0-5.1ktCO<sub>2</sub>/h, avec le minimum atteint le week-end. Ces variations ne sont cependant pas négligeables par rapport à l'amplitude des estimations d'émissions (IQR≈6ktCO<sub>2</sub>/h pour les estimations de nos inversions).

Quand nous étudions séparément les villes et les centrales thermiques, l'accord entre les émissions estimées par l'inversion et par l'inventaire augmente (du point de vue des régressions en base 10 et en base logarithmique) pour les centrales thermiques ( $r^2$  de 0.87 et 0.31) mais diminue fortement pour les villes ( $r^2$  de 0.10 et 0.00). Pour les centrales thermiques, la régression linéaire se rapproche de la bissectrice. En ce qui concerne l'analyse temporelle, le nombre de SAMs pour chaque jour ou mois est trop faible (moins d'une vingtaine) pour faire une interprétation. Le cycle saisonnier garde la même amplitude de variations (3.7-5.7ktCO<sub>2</sub>/h avec les inversions) pour les villes. Le cycle hebdomadaire semble quant à lui plus chaotique.

## 6.6 . Focus sur certaines villes

Nous nous concentrons sur les 2 villes avec le plus de SAMs passant le critère de sélection sur la variabilité spatiale de la direction du vent : Baotou en Chine (17 SAMs) et Buenos Aires en Argentine (21 SAMs) ; ainsi que sur les 2 villes pour lesquelles nous avons plus de 8 SAMs passant le critère de sélection sur la variabilité spatiale de la direction du vent et qui ont le plus petit IQR relatif de la distribution des estimations par nos inversions : Guadalajara au Mexique (IQR de 72%), New-Delhi en Inde (IQR de 88%).

---

7. <https://edgar.jrc.ec.europa.eu/>

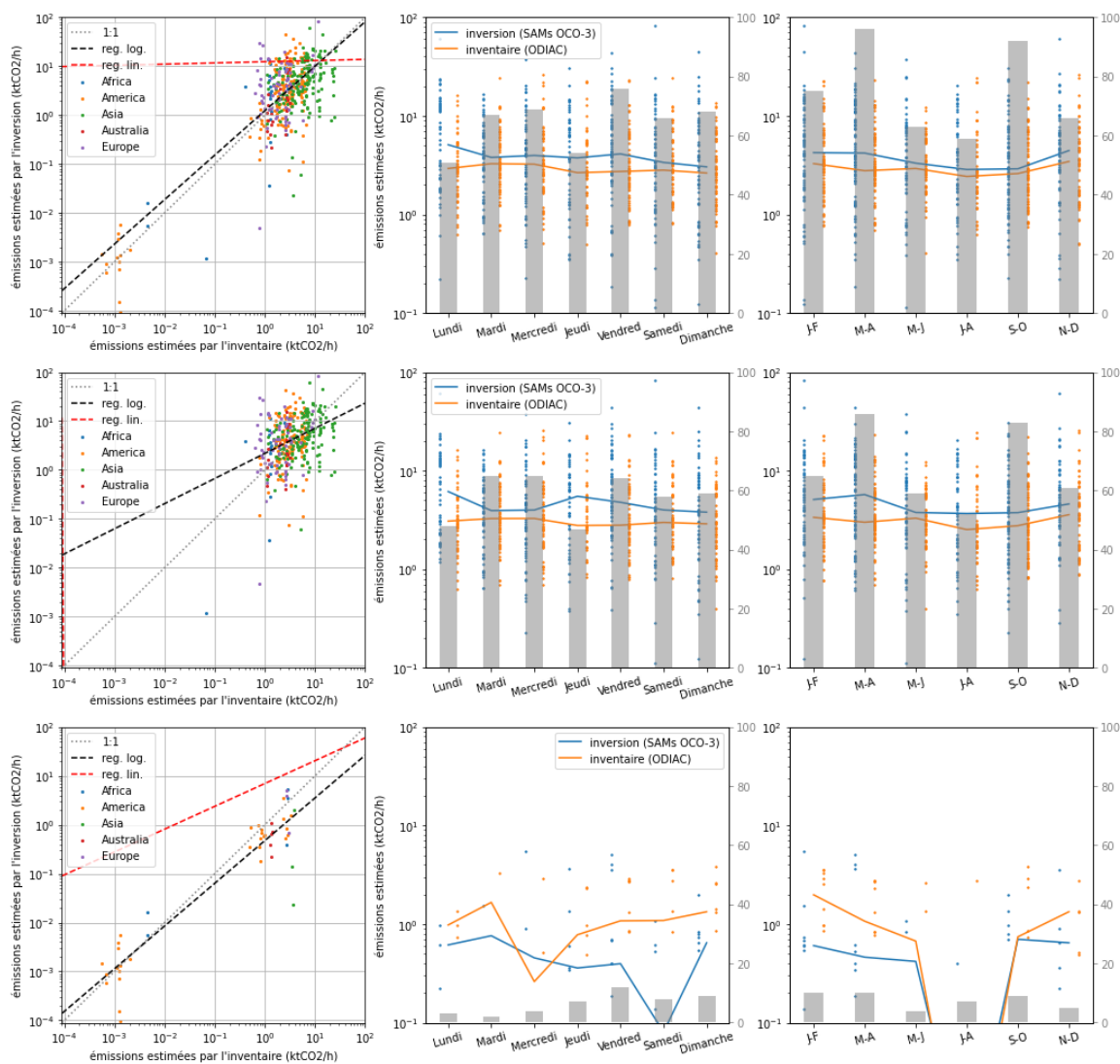


Figure 6.6 – Les diagrammes de dispersion dans la colonne de gauche représentent les valeurs d'émission estimées avec l'inversion par rapport aux valeurs d'inventaire, les couleurs reflétant la localisation géographique. La ligne grise est la ligne de régression en logarithme de base 10, celle en rouge la ligne de régression classique et la ligne noire est la bissectrice. Les autres graphes montrent les estimation d'émissions par l'inversion (bleu) et par l'inventaire (orange) en fonction du jour de la semaine (colonne du milieu) et du mois de l'année (+6 dans l'hémisphère sud) moyenné 2 par 2 (colonne de droite). Dans chaque graphique, le nombre de cas par case est reporté en gris (axe de droite). La médiane pour chaque groupe est également reportée sous forme de courbe. La première ligne montre les résultats pour tous les SAMs retenus, la deuxième ligne pour les SAMs retenus au-dessus de villes et la troisième pour les SAMs retenus au-dessus des centrales thermiques. Les limites sont fixées à 0.1 et 100 ktCO<sub>2</sub>/hr sur les 2 colonnes de gauche pour des questions de visualisation (26 points au total sur les 532 SAMs retenus ne sont donc pas montrés).

ville	estimation moyenne (écart-type) de nos inversions	estimation médiane (IQR) de nos inversions	estimation ODIAC
Baotou	7.4 ktCO <sub>2</sub> /h (6.5 ktCO <sub>2</sub> /h)	6.4 ktCO <sub>2</sub> /h (10.5ktCO <sub>2</sub> /h)	7.0 ktCO <sub>2</sub> /h
Buenos Aires	5.3 ktCO <sub>2</sub> /h (5.6 ktCO <sub>2</sub> /h)	4.4 ktCO <sub>2</sub> /h (5.1ktCO <sub>2</sub> /h)	5.5 ktCO <sub>2</sub> /h
Guadalajara	4.5 ktCO <sub>2</sub> /h (3.3 ktCO <sub>2</sub> /h)	3.7 ktCO <sub>2</sub> /h (2.5ktCO <sub>2</sub> /h)	1.6 ktCO <sub>2</sub> /h
New-Dehli	6.0 ktCO <sub>2</sub> /h (5.3 ktCO <sub>2</sub> /h)	6.2 ktCO <sub>2</sub> /h (3.5ktCO <sub>2</sub> /h)	12.4 ktCO <sub>2</sub> /h

Table 6.3 – Estimation des émissions pour les 4 villes retenues.

Comme vu précédemment, Baotou est une ville chinoise, située dans la province de Mongolie Intérieure. Son agglomération compte 2.7 millions d'habitants (en 2020) et c'est un important centre de production d'acier et de métaux rares. Buenos Aires est la capitale de l'Argentine et sa population s'élève à 3 millions d'habitants (en 2021). Le sud de la ville compte toujours d'importants sites de production industrielle, l'industrie comptant pour 16% de son PIB<sup>8</sup>. La ville est située à l'embouchure du fleuve la Plata. La zone au Nord-Est de la ville, où se situe le fleuve et son embouchure, n'est donc pas couverte par les SAMs. Guadalajara est la ville la moins émettrice, d'après ODIAC et nos inversions, des villes retenues. Cette ville mexicaine compte 1.5 millions d'habitants en 2015 (5 millions pour son agglomération). Elle est située dans une vallée à 1500m d'altitude, dans une région montagneuse. Elle est considérée comme le pôle industriel de l'ouest du Mexique<sup>9</sup>. New-Dehli est la capitale de l'Inde, c'est une municipalité incluse dans la ville de Dehli. Cette dernière compte 16 millions d'habitants (en 2011)<sup>10</sup> et est réputée pour être l'une des plus polluée au monde<sup>11</sup>.

Pour Baotou et Buenos Aires, les 2 villes pour lesquelles nous avons le plus de SAMs, nos estimations sont donc en accord avec ODIAC (cf tableau 6.3), avec un écart de la moyenne de nos inversions de +6% pour Baotou (-9% pour la médiane) et -4% pour Buenos Aires (-20% pour la médiane). Pour les 2 autres villes, l'écart est plus important. Nos estimations moyennes et médiane pour New-Delhi sont deux fois plus faibles que celle d'ODIAC, et plus de deux fois plus grande pour Guadalajara. Ces 2 villes sont cependant deux villes pour lesquelles nos méthodes sont moins fiables. En effet, la présence d'aérosols liés à la pollution pour New-Delhi peut résulter dans des biais au niveau du panache de XCO<sub>2</sub>. Pour Guadalajara, sa localisation au coeur d'une vallée peut causer une accumulation du CO<sub>2</sub> et donc une surestimation des émissions. Une meilleure connaissance de la topographie et de la dynamique atmosphérique locale (circulation de vallée) pourrait aider à améliorer les performances.

Quand on s'intéresse aux estimations des SAMs individuellement, il est difficile d'y identifier des cycles saisonnier ou horaire du fait du faible nombre de SAMs et de la forte variabilité des résultats d'inversion (cf 6.7).

## 6.7 . Discussion

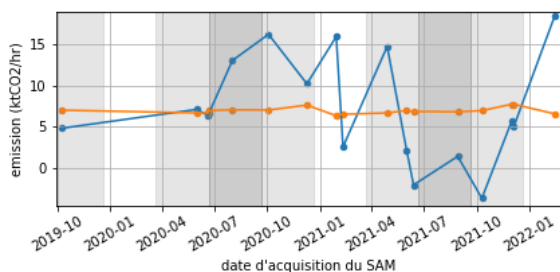
Les variables utilisées pour nos critères sont des estimations, leurs valeurs exactes étant inaccessibles. Pour la variabilité spatiale de la direction du vent, le champ de vent porte des erreurs. De plus la résolution est plus faible que dans les chapitres précédents. Les champs de vent sont donc artificiellement lissés et la variabilité spatiale de la direction du vent peut donc être sous-estimée. Nous avons entre 94 (1er quartile) et 200 (3ème quartile) points sont utilisés pour la plupart des SAMs passant le critère sur la variabilité partielle de la direction du vent. Cela devrait assurer une certaine stabilité de l'estimation. Pourtant, le seuil du critère sur la variabilité spatiale de la direction du vent semble moins précis avec les SAMs qu'avec les pseudo-images (cf section 6.4.2). La vitesse du vent moyen dans la PBL est corrélée à la variabilité spatiale de la direction du vent mais a été mis de côté comme critère au profit de celle-ci dans les chapitres 3 et 5. La sensibilité de l'écart inversion-inventaire à la vitesse moyenne du vent dans

8. [https://en.wikipedia.org/wiki/Buenos\\_Aires](https://en.wikipedia.org/wiki/Buenos_Aires)

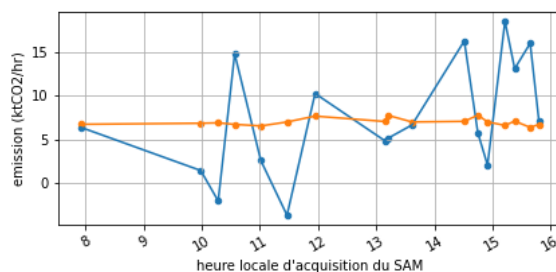
9. <https://en.wikipedia.org/wiki/Guadalajara>

10. <https://en.wikipedia.org/wiki/Delhi>

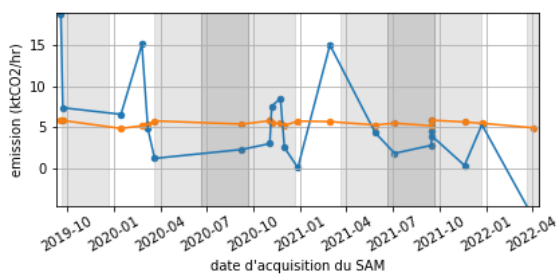
11. [https://en.wikipedia.org/wiki/Air\\_pollution\\_in\\_Delhi](https://en.wikipedia.org/wiki/Air_pollution_in_Delhi)



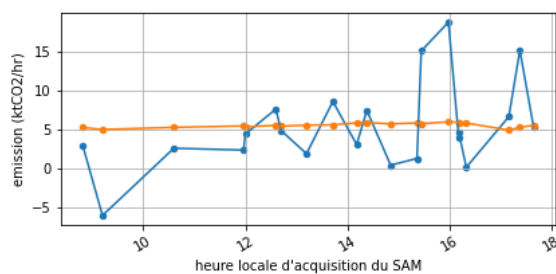
(a) Baotou (date)



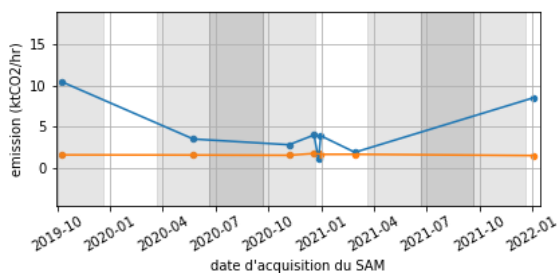
(b) Baotou (heure)



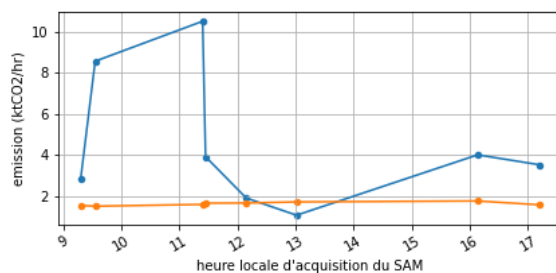
(c) Buenos Aires (date)



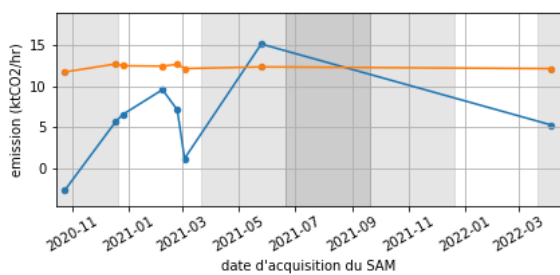
(d) Buenos Aires (heure)



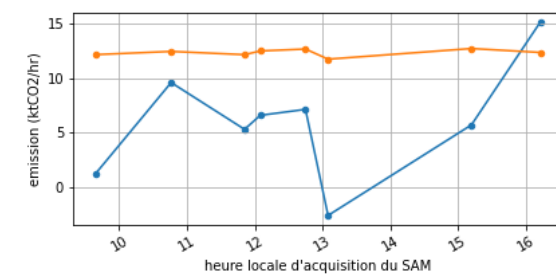
(e) Guadalajara (date)



(f) Guadalajara (heure)



(g) New-Delhi (date)



(h) New-Delhi (heure)

Figure 6.7 – Estimation des émissions par notre méthode d'inversion (bleu) et par ODIAC (orange) en fonction de la date d'acquisition des SAMs (colonne de gauche) et de l'heure d'acquisition des SAMs (colonne de droite) pour les 4 villes retenues.

la PBL semble plus stable que celle à la variabilité spatiale de la direction du vent. Cette vitesse moyenne est donc peut-être préférable à utiliser comme critère dans le cas de données réelles, à faible résolution.

Cependant il est difficile de juger précisément les critères de sélection en se basant sur la distribution de l'écart inversion-inventaire calculée avec les SAMs, l'inventaire n'étant pas exempt d'erreurs. Nous avons de plus vu que certaines villes ne sont pas couvertes par ODIAC (cf 6.2.1.1). Les estimations mensuelles spatialisées de l'inventaire ODIAC ne sont donc pas exactes. De plus les émissions estimées par nos inversions sont instantanées. Le fait de les comparer à des émissions mensuelles expliquent en partie l'écart inversion-inventaire observé. A titre indicatif, l'inventaire à haute résolution spatiale et temporelle utilisé dans le chapitre 3 montrait des variations de l'ordre de 20%.

Nous obtenons un taux d'échec important avec nos méthodes lors du passage des pseudo-images aux données des SAMs (cf 6.4). Cependant, nous avons manqué de temps pour explorer en détails les raisons des échecs de nos inversions et pensons que étudier les raisons de ces échecs pourrait réduire ce taux d'échec. Les futures missions satellites comme CO2M auront en outre des fauchées, et donc des images, bien plus larges, ce qui devrait diminuer la proportion d'images inutilisables en raison d'un échantillonnage mal centré ou mal dimensionné, à l'instar de celles présentées en section 6.3. Les échecs liés à l'échantillonnage seraient alors seulement dus à la présence de nuages.

## 6.8 . Conclusion

Nous avons montré dans ce chapitre que la configuration d'inversion basée sur la méthode GP2 était bien plus résiliente face aux données réelles que les configurations CS et IME. Ceci est dû au fait que les méthodes CS et IME supposent une couverture complète du panache et sont donc sensibles à l'absence de mesure. A l'inverse, la méthode GP2 est résiliente à cette absence. Nous avons de plus montré que les critères de discrimination définis dans le chapitre précédent étaient pertinents et nous avons pu voir que notre configuration d'inversion GP2 se comportait globalement de la même manière sur les SAMs que sur les pseudo-images. La différence entre les estimations des émissions faites par les inversions et par les inventaires a tout de même un IQR 3 fois plus élevé que l'erreur sur l'estimation des émissions avec les pseudo-images, et ceci après sélection des (pseudo-)images basée sur la variabilité spatiale de la direction du vent.

Nous réussissons avec les estimations réalisées à détecter les variations du cycle saisonnier des émissions des villes avec une faible confiance (section 6.5). Les résultats présentés dans la section 6.6 semble condamner toute tentative de suivi des émissions de villes en particulier avec un aussi faible nombre d'images par villes que celles fournies par OCO-3. Cependant, les émissions moyennes estimées par nos inversions pour les 2 villes avec le plus de SAMs ayant passés notre critère de sélection sont proches de celles ODIAC et nous laissent donc des raisons d'optimisme. Les nouvelles missions devraient en effet amener plus d'images ce qui devrait rendre plus facile les estimations.

## 6.9 . Annexe : SAMs utilisées pour les estimations de la section 6.6

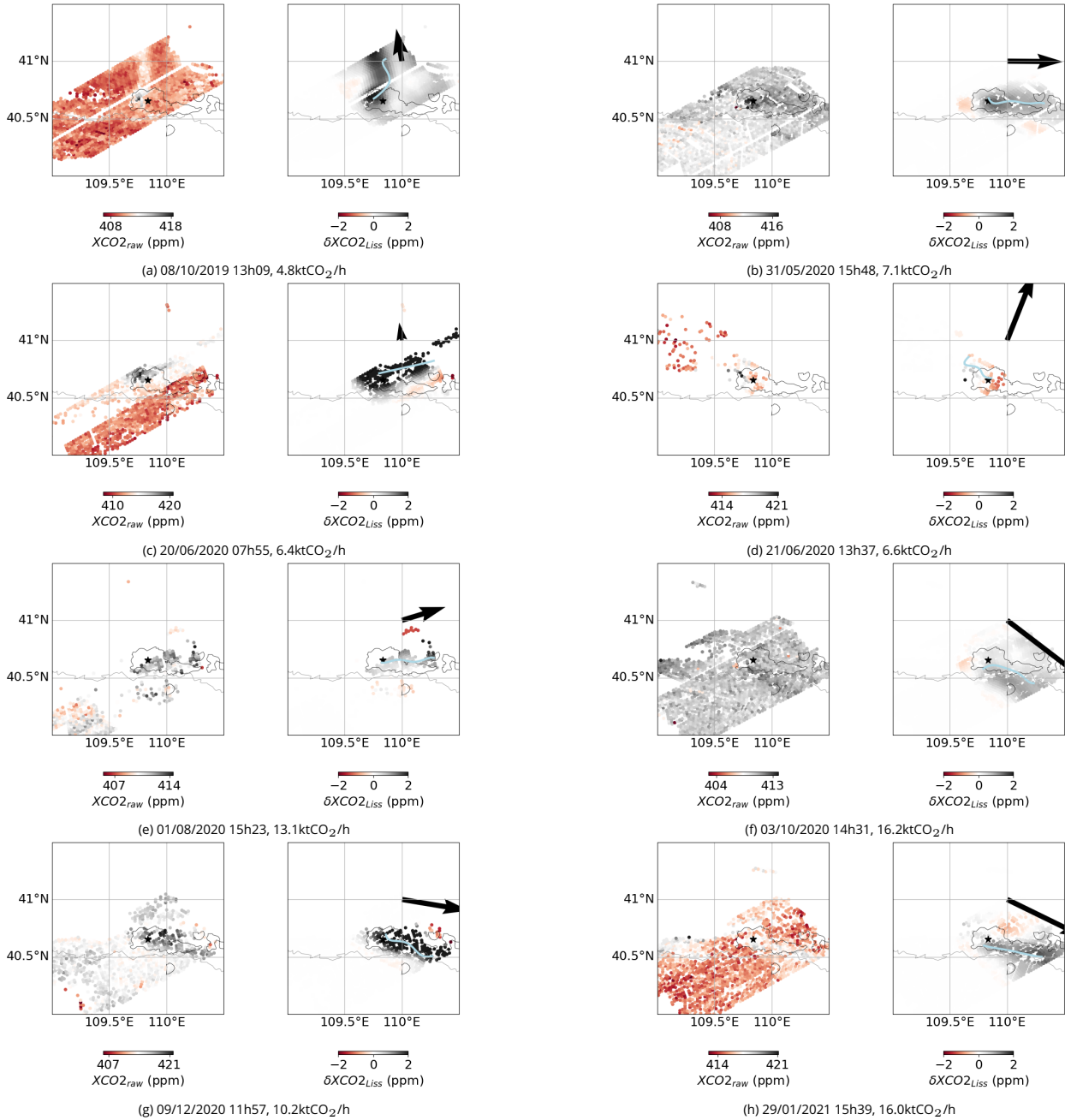


Figure 6.8 – Illustration des SAMs prises au-dessus de Baotou et utilisés dans la section 6.6 pour l'estimation des émissions de la ville. Pour chaque sous-figure, la figure de gauche représente les données XCO<sub>2</sub> fournies dans les fichiers *OCO3\_L2\_Lite\_FP* et la figure de droite les données XCO<sub>2</sub> lissées auxquelles les concentrations de fond estimées ont été soustraites.



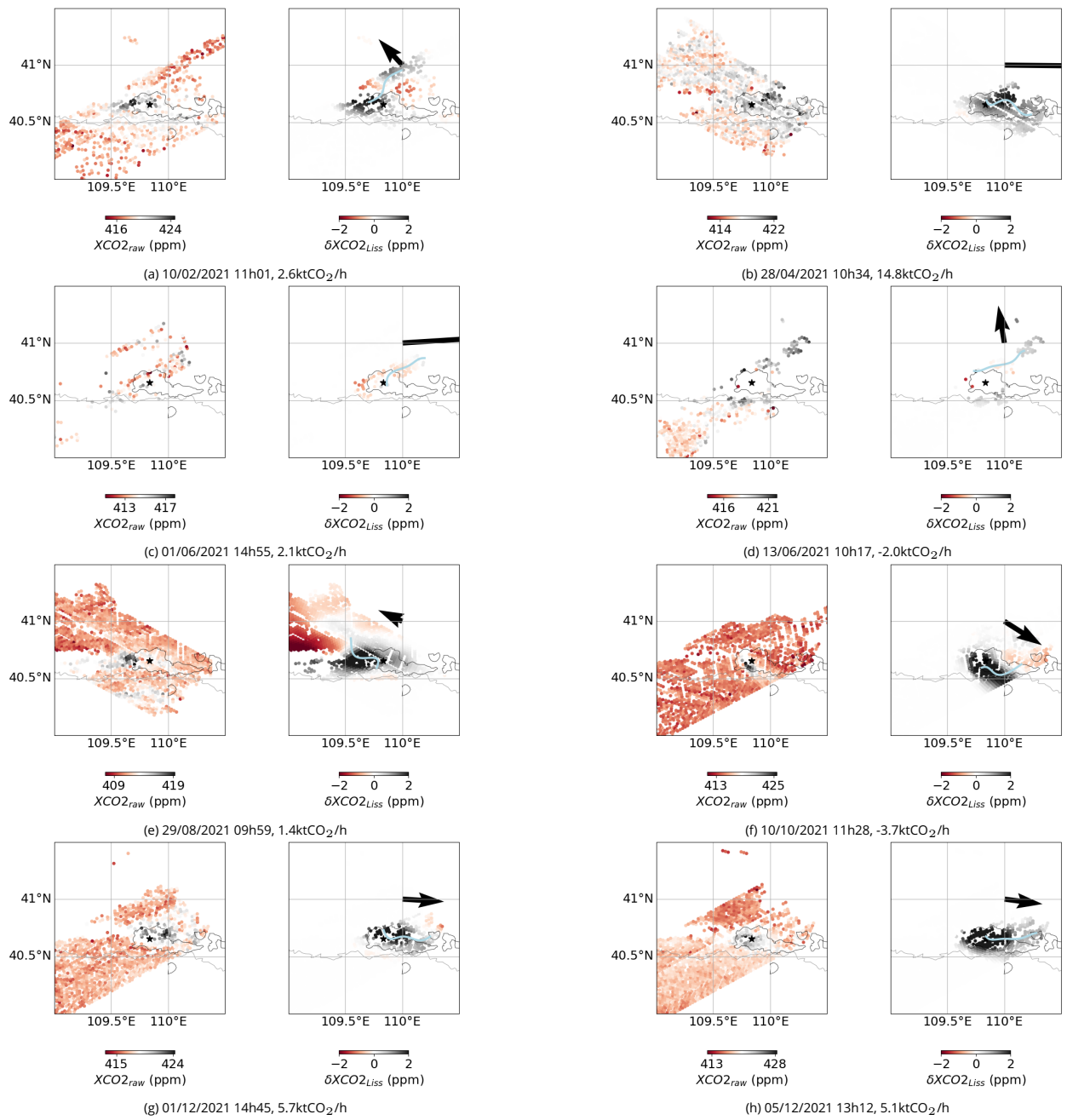
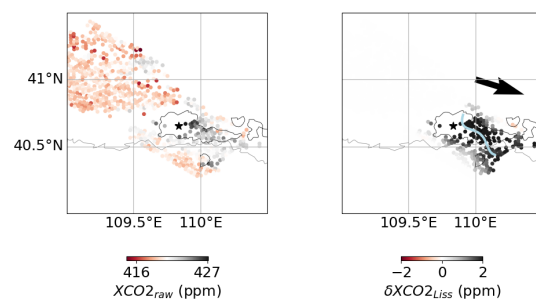


Figure 6.9 – Pareil que 6.8.



(a) 14/02/2022 15h13, 18.5ktCO<sub>2</sub>/h

Figure 6.10 – Pareil que 6.8.

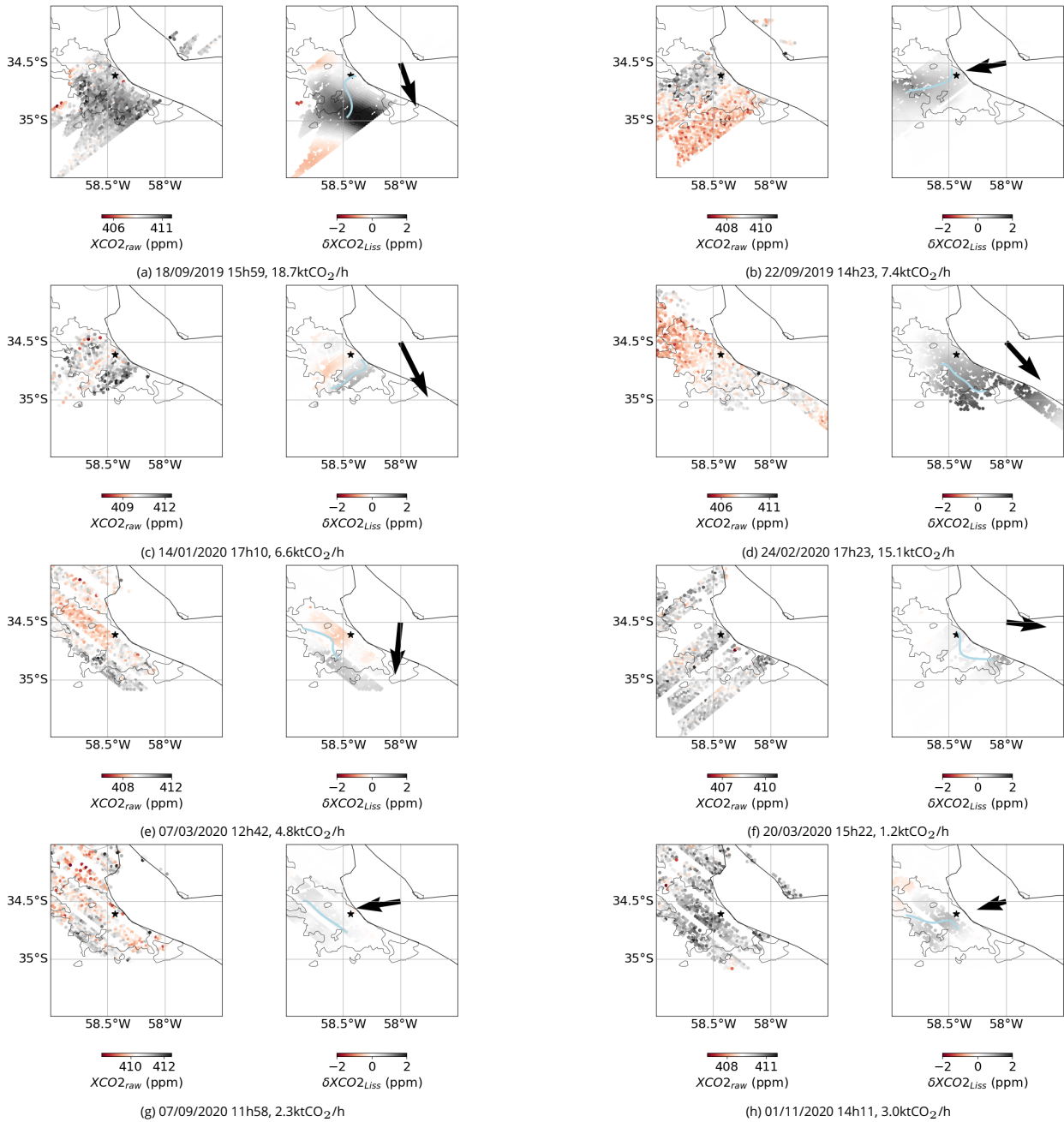


Figure 6.11 – Illustration des SAMs prises au-dessus de Buenos-Aires et utilisés dans la section 6.6 pour l'estimation des émissions de la ville. Pour chaque sous-figure, la figure de gauche représente les données XCO<sub>2</sub> fournies dans les fichiers *OCO3\_L2\_Lite\_FP* et la figure de droite les données XCO<sub>2</sub> lissées auxquelles les concentrations de fond estimées ont été soustraites.

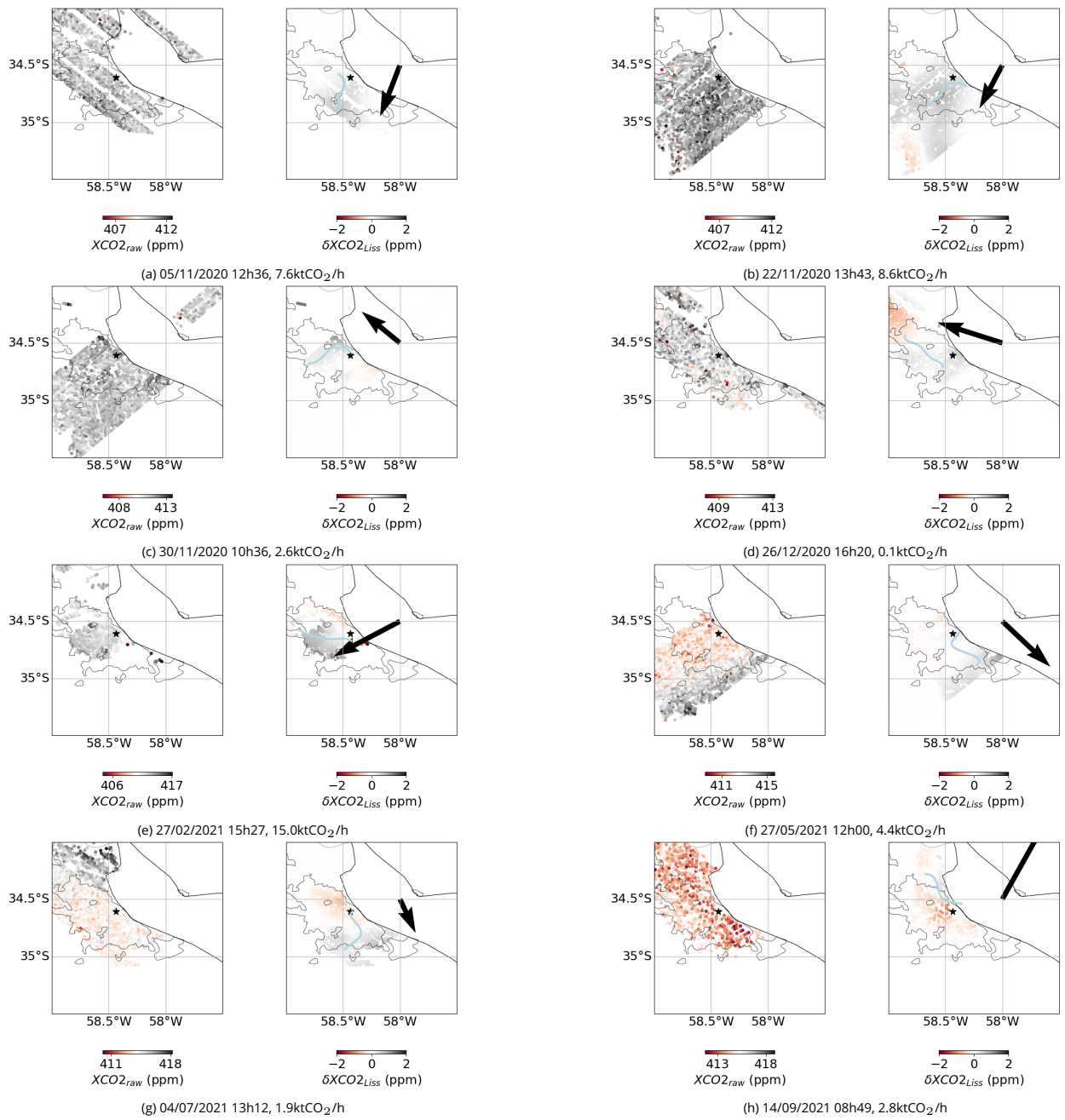


Figure 6.12 – Pareil que 6.11.

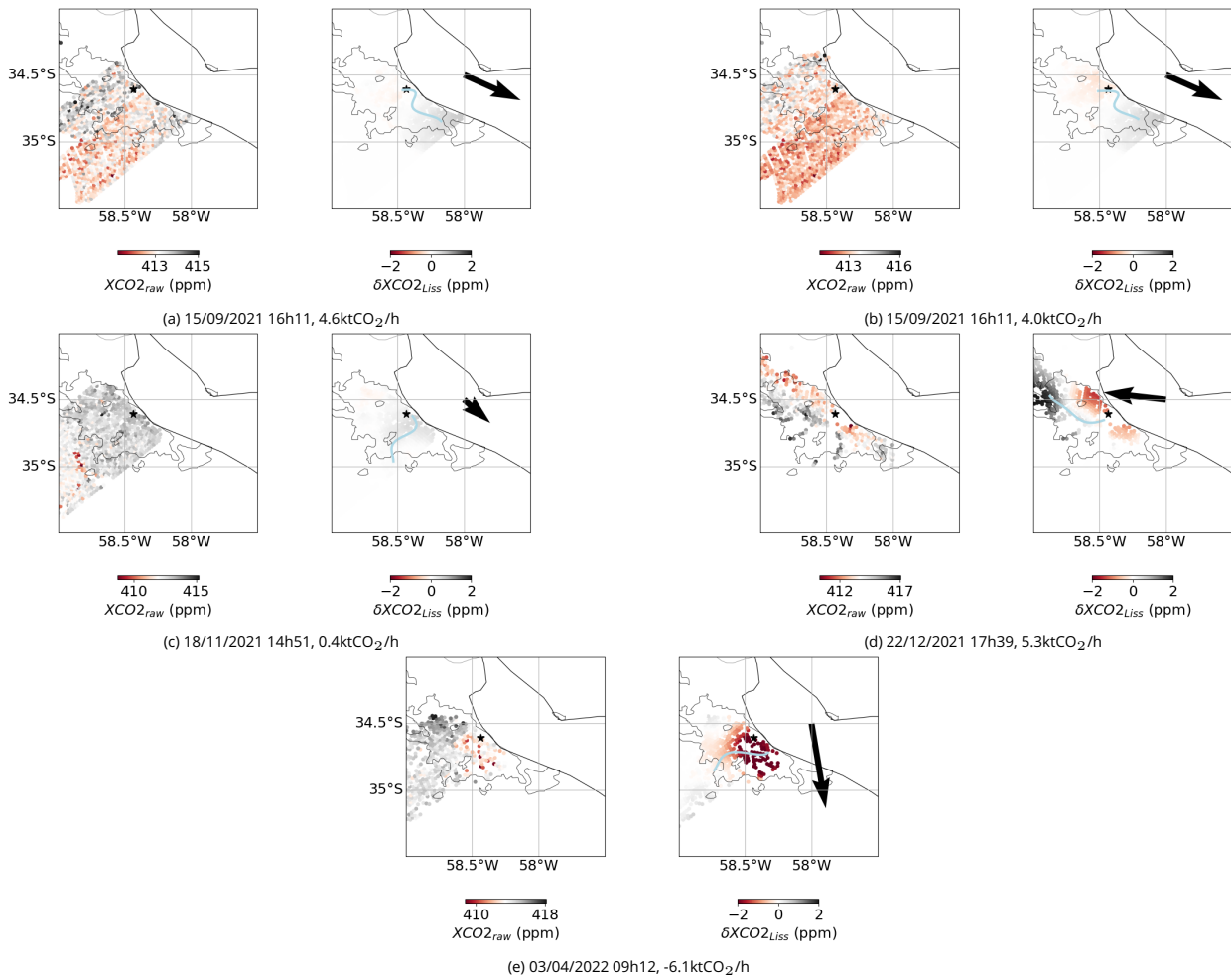


Figure 6.13 – Pareil que 6.11.

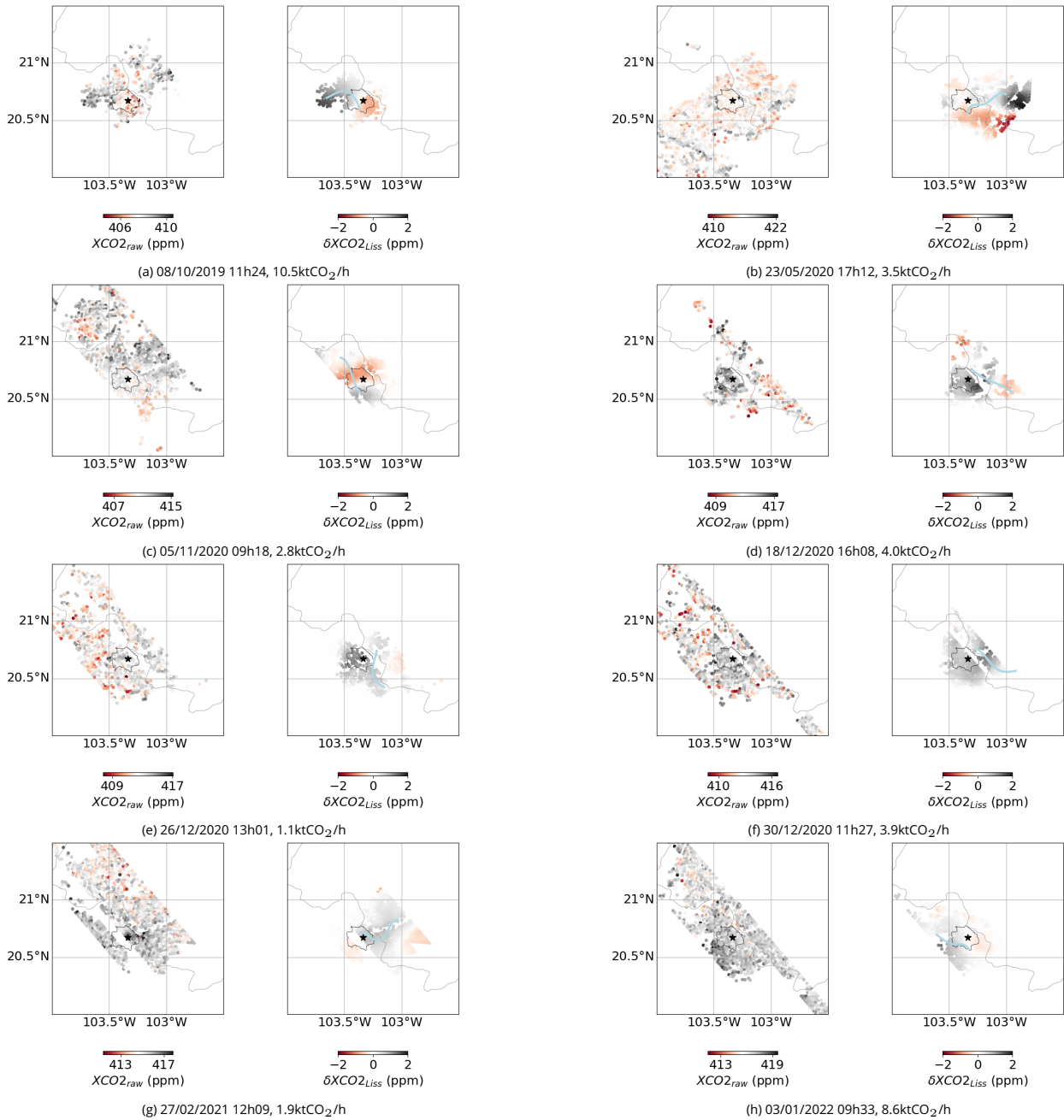


Figure 6.14 – Illustration des SAMs prises au-dessus de Guadalajara et utilisées dans la section 6.6 pour l'estimation des émissions de la ville. Pour chaque sous-figure, la figure de gauche représente les données  $XCO_2$  fournies dans les fichiers *OCO3\_L2\_Lite\_FP* et la figure de droite les données  $XCO_2$  lissées auxquelles les concentrations de fond estimées ont été soustraites.

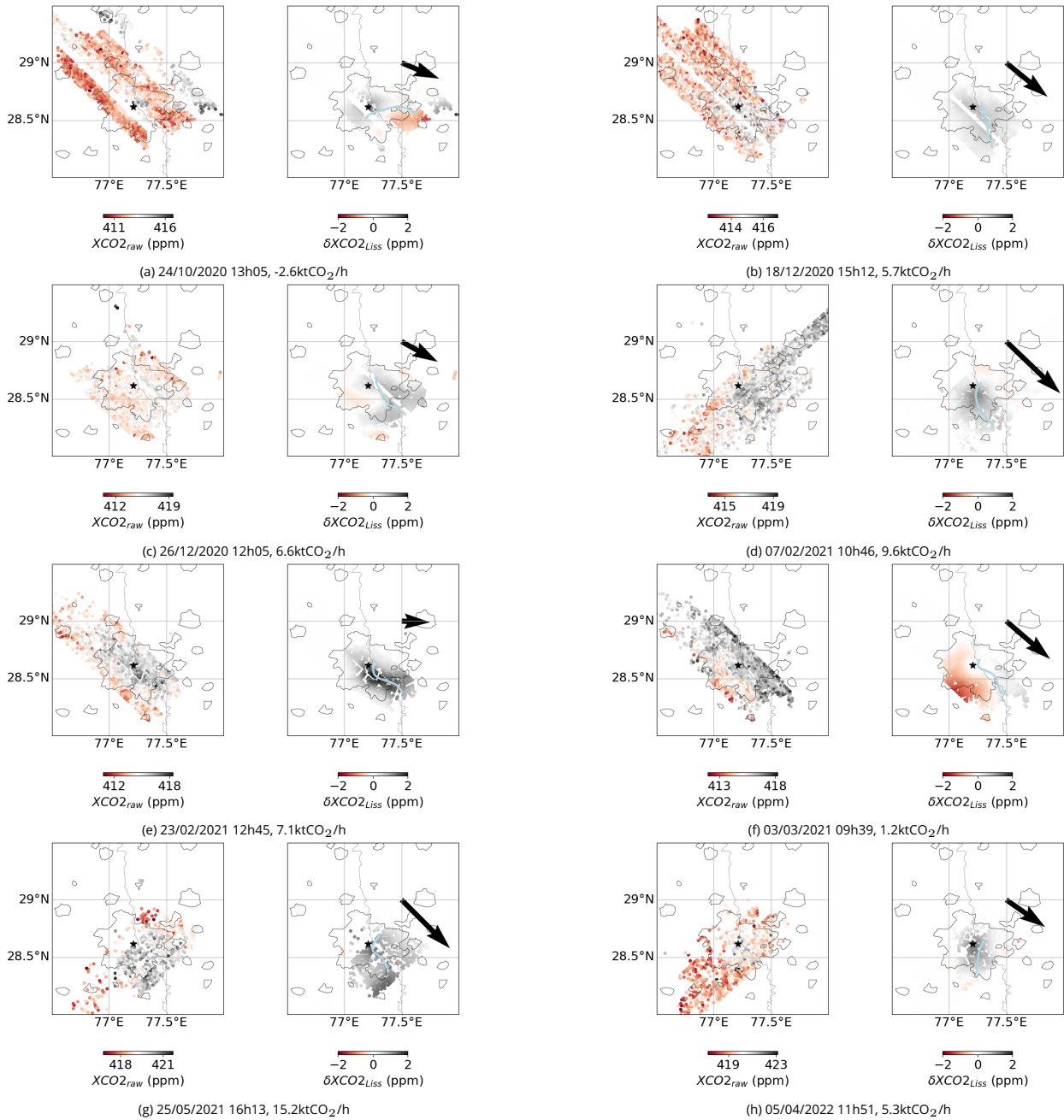


Figure 6.15 - Illustration des SAMs prises au-dessus de New-Delhi et utilisés dans la section 6.6 pour l'estimation des émissions de la ville. Pour chaque sous-figure, la figure de gauche représente les données XCO<sub>2</sub> fournies dans les fichiers *OCO3\_L2\_Lite\_FP* et la figure de droite les données XCO<sub>2</sub> lissées auxquelles les concentrations de fond estimées ont été soustraites.

## Conclusion

Le travail de cette thèse s'inscrit dans un cadre général d'évaluation du potentiel de l'imagerie satellitaire pour estimer les émissions de CO<sub>2</sub> urbaines. En effet de nombreuses villes se sont engagées sur des objectifs de réduction de leurs émissions et l'observation par satellite de leurs émissions pourrait apporter une information indépendante sur leur bilan et leur trajectoire de réduction. Du fait du nombre d'images nécessaire pour espérer évaluer avec précision les émissions des villes et du grand nombre de villes pour lesquelles une telle estimation serait intéressante, il est nécessaire de disposer de méthodes de calcul fiables et à faible temps de calcul. Notre travail s'est donc concentré sur des méthodes à faible temps de calcul appliquées à des images de panaches de CO<sub>2</sub> telles celles fournies actuellement par OCO-3 et telles celles que fournira la mission CO2M, i.e. avec des images à la résolution  $\approx 2\text{km}$ .

Ce travail s'est scindé en trois axes d'analyses. Le premier a permis de définir les configurations optimales des méthodes d'inversion que nous avons retenues en estimant les erreurs associées. Cela s'est fait en utilisant des données synthétiques de panaches urbains. Le deuxième axe a permis de définir de manière objective des critères de discrimination des (pseudo-)images de XCO<sub>2</sub> basés sur les conditions d'observation afin de pouvoir mettre de côté les images donnant des estimations fortement biaisées, et fournir une indication sur la précision de l'estimation pour celles évaluées comme donnant des résultats probablement non biaisés. Enfin, le dernier axe a permis de réévaluer les méthodes d'estimation des émissions et les conclusions des parties précédentes, cette fois-ci avec des données réelles (des SAMs OCO-3 et des données OCO-2). Nous avons ainsi pu fournir, pour quelques villes, une première analyse de résultats d'inversions faites avec des données réelles.

Le premier axe a nécessité le développement d'un code d'inversion, code nécessairement modulaire pour (i) pouvoir tester plusieurs méthodes pour chacune des étapes de l'inversion et (ii) assurer son applicabilité à n'importe quel cas (données réelles/synthétiques, différents modèles en données synthétiques, différentes villes...), alors que le développement initial ne concernait que des données synthétiques générées par le modèle WRF pour la ville de Paris. Ce deuxième point nous a permis de le réutiliser quasiment directement sur de grands ensembles d'images synthétiques générées par le modèle OLAM et d'images réelles issues de OCO-3. Nous avons construit ainsi un code automatique applicable à toutes les images collectées sur un grand nombre de métropoles. Plusieurs configurations des méthodes d'inversion, basées sur une revue préalable de la littérature, ont été testées durant ce premier axe. Nous avons pu ainsi mettre en évidence les configurations optimales de ces méthodes d'inversion à faible temps de calcul, tout en détaillant précisément les raisons de ces choix. La décomposition de l'erreur sur l'estimation des émissions réalisée au cours de cette étude nous a aussi permis de montrer que les étapes d'estimation de la concentration de fond et d'estimation du vent effectif étaient celles qui portaient une grande partie de l'erreur finale sur l'estimation des émissions.

Avec le second axe d'analyse, nous nous sommes attelés à définir des critères objectifs de sélection des images pour lesquelles l'estimation des émissions est plus précise. En effet l'étude réalisée avec les pseudo-images de Paris ainsi que l'étude des données OCO-2 à proximité de Lahore nous ont montré l'importance des conditions d'observations, et notamment de l'homogénéité spatiale de la direction du vent, conditions nécessaires pour obtenir une estimation précise. Nous avons donc pu montrer, avec une méthode basée sur un apprentissage par arbres de décision, que les observations pour lesquelles la variabilité spatiale de la direction du vent est grande ( $>11^\circ$ ) engendrent des émissions qui seront fortement sous-estimées et imprécises. A l'inverse, quand la variabilité spatiale de la direction du vent est faible, les estimations des émissions seront en général non-biaisées, et la précision de ces estimations augmente avec les émissions de la ville.

Avec le troisième axe d'analyse, nous avons appliqué nos méthodes à des données réelles : les données OCO-2 à proximité de Lahore et les SAMs OCO-3. Ces SAMs sont les premières images de XCO<sub>2</sub> suffisamment grandes pour couvrir les villes et leurs panaches détectables (identifiables par rapport à la concentration de fond). Grâce



aux développements algorithmiques du chapitre 3, nous avons pu appliquer nos méthodes de façon automatique aux SAMs et aux données OCO-2 sélectionnés. Les analyses des chapitres 3 et 5 sur les sensibilités de l'erreur sur l'estimation aux conditions d'observations sont elles aussi venues nourrir nos analyses et les critères de discrimination utilisés en support de ce troisième axe d'analyse. Nous avons ainsi revisité et réévalué la pertinence de nos critères de discrimination dans le chapitre 6. Nous avons cependant montré que les estimations des émissions par notre méthode d'inversion et par un inventaire donnaient des résultats très différents (IQR de 191%). Cette écart entre les 2 estimations est en partie imputable à l'erreur de notre méthode, mais une part de cet écart provient également de l'erreur sur l'estimation des émissions par l'inventaire lui-même, dont l'amplitude reste mal connue. Malgré nos analyses, il reste difficile de déterminer la part des deux. La distribution de l'erreur réelle avec nos méthodes n'est pas accessible en pratique, mais nous pouvons estimer que son IQR est compris entre 66% (erreur théorique, cf chapitre 5) et 191% (écart inversion-inventaire, cf 6). Nous avons montré que, bien qu'il soit possible de détecter, avec une confiance relativement faible, des évolutions mensuelles dans les estimations prises dans leur ensemble, le faible nombre de SAM exploitable sur une année, et donc leur faible représentativité temporelle, et la faible précision de nos méthodes ne permettent pas à l'heure actuelle de fournir de estimations d'émissions crédibles pour des villes.

Malgré ces conclusions au premier abord pessimistes quand nous passons à des données réelles, il faut rappeler que OCO-3 n'a pas vocation à permettre le suivi des émissions des villes mais plutôt à explorer et soutenir le développement de méthodes quantitatives qui seront appliquées aux futures missions spatiales (par ex. CO2M). En effet, le mode SAM de cette mission ne fournit qu'un nombre limité d'images sur les villes et les point sources afin de ne pas réduire la couverture globale des modes Nadir et Glint ([Taylor et al., 2020]), et ce sur un temps d'exploitation relativement court (légèrement supérieure à 3 ans). Aux problèmes d'échantillonnage temporelle s'ajoutent les erreurs encore importantes des méthodes d'inversions liées à l'étendue des SAM (résolution et extension spatiale encore limitées) ainsi que des erreurs systématiques mal caractérisées (par ex. albedo, aérosols, angle de vue). Un certain nombre de développements pourrait aider à l'amélioration de la précision que nous pouvons espérer sur les estimations d'émissions actuelles, en particulier des développements sur la qualité des mesures dont une fraction importante est encore filtrée.

Le nombre d'images exploitables va très largement augmenter dans les prochaines années : tout d'abord avec le lancement de la constellation CO2M, dont la fauchée est trois fois plus grande que la taille actuelle d'un SAM typique ; et ensuite avec le satellite geostationnaire GeoCarb qui pourra théoriquement couvrir toute l'Amérique en une journée avec une résolution de 5-10km.

Pour les images passant notre critère de sélection, nous pensons que nos méthodes fournissent des estimations aussi bonnes que les méthodes utilisant des modèles plus complexes (cf chapitre 4) pour 2 raisons : (i) ces méthodes estiment de la même manière les concentrations de fond (or cette étape porte une grande part de l'erreur finale dans nos méthodes), et (ii) les modèles atmosphériques utilisés ne sont pas exempts d'erreur. Cependant, nous pensons que la précision des estimations peut augmenter dans le futur. Cela peut passer par une amélioration de la précision locale des modèles atmosphériques. Mais le temps de calcul de ces modèles reste limitant pour fournir des estimations fréquentes sur un grand nombre de métropoles. Le développement de méthodes hybrides plus complexes permettraient de généraliser la connaissance des modèles avec, par exemple, le développement de réseaux de neurones entraînés sur des images synthétiques générées par des modèles. Cette dernière famille de méthode commence à apparaître dans notre communauté lors de conférences<sup>12</sup>.

L'apparition d'appareils observant la colonne de XCO<sub>2</sub> avec des pixels à l'échelle sub-kilométrique peut améliorer la précision des estimations, comme cela s'est vu dans la communauté du méthane ces dernières années ([Thompson et al., 2016]). Ces mesures donneront des sondages sur le panache très proche de la source avec une amplitude plus élevée que ceux actuellement en orbite, lissés à 2km. Nous pourrions ainsi mieux estimer les concentrations de fond, source majeure d'erreur, et aussi récupérer plus de données exploitables en passant entre les nuages.

---

12. [https://www.nies.go.jp/soc/doc/IWGGMS-18/0/7-5\\_Joffrey\\_Dumont\\_Le\\_Brazidec.pdf](https://www.nies.go.jp/soc/doc/IWGGMS-18/0/7-5_Joffrey_Dumont_Le_Brazidec.pdf)

Cependant, même si ces futurs développements tiennent leurs promesses, les observations satellitaires ne semblent pas à elles seules suffire à estimer les émissions des villes. En effet, l'accès aux émissions nocturnes n'est pas possible avec des instruments de mesure passifs comme ceux des missions actuelles (OCO) ou futures (CO2M, GeoCarb). La fréquence des mesures nécessaire pour saisir les évolutions des émissions sur les cycles saisonniers, hebdomadaires et horaires semble de plus en plus compliquée à atteindre du fait de la couverture nuageuse. Ainsi, le développement en parallèle d'indicateurs des variations d'activité à fine échelle temporelle, comme Carbon Monitor ([Liu et al., 2020]), semble nécessaire. Ces indicateurs pourraient permettre d'extrapoler temporellement les estimations faites avec les observations satellitaires.



## Bibliographie

- [Ahmadov et al., 2007] Ahmadov, R., Gerbig, C., Kretschmer, R., Koerner, S., Neininger, B., Dolman, A. J., and Sarrat, C. (2007). Mesoscale covariance of transport and CO<sub>2</sub> fluxes : Evidence from observations and simulations using the WRF-VPRM coupled atmosphere-biosphere model. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 112(22) :1–14.
- [Ahmadov et al., 2009] Ahmadov, R., Gerbig, C., Kretschmer, R., Körner, S., Rödenbeck, C., Bousquet, P., and Ramonet, M. (2009). Comparing high resolution WRF-VPRM simulations and two global CO<sub>2</sub> transport models with coastal tower measurements of CO<sub>2</sub>. *Biogeosciences*, 6(5) :807–817.
- [Bell et al., 2022] Bell, E., Dell, C. W. O., Taylor, T. E., Merrelli, A., Nelson, R. R., Kiel, M., Eldering, A., Rosenberg, R., and Fisher, B. (2022). Exploring bias in OCO-3 Snapshot Area Mapping mode via geometry , surface , and aerosol effects. (August) :1–32.
- [Bovensmann et al., 2010] Bovensmann, H., Buchwitz, M., Burrows, J. P., Reuter, M., Krings, T., Gerilowski, K., Schneising, O., Heymann, J., Tretner, A., and Erzinger, J. (2010). A remote sensing technique for global monitoring of power plant CO<sub>2</sub> emissions from space and related applications. *Atmospheric Measurement Techniques*, 3(4) :781–811.
- [Bréon et al., 2015] Bréon, F.-M., Broquet, G., Puygrenier, V., Chevallier, F., Xueref-Remy, I., Ramonet, M., Dieu-donné, E., Lopez, M., Schmidt, M., Perrussel, O., and Ciais, P. (2015). An attempt at estimating Paris area CO<sub>2</sub> emissions from atmospheric concentration measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(4) :1707–1724.
- [Broquet et al., 2018] Broquet, G., Bréon, F.-M., Renault, E., Buchwitz, M., Reuter, M., Bovensmann, H., Chevallier, F., Wu, L., and Ciais, P. (2018). The potential of satellite spectro-imagery for monitoring CO<sub>2</sub> emissions from large cities. *Atmospheric Measurement Techniques*, 11(2) :681–708.
- [Buchwitz et al., 2017] Buchwitz, M., Schneising, O., Reuter, M., Heymann, J., Krautwurst, S., Bovensmann, H., Burrows, J. P., Boesch, H., Parker, R. J., Somkuti, P., Detmers, R. G., Hasekamp, O. P., Aben, I., Butz, A., Frankenberg, C., and Turner, A. J. (2017). Satellite-derived methane hotspot emission estimates using a fast data-driven method. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(9) :5751–5774.
- [Cambaliza et al., 2015] Cambaliza, M. O., Shepson, P. B., Bogner, J., Caulton, D. R., Stirm, B., Sweeney, C., Montzka, S. A., Gurney, K. R., Spokas, K., Salmon, O. E., Lavoie, T. N., Hendricks, A., Mays, K., Turnbull, J. C., Miller, B. R., Lauvaux, T., Davis, K. J., Karion, A., Moser, B., Miller, C. E., Obermeyer, C., Whetstone, J., Prasad, K., Miles, N. L., and Richardson, S. J. (2015). Quantification and source apportionment of the methane emission flux from the city of Indianapolis. *Elementa*, 3 :1–18.
- [Cambaliza et al., 2014] Cambaliza, M. O. L., Shepson, P. B., Caulton, D. R., Stirm, B., Samarov, D., Gurney, K. R., Turnbull, J. C., Davis, K. J., Possolo, A., Karion, A., Sweeney, C., Moser, B., Hendricks, A., Lauvaux, T., Mays, K., Whetstone, J., Huang, J., Razlivanov, I., Miles, N. L., and Richardson, S. J. (2014). Assessment of uncertainties of an aircraft-based mass balance approach for quantifying urban greenhouse gas emissions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(17) :9029–9050.
- [Canadell et al., 2021] Canadell, J. G., Monteiro, P. M., Costa, M. H., da Cunha, L. C., Cox, P. M., Eliseev, A. V., Henson, S., Ishii, M., Jaccard, S., Koven, C., Lohila, A., Patra, P. K., and Zickfeld, K. (2021). Global Carbon and Other Biogeochemical Cycles and Feedbacks. In *Climate Change 2021 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, pages 673–816. Cambridge edition.

- [Chen et al., 2019] Chen, H. W., Zhang, F., Lauvaux, T., Davis, K. J., Feng, S., Butler, M. P., and Alley, R. B. (2019). Characterization of Regional-Scale CO<sub>2</sub> Transport Uncertainties in an Ensemble with Flow-Dependent Transport Errors. *Geophysical Research Letters*, 46(7) :4049–4058.
- [Chen et al., 2020] Chen, J., Zhao, F., Zeng, N., and Oda, T. (2020). Comparing a global high-resolution downscaled fossil fuel CO<sub>2</sub> emission dataset to local inventory-based estimates over 14 global cities. *Carbon Balance and Management*, 15(1) :1–15.
- [Chevallier et al., 2022] Chevallier, F., Broquet, G., Zheng, B., Ciais, P., and Eldering, A. (2022). Large CO<sub>2</sub> emitters as seen from satellite : Comparison to a gridded global emission inventory . *Geophysical Research Letters*.
- [Chevallier et al., 2020] Chevallier, F., Zheng, B., Broquet, G., Ciais, P., Liu, Z., Davis, S. J., Deng, Z., Wang, Y., Bréon, F.-M., and O'Dell, C. W. (2020). Local Anomalies in the Column-Averaged Dry Air Mole Fractions of Carbon Dioxide Across the Globe During the First Months of the Coronavirus Recession. *Geophysical Research Letters*, 47(22).
- [Ciais et al., 2015] Ciais, P., Crisp, D., Denier van der Gon, H., Engelen, R., Janssens-Maenhout, G., Heimann, M., Rayner, P., and Scholze, M. (2015). Towards a European Operational Observing System to Monitor Fossil CO<sub>2</sub> emissions. Technical report, Copernicus, European Commission.
- [Ciais et al., 2019] Ciais, P., Tan, J., Wang, X., Roedenbeck, C., Chevallier, F., Piao, S. L., Moriarty, R., Broquet, G., Le Quéré, C., Canadell, J. G., Peng, S., Poulter, B., Liu, Z., and Tans, P. (2019). Five decades of northern land carbon uptake revealed by the interhemispheric CO<sub>2</sub> gradient. *Nature*, 568(7751) :221–225.
- [Ciais et al., 2020] Ciais, P., Wang, Y., Andrew, R., Bréon, F.-M., Chevallier, F., Broquet, G., Nabuurs, G. J., Peters, G., Mcgrath, M., Meng, W., Zheng, B., and Tao, S. (2020). Biofuel burning and human respiration bias on satellite estimates of fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions. *Environmental Research Letters*, 15(7).
- [Crippa et al., 2021] Crippa, M., Guizzardi, D., Muntean, M., Schaaf, E., Lo Vullo, E., Solazzo, E., Monforti-Ferrario, F., Olivier, J., and Vignati, E. (2021). EDGAR v6.0 greenhouse gas emissions [Dataset].
- [Crisp et al., 2004] Crisp, D., Atlas, R. M., Breon, F. M., Brown, L. R., Burrows, J. P., Ciais, P., Connor, B. J., Doney, S. C., Fung, I. Y., Jacob, D. J., Miller, C. E., O'Brien, D., Pawson, S., Randerson, J. T., Rayner, P., Salawitch, R. J., Sander, S. P., Sen, B., Stephens, G. L., Tans, P. P., Toon, G. C., Wennberg, P. O., Wofsy, S. C., Yung, Y. L., Kuang, Z., Chudasama, B., Sprague, G., Weiss, B., Pollock, R., Kenyon, D., and Schroll, S. (2004). The Orbiting Carbon Observatory (OCO) mission. *Advances in Space Research*, 34(4) :700–709.
- [Crisp et al., 2014] Crisp, D., Boesch, H., Brown, L., Castano, R., Christi, M., Connor, B., Eldering, A., Fisher, B., Frankenberg, C., Gunson, M., McDuffie, J., Miller, C. E., Natraj, V., O'Dell, C., O'Brien, D., Polonski, I., Osterman, G. B., Oyafuso, F., Smyth, M., Thompson, D. R., Toon, G. C., and Spurr, R. (2014). OCO - 2 Level 2 Full Physics Retrieval Algorithm Theoretical Basis. 2 :OCO D-65488.
- [Crowell et al., 2019] Crowell, S., Baker, D., Schuh, A., Basu, S., Jacobson, A. R., Chevallier, F., Liu, J., Deng, F., Feng, L., McKain, K., Chatterjee, A., Miller, J. B., Stephens, B. B., Eldering, A., Crisp, D., Schimel, D., Nassar, R., O'Dell, C. W., Oda, T., Sweeney, C., Palmer, P. I., and Jones, D. B. (2019). The 2015-2016 carbon cycle as seen from OCO-2 and the global in situ network. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(15) :9797–9831.
- [David et al., 2021] David, L., Breon, F. M., and Chevallier, F. (2021). XCO<sub>2</sub> estimates from the OCO-2 measurements using a neural network approach. *Atmospheric Measurement Techniques*, 14(1) :117–132.
- [Deng et al., 2017] Deng, A., Lauvaux, T., Davis, K. J., Gaudet, B. J., Miles, N., Richardson, S. J., Wu, K., Sarmiento, D. P., Hardesty, R. M., Bonin, T. A., Brewer, W. A., and Gurney, K. R. (2017). Toward reduced transport errors in a high resolution urban CO<sub>2</sub> inversion system. *Elementa*, 5.
- [Dhokal et al., 2022] Dhokal, S., Minx, J. C., Toth, F. L., Abdel-Aziz, A., Maria J. Figueroa Meza, Hubacek, K., Jonckheere, I. G. C., Kim, Y.-G., Nemet, G. F., Pachauri, S., Tan, X., and Wiedmann, T. (2022). Emissions

Trends and Drivers. In *Climate Change 2022 : Mitigation of Climate Change. Contribution of Working Group III to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*.

- [Díaz-Isaac et al., 2018] Díaz-Isaac, L. I., Lauvaux, T., and Davis, K. J. (2018). Impact of physical parameterizations and initial conditions on simulated atmospheric transport and CO<sub>2</sub> mole fractions in the US Midwest. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(20) :14813–14835.
- [Eldering et al., 2017] Eldering, A., O'Dell, C. W., Wennberg, P. O., Crisp, D., Gunson, M. R., Viatte, C., Avis, C., Braverman, A., Castano, R., Chang, A., Chapsky, L., Cheng, C., Connor, B., Dang, L., Doran, G., Fisher, B., Frankenberg, C., Fu, D., Granat, R., Hobbs, J., Lee, R. A., Mandrake, L., McDuffie, J., Miller, C. E., Myers, V., Natraj, V., O'Brien, D., Osterman, G. B., Oyafuso, F., Payne, V. H., Pollock, H. R., Polonsky, I., Roehl, C. M., Rosenberg, R., Schwandner, F., Smyth, M., Tang, V., Taylor, T. E., To, C., Wunch, D., and Yoshimizu, J. (2017). The Orbiting Carbon Observatory-2 : First 18 months of science data products. *Atmospheric Measurement Techniques*, 10(2) :549–563.
- [Eldering et al., 2019] Eldering, A., Taylor, T. E., O'Dell, C. W., and Pavlick, R. (2019). The OCO-3 mission : Measurement objectives and expected performance based on 1 year of simulated data. *Atmospheric Measurement Techniques*, 12(4) :2341–2370.
- [Fabry, 2008] Fabry, V. J. (2008). Marine Calcifiers in a High CO<sub>2</sub> Ocean. *Science*, 320(May) :1020–1022.
- [Feng et al., 2019] Feng, S., Lauvaux, T., Davis, K. J., Keller, K., Zhou, Y., Williams, C., Schuh, A. E., Liu, J., and Baker, I. (2019). Seasonal Characteristics of Model Uncertainties From Biogenic Fluxes, Transport, and Large-Scale Boundary Inflow in Atmospheric CO<sub>2</sub> Simulations Over North America. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 124(24) :14325–14346.
- [Feng et al., 2016] Feng, S., Lauvaux, T., Newman, S., Rao, P., Ahmadov, R., Deng, A., Díaz-Isaac, L. I., Duren, R. M., Fischer, M. L., Gerbig, C., Gurney, K. R., Huang, J., Jeong, S., Li, Z., Miller, C. E., O'Keefe, D., Patarasuk, R., Sander, S. P., Song, Y., Wong, K. W., and Yung, Y. L. (2016). Los Angeles megacity : A high-resolution land-atmosphere modelling system for urban CO<sub>2</sub> emissions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(14) :9019–9045.
- [Fioletov et al., 2011] Fioletov, V. E., McLinden, C. A., Krotkov, N., and Li, C. (2011). Lifetimes and emissions of SO<sub>2</sub> from point sources estimated from OMI. *Geophysical Research Letters*.
- [Forster et al., 2021] Forster, P., Storelvmo, T., Armour, K., Collins, W., Dufresne, J.-L., Frame, D., Lunt, D. J., Mauritsen, T., Palmer, M. D., Watanabe, M., Wild, M., and Zhang, H. (2021). *Earth's energy budget, climate feedbacks, and climate sensitivity*. Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- [Frankenberg et al., 2016] Frankenberg, C., Thorpe, A. K., Thompson, D. R., Hulley, G., Kort, E. A., Vance, N., Borchardt, J., Krings, T., Gerilowski, K., Sweeney, C., Conley, S., Bue, B. D., Aubrey, A. D., Hook, S., and Green, R. O. (2016). Airborne methane remote measurements reveal heavytail flux distribution in Four Corners region. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 113(35) :9734–9739.
- [Friedlingstein et al., 2020] Friedlingstein, P., O'Sullivan, M., Jones, M. W., Andrew, R. M., Hauck, J., Olsen, A., Peters, G. P., Peters, W., Pongratz, J., Sitch, S., Le Quéré, C., Canadell, J. G., Ciais, P., Jackson, R. B., Alin, S., Aragão, L. E., Arneeth, A., Arora, V., Bates, N. R., Becker, M., Benoit-Cattin, A., Bittig, H. C., Bopp, L., Bultan, S., Chandra, N., Chevallier, F., Chini, L. P., Evans, W., Florentie, L., Forster, P. M., Gasser, T., Gehlen, M., Gilfillan, D., Gkritzalis, T., Gregor, L., Gruber, N., Harris, I., Hartung, K., Haverd, V., Houghton, R. A., Ilyina, T., Jain, A. K., Joetzjer, E., Kadono, K., Kato, E., Kitidis, V., Korsbakken, J. I., Landschützer, P., Lefèvre, N., Lenton, A., Lienert, S., Liu, Z., Lombardozi, D., Marland, G., Metz, N., Munro, D. R., Nabel, J. E., Nakaoka, S. I., Niwa, Y., O'Brien, K., Ono, T., Palmer, P. I., Pierrot, D., Poulter, B., Resplandy, L., Robertson, E., Rödenbeck, C., Schwinger, J., Séférian, R., Skjelvan, I., Smith, A. J., Sutton, A. J., Tanhua, T., Tans, P. P., Tian, H., Tilbrook, B., Van Der Werf, G., Vuichard, N., Walker, A. P., Wanninkhof, R., Watson, A. J., Willis, D., Wiltshire, A. J., Yuan, W., Yue, X., and Zaehle, S. (2020). Global Carbon Budget 2020. *Earth System Science Data*, 12(4) :3269–3340.

- [Gerber et al., 2018] Gerber, F., De Jong, R., Schaepman, M. E., Schaepman-Strub, G., and Furrer, R. (2018). Predicting Missing Values in Spatio-Temporal Remote Sensing Data. *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 56(5) :2841–2853.
- [Graven et al., 2013] Graven, H. D., Keeling, R. F., Piper, S. C., Patra, P. K., Stephens, B. B., Wofsy, S. C., Welp, L. R., Sweeney, C., Tans, P. P., Kelley, J. J., Daube, B. C., Kort, E. A., Santoni, G. W., and Bent, J. D. (2013). Enhanced seasonal exchange of CO<sub>2</sub> by Northern ecosystems since 1960. *Science*, 341(6150) :1085–1089.
- [Grell and Dévényi, 2002] Grell, G. A. and Dévényi, D. (2002). A generalized approach to parameterizing convection combining ensemble and data assimilation techniques. *Geophysical Research Letters*, 29(14) :10–13.
- [Gurney et al., 2020] Gurney, K. R., Liang, J., Patarasuk, R., Song, Y., Huang, J., and Roest, G. (2020). The Vulcan Version 3.0 High-Resolution Fossil Fuel CO<sub>2</sub> Emissions for the United States. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 125(19).
- [Gurney et al., 2021] Gurney, K. R., Liang, J., Roest, G., Song, Y., Mueller, K., and Lauvaux, T. (2021). Under-reporting of greenhouse gas emissions in U.S. cities. *Nature Communications*, 12(1) :1–7.
- [Gurney et al., 2012] Gurney, K. R., Razlivanov, I., Song, Y., Zhou, Y., Benes, B., and Abdul-Massih, M. (2012). Quantification of fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions on the building/street scale for a large U.S. City. *Environmental Science and Technology*, 46(21) :12194–12202.
- [Hakkarainen et al., 2016] Hakkarainen, J., Jalongo, I., and Tamminen, J. (2016). Direct space-based observations of anthropogenic CO<sub>2</sub> emission areas from OCO-2. *Geophysical Research Letters*, 43(21) :11,400–411,406.
- [Houweling et al., 2015] Houweling, S., Baker, D., Basu, S., Boesch, H., Butz, A., Chevallier, F., Deng, F., Dlugokencky, E. J., Feng, L., Ganshin, A., Hasekamp, O., Jones, D., Maksyutov, S., Marshall, J., Oda, T., O'Dell, C. W., Oshchepkov, S., Palmer, P. I., Peylin, P., Poussi, Z., Reum, F., Takagi, H., Yoshida, Y., and Zhuravlev, R. (2015). An intercomparison of inverse models for estimating sources and sinks of CO<sub>2</sub> using GOSAT measurements. *Journal of Geophysical Research*, 120(10) :5253–5266.
- [Inness et al., 2019] Inness, A., Ades, M., Agustí-Panareda, A., Barr, J., Benedictow, A., Blechschmidt, A. M., Jose Dominguez, J., Engelen, R., Eskes, H. J., Flemming, J., Huijnen, V., Jones, L., Kipling, Z., Massart, S., Parrington, M., Peuch, V. H., Razinger, M., Remy, S., Schulz, M., and Suttie, M. (2019). The CAMS reanalysis of atmospheric composition. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(6) :3515–3556.
- [Janjic, 1990] Janjic, Z. I. (1990). The Step-Mountain Coordinate : Physical Package. *Monthly weather review*, 118 :1429–1443.
- [Janjic, 1994] Janjic, Z. I. (1994). The Step-Mountain Eta Coordinate Model : Further Developments of the Convection, Viscous Sublayer, and Turbulence Closure Schemes. *Monthly weather review*, pages 927–945.
- [Jarraud and Steiner, 2012] Jarraud, M. and Steiner, A. (2012). *Summary for policymakers*, volume 9781107025.
- [Kiel et al., 2021] Kiel, M., Eldering, A., Roten, D. D., Lin, J. C., Feng, S., Lei, R., Lauvaux, T., Oda, T., Roehl, C. M., Blavier, J. F., and Iraci, L. T. (2021). Urban-focused satellite CO<sub>2</sub> observations from the Orbiting Carbon Observatory-3 : A first look at the Los Angeles megacity. *Remote Sensing of Environment*, 258(August 2020).
- [Kort et al., 2013] Kort, E. A., Angevine, W. M., Duren, R. M., and Miller, C. E. (2013). Surface observations for monitoring urban fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions : Minimum site location requirements for the Los Angeles megacity. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 118(3) :1577–1584.
- [Kort et al., 2012] Kort, E. A., Frankenberg, C., Miller, C. E., and Oda, T. (2012). Space-based observations of megacity carbon dioxide. *Geophysical Research Letters*, 39(17) :1–5.
- [Krings et al., 2013] Krings, T., Gerilowski, K., Buchwitz, M., Hartmann, J., Sachs, T., Erzinger, J., Burrows, J. P., and Bovensmann, H. (2013). Quantification of methane emission rates from coal mine ventilation shafts using airborne remote sensing data. *Atmospheric Measurement Techniques*, 6(1) :151–166.

- [Krings et al., 2011] Krings, T., Gerilowski, K., Buchwitz, M., Reuter, M., Tretner, A., Erzinger, J., Heinze, D., Pflüger, U., Burrows, J. P., and Bovensmann, H. (2011). MAMAP - A new spectrometer system for column-averaged methane and carbon dioxide observations from aircraft : Retrieval algorithm and first inversions for point source emission rates. *Atmospheric Measurement Techniques*, 4(9) :1735–1758.
- [Kuhlmann et al., 2019] Kuhlmann, G., Broquet, G., Marshall, J., Clément, V., Löscher, A., Meijer, Y., and Brunner, D. (2019). Detectability of CO<sub>2</sub> emission plumes of cities and power plants with the Copernicus Anthropogenic CO<sub>2</sub> Monitoring (CO<sub>2</sub>M) mission. *Atmospheric Measurement Techniques Discussions*, (2) :1–35.
- [Kuhlmann et al., 2020] Kuhlmann, G., Brunner, D., Broquet, G., and Meijer, Y. (2020). Quantifying CO<sub>2</sub> emissions of a city with the Copernicus Anthropogenic CO<sub>2</sub> Monitoring satellite mission. *Atmospheric Measurement Techniques Discussions*, 1(2) :1–33.
- [Kuhlmann et al., 2021] Kuhlmann, G., Henne, S., Brunner, D., Löscher, A., and Meijer, Y. (2021). SMARTCARB 2 – Use of satellite measurements of auxiliary reactive trace gases for fossil fuel carbon dioxide emission estimation (Phase 2). Final Report of ESA study contract n°4000119599/16/NL/FF/mg. Technical report.
- [Lambert et al., 2022] Lambert, J.-C., Loyola, D., and Stein-Zweers, D. (2022). S5P Mission Performance Centre Nitrogen Dioxide [L2\_\_NO2\_\_] Readme document.
- [Lauvaux et al., 2016] Lauvaux, T., Miles, N. L., Deng, A., Richardson, S. J., Cambaliza, M. O., Davis, K. J., Gaudet, B., Gurney, K. R., Huang, J., O’Keefe, D., Song, Y., Karion, A., Oda, T., Patarasuk, R., Razlivanov, I., Sarmiento, D., Shepson, P., Sweeney, C., Turnbull, J. C., and Wu, K. (2016). High-resolution atmospheric inversion of urban CO<sub>2</sub> emissions during the dormant season of the Indianapolis flux experiment (INFLUX). *Journal of Geophysical Research*, 121(10) :5213–5236.
- [Lei et al., 2021] Lei, R., Feng, S., Danjou, A., Broquet, G., Wu, D., Lin, J. C., O’Dell, C. W., and Lauvaux, T. (2021). Fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions over metropolitan areas from space : A multi-model analysis of OCO-2 data over Lahore, Pakistan. *Remote Sensing of Environment*, 264(August) :0–11.
- [Lei et al., 2022] Lei, R., Feng, S., Xu, Y., Tran, S., Ramonet, M., Grutter, M., Garcia, A., Campos-Pineda, M., and Lauvaux, T. (2022). Reconciliation of asynchronous satellite-based NO<sub>2</sub> and XCO<sub>2</sub> enhancements with mesoscale modeling over two urban landscapes. *Remote Sensing of Environment*, 281(2) :113241.
- [Lepinas et al., 2020] Lepinas, F., Wang, Y., Broquet, G., Bréon, F. M., Buchwitz, M., Reuter, M., Meijer, Y., Loesch, A., Janssens-Maenhout, G., Zheng, B., and Ciais, P. (2020). The potential of a constellation of low earth orbit satellite imagers to monitor worldwide fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions from large cities and point sources. *Carbon Balance and Management*, 15(1) :1–12.
- [Lian et al., 2021] Lian, J., Bréon, F.-M., Broquet, G., Lauvaux, T., Zheng, B., Ramonet, M., Xueref-Remy, I., Kotthaus, S., Haefelin, M., and Ciais, P. (2021). Sensitivity to the sources of uncertainties in the modeling of atmospheric CO<sub>2</sub> concentration within and in the vicinity of Paris. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(13) :10707–10726.
- [Lian et al., 2019] Lian, J., Bréon, F.-M., Broquet, G., Scott Zacheo, T., Dobler, J., Ramonet, M., Stauffer, J., Santaren, D., Xueref-Remy, I., and Ciais, P. (2019). Analysis of temporal and spatial variability of atmospheric CO<sub>2</sub> concentration within Paris from the GreenLITE™ laser imaging experiment. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(22) :13809–13825.
- [Lian et al., 2020] Lian, J., Bréon, F.-M., Broquet, G., Zheng, B., Ramonet, M., and Ciais, P. (2020). Quantitative evaluation of the uncertainty sources for the modeling of atmospheric CO<sub>2</sub> concentration within and in the vicinity of Paris city. *Atmospheric Chemistry and Physics*, (July) :1–22.
- [Lian et al., 2022] Lian, J., Lauvaux, T., Utard, H., Bréon, F. M., Broquet, G., Ramonet, M., Laurent, O., Albarus, I., Cucchi, K., and Ciais, P. (2022). Assessing the Effectiveness of an Urban CO<sub>2</sub> Monitoring Network over the



- Paris Region through the COVID-19 Lockdown Natural Experiment. *Environmental Science and Technology*, 56(4) :2153–2162.
- [Lian et al., 2018] Lian, J., Wu, L., Bréon, F.-M., Broquet, G., Vautard, R., Zaccheo, T. S., Dobler, J., and Ciais, P. (2018). Evaluation of the WRF-UCM mesoscale model and ECMWF global operational forecasts over the Paris region in the prospect of tracer atmospheric transport modeling. *Elementa*, 6.
- [Liu et al., 2012] Liu, J., Fung, I., Kalnay, E., Kang, J. S., Olsen, E. T., and Chen, L. (2012). Simultaneous assimilation of AIRS Xco2 and meteorological observations in a carbon climate model with an ensemble Kalman filter. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 117(5) :1–15.
- [Liu et al., 2019] Liu, Y., Piao, S., Gasser, T., Ciais, P., Yang, H., Wang, H., Keenan, T. F., Huang, M., Wan, S., Song, J., Wang, K., Janssens, I. A., Peñuelas, J., Huntingford, C., Wang, X., Altaf Arain, M., Fang, Y., Fisher, J. B., Huang, M., Huntzinger, D. N., Ito, A., Jain, A. K., Mao, J., Michalak, A. M., Peng, C., Poulter, B., Schwalm, C., Shi, X., Tian, H., Wei, Y., Zeng, N., Zhu, Q., and Wang, T. (2019). Field-experiment constraints on the enhancement of the terrestrial carbon sink by CO2 fertilization. *Nature Geoscience*, 12(10) :809–814.
- [Liu et al., 2020] Liu, Z., Ciais, P., Deng, Z., Davis, S. J., Zheng, B., Wang, Y., Cui, D., Zhu, B., Dou, X., Ke, P., Sun, T., Guo, R., Zhong, H., Boucher, O., Bréon, F. M., Lu, C., Guo, R., Xue, J., Boucher, E., Tanaka, K., and Chevallier, F. (2020). Carbon Monitor, a near-real-time daily dataset of global CO2 emission from fossil fuel and cement production. *Scientific Data*, 7(1) :1–12.
- [Lwasa et al., 2021] Lwasa, S., Seto, K. C., Bai, X., Blanco, H., Gurney, K., Kılıç, , Lucon, O., Murakami, J., Pan, J., Sharifi, A., and Yamagata, Y. (2021). Urban Systems and Other Settlements. In *Climate Change 2022 : Mitigation of Climate Change. Contribution of Working Group III to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*.
- [Mahadevan et al., 2008] Mahadevan, P., Wofsy, S. C., Matross, D. M., Xiao, X., Dunn, A. L., Lin, J. C., Gerbig, C., Munger, J. W., Chow, V. Y., and Gottlieb, E. W. (2008). A satellite-based biosphere parameterization for net ecosystem CO2 exchange : Vegetation Photosynthesis and Respiration Model (VPRM). *Global Biogeochemical Cycles*, 22(2).
- [Martilli et al., 2002] Martilli, A., Clappier, A., and Rotach, M. W. (2002). An urban surface exchange parametrization for mesoscale models. *Boundary-Layer Meteorology*, 104 :261–304.
- [Marty and Tolstikhin, 1998] Marty, B. and Tolstikhin, I. N. (1998). CO2 fluxes from mid-ocean ridges, arcs and plumes. *Chemical Geology*, 145(3-4) :233–248.
- [Nassar et al., 2017] Nassar, R., Hill, T. G., McLinden, C. A., Wunch, D., Jones, D. B., and Crisp, D. (2017). Quantifying CO2 Emissions From Individual Power Plants From Space. *Geophysical Research Letters*, 44(19) :10,045–10,053.
- [Nassar et al., 2022] Nassar, R., Moeini, O., Mastrogiacomo, J.-p., Dell, C. W. O., Nelson, R. R., Kiel, M., Chatterjee, A., Eldering, A., and Crisp, D. (2022). Tracking CO 2 emission reductions from space : A case study at Europe's largest fossil fuel power plant. (October) :1–15.
- [Nassar et al., 2013a] Nassar, R., Napier-Linton, L., Gurney, K. R., Andres, R. J., Oda, T., Vogel, F. R., and Deng, F. (2013a). Improving the temporal and spatial distribution of co2 emissions from global fossil fuel emission data sets. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 118(2) :917–933.
- [Nassar et al., 2013b] Nassar, R., Napier-Linton, L., Gurney, K. R., Andres, R. J., Oda, T., Vogel, F. R., and Deng, F. (2013b). Improving the temporal and spatial distribution of co2 emissions from global fossil fuel emission data sets. *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, 118(2) :917–933.

- [Nielsen-Gammon et al., 2008] Nielsen-Gammon, J. W., Powell, C. L., Mahoney, M. J., Angevine, W. M., Senff, C., White, A., Berkowitz, C., Doran, C., and Knupp, K. (2008). Multisensor estimation of mixing heights over a coastal city. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 47(1) :27–43.
- [Oda et al., 2019] Oda, T., Bun, R., Kinakh, V., Topylko, P., Halushchak, M., Marland, G., Lauvaux, T., Jonas, M., Maksyutov, S., Nahorski, Z., Lesiv, M., Danylo, O., and Horabik-Pyzel, J. (2019). Errors and uncertainties in a gridded carbon dioxide emissions inventory. *Mitigation and Adaptation Strategies for Global Change*, 24(6) :1007–1050.
- [Oda et al., 2018] Oda, T., Maksyutov, S., and Andres, R. J. (2018). The Open-source Data Inventory for Anthropogenic CO<sub>2</sub>, version 2016 (ODIAC2016) : A global monthly fossil fuel CO<sub>2</sub> gridded emissions data product for tracer transport simulations and surface flux inversions. *Earth System Science Data*, 10(1) :87–107.
- [O'Dell et al., 2012] O'Dell, C. W., Connor, B., Bösch, H., O'Brien, D., Frankenberg, C., Castano, R., Christi, M., Eldering, D., Fisher, B., Gunson, M., McDuffie, J., Miller, C. E., Natraj, V., Oyafuso, F., Polonsky, I., Smyth, M., Taylor, T., Toon, G. C., Wennberg, P. O., and Wunch, D. (2012). The ACOS CO<sub>2</sub> retrieval algorithm-Part 1 : Description and validation against synthetic observations. *Atmospheric Measurement Techniques*, 5(1) :99–121.
- [Orr et al., 2005] Orr, J. C., Fabry, V. J., Aumont, O., Bopp, L., Doney, S. C., Feely, R. A., Gnanadesikan, A., Gruber, N., Ishida, A., Joos, F., Key, R. M., Lindsay, K., Maier-Reimer, E., Matear, R., Monfray, P., Mouchet, A., Najjar, R. G., Plattner, G. K., Rodgers, K. B., Sabine, C. L., Sarmiento, J. L., Schlitzer, R., Slater, R. D., Totterdell, I. J., Weirig, M. F., Yamanaka, Y., and Yool, A. (2005). Anthropogenic ocean acidification over the twenty-first century and its impact on calcifying organisms. *Nature*, 437(7059) :681–686.
- [Osterman, 2020] Osterman, G. (2020). OCO-2, OCO-3 Data Product User's, Operational Level 2 Data Versions 10 and Lite File Version 10 and VEarly. 3.
- [Osterman et al., 2017] Osterman, G. B., Eldering, A., Mandrake, L., O'Dell, C., Wunch, D., Wennberg, P. O., Fisher, B., and Marchetti, Y. (2017). OCO-2 XCO<sub>2</sub> V8r Lite Products, Warn Levels, and Bias Correction. 2 :33.
- [Pasquill, 1961] Pasquill, F. (1961). The estimation of the dispersion of windborne material. *Meteorological Magazine*, 90(1063) :33–49.
- [Payne et al., 2022] Payne, V., Rosenberg, R., and Fisher, B. (2022). Orbiting Carbon Observatory-2 & 3 Data Product User's Guide , Operational Level 2 Lite Files. 3.
- [Peters et al., 2007] Peters, W., Jacobson, A. R., Sweeney, C., Andrews, A. E., Conway, T. J., Masarie, K., Miller, J. B., Bruhwiler, L. M., Pétron, G., Hirsch, A. I., Worthy, D. E., Van Der Werf, G. R., Randerson, J. T., Wennberg, P. O., Krol, M. C., and Tans, P. P. (2007). An atmospheric perspective on North American carbon dioxide exchange : CarbonTracker. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 104(48) :18925–18930.
- [Pillai et al., 2016] Pillai, D., Buchwitz, M., Gerbig, C., Koch, T., Reuter, M., Bovensmann, H., Marshall, J., and Burrows, J. P. (2016). Tracking city CO<sub>2</sub> emissions from space using a high-resolution inverse modelling approach : A case study for Berlin, Germany. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(15) :9591–9610.
- [Rayner et al., 2019] Rayner, P. J., Michalak, A. M., and Chevallier, F. (2019). Fundamentals of data assimilation applied to biogeochemistry. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(22) :13911–13932.
- [Reuter et al., 2019] Reuter, M., Buchwitz, M., Schneising, O., Krautwurst, S., O'Dell, C. W., Richter, A., Bovensmann, H., and Burrows, J. P. (2019). Towards monitoring localized CO<sub>2</sub> emissions from space : co-located regional CO<sub>2</sub> and NO<sub>2</sub> enhancements observed by the OCO-2 and S5P satellites. *Atmospheric chemistry and physics*.

- [Santaren et al., 2020] Santaren, D., Broquet, G., Bréon, F.-M., Chevallier, F., Siméoni, D., and Ciais, P. (2020). A local to national-scale inverse modeling system to assess the potential of spaceborne CO<sub>2</sub> measurements for the monitoring of anthropogenic emissions. *Atmospheric Measurement Techniques Discussions*, (May) :1–41.
- [Santaren et al., 2021] Santaren, D., Broquet, G., Bréon, F.-M., Chevallier, F., Simeoni, D., Zheng, B., and Ciais, P. (2021). A local-to national-scale inverse modeling system to assess the potential of spaceborne CO<sub>2</sub> measurements for the monitoring of anthropogenic emissions. *Atmospheric Measurement Techniques*, 14(1) :403–433.
- [Schuh et al., 2021] Schuh, A. E., Otte, M., Lauvaux, T., and Oda, T. (2021). Far-field biogenic and anthropogenic emissions as a dominant source of variability in local urban carbon budgets : A global high-resolution model study with implications for satellite remote sensing. *Remote Sensing of Environment*, 262(October 2020) :112473.
- [Schwandner et al., 2017] Schwandner, F. M., Gunson, M. R., Miller, C. E., Carn, S. A., Eldering, A., Krings, T., Verhulst, K. R., Schimel, D. S., Nguyen, H. M., Crisp, D., O'Dell, C. W., Osterman, G. B., Iraci, L. T., and Podolske, J. R. (2017). Spaceborne detection of localized carbon dioxide sources. *Science*.
- [Sierk et al., 2021] Sierk, B., Fernandez, V., Bézy, J.-L., Meijer, Y., Durand, Y., Bazalgette Courrèges-Lacoste, G., Pachot, C., Löscher, A., Nett, H., Minoglou, K., Boucher, L., Windpassinger, R., Pasquet, A., Serre, D., and te Hennepe, F. (2021). The Copernicus CO<sub>2</sub>M mission for monitoring anthropogenic carbon dioxide emissions from space. (June 2021) :128.
- [Skamarock et al., 2008] Skamarock, W. C., Klemp, J. B., Gill, D. O., Barke, D. M., Duda, M. G., Huang, X.-Y., Wang, W., and Powers, J. G. (2008). A Description of the Advanced Research WRF Version 3. Technical report, National Center for Atmospheric Research, Boulder, Colorado, USA.
- [Smagorinsky, 1963] Smagorinsky, J. (1963). General circulation experiments with the primitive equations. *Monthly weather review*, 91 :99–164.
- [Staufer et al., 2016] Staufer, J., Broquet, G., Bréon, F.-M., Puygrenier, V., Chevallier, F., Xueref-Rémy, I., Dieu-donné, E., Lopez, M., Schmidt, M., Ramonet, M., Perrussel, O., Lac, C., Wu, L., and Ciais, P. (2016). A first year-long estimate of the Paris region fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions based on atmospheric inversion. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, (April) :1–34.
- [Takahashi et al., 1997] Takahashi, T., Feely, R. A., Weiss, R. F., Wanninkhof, R. H., Chipman, D. W., Sutherland, S. C., and Takahashi, T. T. (1997). Global air-sea flux of CO<sub>2</sub> : An estimate based on measurements of sea-air pCO<sub>2</sub> difference. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 94(16) :8292–8299.
- [Taszarek et al., 2020] Taszarek, M., Pilguy, N., Allen, J. T., Gensini, V., Brooks, H. E., and Szuster, P. (2020). Comparison of convective parameters derived from ERA5 and MERRA2 with rawinsonde data over Europe and North America. *Journal of Climate*, pages 1–55.
- [Taylor et al., 2020] Taylor, T. E., Eldering, A., Merrelli, A., Kiel, M., Somkuti, P., Cheng, C., Rosenberg, R., Fisher, B., Crisp, D., Basilio, R., Bennett, M., Cervantes, D., Chang, A., Dang, L., Frankenberg, C., Haemmerle, V. R., Keller, G. R., Kurosu, T., Laughner, J. L., Lee, R., Marchetti, Y., Nelson, R. R., O'Dell, C. W., Osterman, G., Pavlick, R., Roehl, C., Schneider, R., Spiers, G., To, C., Wells, C., Wennberg, P. O., Yelamanchili, A., and Yu, S. (2020). OCO-3 early mission operations and initial (vEarly) XCO<sub>2</sub> and SIF retrievals. *Remote Sensing of Environment*, 251(September 2020) :112032.
- [Taylor et al., 2016] Taylor, T. E., O'Dell, C. W., Frankenberg, C., Partain, P. T., Cronk, H. Q., Savtchenko, A., Nelson, R. R., Rosenthal, E. J., Chang, A. Y., Fisher, B., Osterman, G. B., Pollock, R. H., Crisp, D., Eldering, A., and Gunson, M. R. (2016). Orbiting Carbon Observatory-2 (OCO-2) cloud screening algorithms : Validation against collocated MODIS and CALIOP data. *Atmospheric Measurement Techniques*, 9(3) :973–989.

- [Thompson et al., 2016] Thompson, D. R., Thorpe, A. K., Frankenberg, C., Green, R. O., Duren, R., Guanter, L., Hollstein, A., Middleton, E., Ong, L., and Ungar, S. (2016). Space-based remote imaging spectroscopy of the Aliso Canyon CH<sub>4</sub> superemitter. *Geophysical Research Letters*, 43(12) :6571–6578.
- [Ullrich et al., 2017] Ullrich, P. A., Jablonowski, C., Kent, J., Lauritzen, P. H., Nair, R., Reed, K. A., Zarzycki, C. M., Hall, D. M., Dazlich, D., Heikes, R., Konor, C., Randall, D., Dubos, T., Meurdesoif, Y., Chen, X., Harris, L., Kühnlein, C., Lee, V., Qaddouri, A., Girard, C., Giorgetta, M., Reinert, D., Klemp, J., Park, S. H., Skamarock, W., Miura, H., Ohno, T., Yoshida, R., Walko, R., Reinecke, A., and Viner, K. (2017). DCMIP2016 : A review of non-hydrostatic dynamical core design and intercomparison of participating models. *Geoscientific Model Development*, 10(12) :4477–4509.
- [UNDESA, 2018] UNDESA (2018). *World Urbanization Prospects*, volume 12.
- [Varon et al., 2020] Varon, D. J., Jacob, D. J., Jervis, D., and McKeever, J. (2020). Quantifying Time-Averaged Methane Emissions from Individual Coal Mine Vents with GHGSat-D Satellite Observations. *Environmental science & technology*, 54(16) :10246–10253.
- [Varon et al., 2018] Varon, D. J., Jacob, D. J., McKeever, J., Jervis, D., Durak, B. O., Xia, Y., and Huang, Y. (2018). Quantifying methane point sources from fine-scale satellite observations of atmospheric methane plumes. *Atmospheric Measurement Techniques*, 11(10) :5673–5686.
- [Varon et al., 2019] Varon, D. J., McKeever, J., Jervis, D., Maasackers, J. D., Pandey, S., Houweling, S., Aben, I., Scarpelli, T., and Jacob, D. J. (2019). Satellite Discovery of Anomalously Large Methane Point Sources From Oil/Gas Production. *Geophysical Research Letters*, 46(22) :13507–13516.
- [Walko and Avissar, 2008a] Walko, R. L. and Avissar, R. (2008a). The Ocean-Land-Atmosphere Model (OLAM). Part I : Shallow-water tests. *Monthly Weather Review*, 136(11) :4033–4044.
- [Walko and Avissar, 2008b] Walko, R. L. and Avissar, R. (2008b). The Ocean-Land-Atmosphere Model (OLAM). Part II : Formulation and tests of the nonhydrostatic dynamic core. *Monthly Weather Review*, 136(11) :4045–4062.
- [Wang et al., 2020] Wang, Y., Broquet, G., Breon, F. M., Lespinas, F., Buchwitz, M., Reuter, M., Meijer, Y., Loescher, A., Janssens-Maenhout, G., Zheng, B., and Ciais, P. (2020). PMIF v1.0 : Assessing the potential of satellite observations to constrain CO<sub>2</sub> emissions from large cities and point sources over the globe using synthetic data. *Geoscientific Model Development*, 13(11) :5813–5831.
- [Wang et al., 2019] Wang, Y., Ciais, P., Broquet, G., Bréon, F. M., Oda, T., Lespinas, F., Meijer, Y., Loescher, A., Janssens-Maenhout, G., Zheng, B., Xu, H., Tao, S., Gurney, K. R., Roest, G., Santaren, D., and Su, Y. (2019). A global map of emission clumps for future monitoring of fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions from space. *Earth System Science Data*, 11(2) :687–703.
- [Worden et al., 2017] Worden, R. J., Doran, G., Kulawik, S., Eldering, A., Crisp, D., Frankenberg, C., O'Dell, C., and Bowman, K. W. (2017). Evaluation and attribution of OCO-2 XCO<sub>2</sub> uncertainties. *Atmospheric Measurement Techniques*, 10(7) :2759–2771.
- [Wu et al., 2018] Wu, D., Lin, J. C., Fasoli, B., Oda, T., Ye, X., Lauvaux, T., Yang, E. G., and Kort, E. A. (2018). A Lagrangian approach towards extracting signals of urban CO<sub>2</sub> emissions from satellite observations of atmospheric column CO<sub>2</sub> (XCO<sub>2</sub>) : X-St. *Geoscientific Model Development*, 11(12) :4843–4871.
- [Wu et al., 2020] Wu, D., Lin, J. C., Oda, T., and Kort, E. A. (2020). Space-based quantification of per capita CO<sub>2</sub> emissions from cities. *Environmental Research Letters*, page 13.
- [Wu et al., 2022] Wu, D., Liu, J., Wennberg, P. O., Palmer, P. I., Nelson, R. R., Kiel, M., and Eldering, A. (2022). Towards sector-based attribution using intra-city variations in satellite-based emission ratios between CO<sub>2</sub> and CO. *Atmospheric Chemistry and Physics*, (January) :1–32.

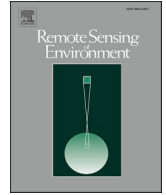
- [Wunch et al., 2017] Wunch, D., Wennberg, P. O., Osterman, G., Fisher, B., Naylor, B., Roehl, M. C., O'Dell, C., Mandrake, L., Viatte, C., Kiel, M., Griffith, D. W. T., Deutscher, N. M., Velazco, V. A., Notholt, J., Warneke, T., Petri, C., De Maziere, M., Sha, M. K., Sussmann, R., Rettinger, M., Pollard, D., Robinson, J., Morino, I., Uchino, O., Hase, F., Blumenstock, T., Feist, D. G., Arnold, S. G., Strong, K., Mendonca, J., Kivi, R., Heikkinen, P., Iraci, L., Podolske, J., Hillyard, P., Kawakami, S., Dubey, M. K., Parker, H. A., Sepulveda, E., García, O. E., Te, Y., Jeseck, P., Gunson, M. R., Crisp, D., and Eldering, A. (2017). Comparisons of the Orbiting Carbon Observatory-2 (OCO-2) XCO<sub>2</sub> measurements with TCCON. *Atmospheric Measurement Techniques*, 10(6) :2209–2238.
- [Yang et al., 2020] Yang, E. G., Kort, E. A., Wu, D., Lin, J. C., Oda, T., Ye, X., and Lauvaux, T. (2020). Using Space-Based Observations and Lagrangian Modeling to Evaluate Urban Carbon Dioxide Emissions in the Middle East. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 125(7) :1–20.
- [Ye et al., 2017] Ye, X., Lauvaux, T., Kort, E. A., Oda, T., Feng, S., Lin, J. C., Yang, E. G., and Dien, W. (2017). Constraining fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions from urban area using OCO-2 observations of total column CO<sub>2</sub>. *Atmospheric chemistry and physics*.
- [Ye et al., 2020] Ye, X., Lauvaux, T., Kort, E. A., Oda, T., Feng, S., Lin, J. C., Yang, E. G., and Wu, D. (2020). Constraining Fossil Fuel CO<sub>2</sub> Emissions From Urban Area Using OCO-2 Observations of Total Column CO<sub>2</sub>. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 125(8) :0–3.
- [Zheng et al., 2020] Zheng, B., Chevallier, F., Ciais, P., Broquet, G., Wang, Y., Lian, J., and Zhao, Y. (2020). Observing carbon dioxide emissions over China's cities with the Orbiting Carbon Observatory-2. *Atmospheric Chemistry and Physics*, (February) :1–17.
- [Zheng et al., 2019] Zheng, T., Nassar, R., and Baxter, M. (2019). Estimating power plant CO<sub>2</sub> emission using OCO-2 XCO<sub>2</sub> and high resolution WRF-Chem simulations. *Environmental Research Letters*, 14(8).

## 7 - Annexe : Article sur les données OCO-2 à proximité de Lahore



Contents lists available at ScienceDirect

## Remote Sensing of Environment

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/rse](http://www.elsevier.com/locate/rse)

## Fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions over metropolitan areas from space: A multi-model analysis of OCO-2 data over Lahore, Pakistan

Ruixue Lei<sup>a,\*</sup>, Sha Feng<sup>a,b</sup>, Alexandre Danjou<sup>c</sup>, Grégoire Broquet<sup>c</sup>, Dien Wu<sup>d</sup>, John C. Lin<sup>e</sup>, Christopher W. O'Dell<sup>f</sup>, Thomas Lauvaux<sup>a,c</sup>

<sup>a</sup> Department of Meteorology and Atmospheric Science, The Pennsylvania State University, University Park, PA, USA

<sup>b</sup> Atmospheric Sciences and Global Change Division, Pacific Northwest National Laboratory, Richland, WA, USA

<sup>c</sup> Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, CEA, CNRS, UVSQ/IPSL, Université Paris-Saclay, Orme des Merisiers, Gif-sur-Yvette cedex, France

<sup>d</sup> Division of Geological and Planetary Sciences, California Institute of Technology, Pasadena, USA

<sup>e</sup> Department of Atmospheric Sciences, University of Utah, Salt Lake City, UT, USA

<sup>f</sup> Cooperative Institute for Research in the Atmosphere, Colorado State University, Fort Collins, CO, USA

### ARTICLE INFO

Edited by Menghua Wang

#### Keywords:

GHGs  
Quality flags  
WRF-Chem  
X-STILT  
Flux cross-sectional integration  
Bayesian inversion  
ODIAC

### ABSTRACT

Urban areas, where more than 55% of the global population gathers, contribute more than 70% of anthropogenic fossil fuel carbon dioxide (CO<sub>2ff</sub>) emissions. Accurate quantification of CO<sub>2ff</sub> emissions from urban areas is of great importance for formulating global warming mitigation policies to achieve carbon neutrality by 2050. Satellite-based inversion techniques are unique among “top-down” approaches, potentially allowing us to track CO<sub>2ff</sub> emission changes over cities globally. However, their accuracy is still limited by incomplete background information, cloud blockages, aerosol contamination, and uncertainties in models and priori emission inventories. To evaluate the current potential of space-based quantification techniques, we present the first attempt to monitor long-term changes in CO<sub>2ff</sub> emissions based on the OCO-2 satellite measurements of column-averaged dry-air mole fractions of CO<sub>2</sub> (X<sub>CO2</sub>) over a fast-growing Asian metropolitan area: Lahore, Pakistan. We first examined the OCO-2 data availability at global scale. About 17% of OCO-2 soundings over the global 70 most populated cities from 2014 to 2019 are marked as high-quality. Cloud blockage and aerosol contamination are the two main causes of data loss. As an attempt to recover additional soundings, we evaluated the effectiveness of OCO-2 quality flags at the city level by comparing three flux quantification methods (WRF-Chem, X-STILT, and the flux cross-sectional integration method). The satellite/bottom-up emissions (OCO-2/ODIAC) ratios of the high-quality tracks with reduced uncertainties in emissions are better agreed across the three methods compared to the all-data tracks. This demonstrates that OCO-2 quality flags are useful filters of low-quality OCO-2 retrievals at local scales. All three methods consistently suggested that the ratio medians are greater than 1, implying that the ODIAC slightly underestimated CO<sub>2ff</sub> emissions over Lahore. Additionally, our estimation of the a posteriori CO<sub>2ff</sub> emission trend was about 734 kt C/year (i.e., an annual 6.7% increase). 10,000 Monte Carlo simulations of the Mann-Kendall upward trend test showed that less than 10% prior uncertainty for 8 tracks (or less than 20% prior uncertainty for 25 tracks) is required to achieve a greater-than-50% trend significant possibility at a 95% confidence level. It implies that the trend is driven by the prior and not due to the assimilation of OCO-2 retrievals. The key to improving the role of satellite data in CO<sub>2</sub> emission trend detection lies in collecting more frequent high-quality tracks near metropolitan areas to achieve significant constraints from X<sub>CO2</sub> retrievals.

### 1. Introduction

Carbon dioxide (CO<sub>2</sub>) alone has contributed to more than 60% of the global direct radiative forcing from Greenhouse Gases (GHGs) that has increased by 45% from 1990 to 2019 according to the Annual

Greenhouse Gas Index (AGGI) (NOAA, n.d.). Global fossil fuel CO<sub>2</sub> (CO<sub>2ff</sub>) emissions exceeded 38 Gt in 2020 (Crippa et al., 2020) accounting for more than 77% of fossil fuel greenhouse gas emissions (Crippa et al., 2019). Out of the global CO<sub>2ff</sub> emissions, more than 70% originate from cities alone (Biroi, 2008; Mitchell et al., 2018), where more than 55% of

\* Corresponding author.

E-mail address: [rlei@psu.edu](mailto:rlei@psu.edu) (R. Lei).

<https://doi.org/10.1016/j.rse.2021.112625>

Received 29 January 2021; Received in revised form 25 June 2021; Accepted 26 July 2021

Available online 10 August 2021

0034-4257/© 2021 The Authors. Published by Elsevier Inc. This is an open access article under the CC BY license (<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>).

the global population resides (World Bank, 2014). Urbanization is continuously increasing, with no projected decline (World Bank, 2014). This makes accurately quantifying CO<sub>2ff</sub> emissions from urban areas of great importance to formulating the global warming mitigation policies necessary to achieve carbon neutrality by 2050 (UNFCCC, 2015).

Two distinct approaches are commonly used to estimate CO<sub>2ff</sub> emissions, i.e., 'bottom-up' and 'top-down'. 'Bottom-up' approaches estimate CO<sub>2ff</sub> emissions based on standardized protocols, combining activity data such as fuel production and consumption as well as traffic monitoring data with pre-calculated emission factors for specific sources across different activity sectors (UNFCCC, 2015). Bottom-up approaches remain the most common and standardized solutions to quantifying the CO<sub>2ff</sub> emissions used to design climate policies. Recent bottom-up approaches downscale CO<sub>2ff</sub> emissions to finer resolutions by using either spatial proxies like population density (e.g. MIX, Li et al., 2017) or nighttime lights (e.g. ODIAC, Oda et al., 2018), or combinations of point sources like power plants (e.g. PKU-Fuel, Wang et al., 2013) and line sources like on-road emissions (e.g. HESTIA, Gurney et al., 2012) to construct high-resolution maps of CO<sub>2ff</sub> emissions. Uncertainties in bottom-up approaches are caused by data gaps, a lack of information on energy and fuel use statistics, and outdated or inaccurate emission factors (Andres et al., 1996; Liu et al., 2015; Macknick, 2009) ranging from 5% in Organization for Economic Co-operation and Development (OECD) countries (Marland, 2008), to 15–20% for China (Gregg et al., 2008), to 50% or more for emerging economies (Andres et al., 2014).

Top-down approaches partly rely on bottom-up emissions (priors), but add information from atmospheric observations collected on the ground, airborne platforms, or satellite missions (Bousquet et al., 2000; Crowell et al., 2019; Enting et al., 1995). Inverse analysis based on satellite data, e.g., GOSAT (J. S. Wang et al., 2020b), OCO-2 (Ye et al., 2020), TanSat (Liu et al., 2018), offers unique global coverage for quantifying the magnitude and distribution of urban CO<sub>2ff</sub> emissions from various metropolitan areas.

As the atmosphere integrates CO<sub>2</sub> signals from various sources and sinks, the first and most challenging step in an inverse analysis is differentiating the influence of cities from non-CO<sub>2ff</sub> (e.g., vegetation, water bodies) and distant (so-called background) CO<sub>2</sub> sources and sinks. Unlike in-situ measurements of isotopes, such as  $\Delta^{14}\text{CO}_2$  quantification of CO<sub>2ff</sub> (Graven et al., 2018; Turnbull et al., 2019), satellite-retrieved CO<sub>2</sub> relies on biogenic models to estimate natural CO<sub>2</sub> fluxes (Hu et al., 2020; Ye et al., 2020). Various approaches have been developed to determine the background for ground-based in-situ measurements. The most common involve calculating the CO<sub>2</sub> gradients between upwind and downwind sites (e.g. Lauvaux et al., 2016) or by solving fluxes over a larger domain boundary (Nickless et al., 2019). With satellite data, studies have used a constant background column-averaged dry-air mole fractions of CO<sub>2</sub> ( $X_{\text{CO}_2}$ ) over a period, including using the median  $X_{\text{CO}_2}$  over a latitudinal band (Hakkarainen et al., 2018), the average  $X_{\text{CO}_2}$  in the surrounding area relatively unaffected by urban emissions (Kort et al., 2012), or a linearly-interpolated background derived from a two-step linear regression (Ye et al., 2020). The choice of background determination method depends on the specificities of each studied city, as all are impacted by simplifications that will penalize the estimated city emissions (Schuh et al., 2021).

The  $X_{\text{CO}_2}$  enhancement caused by urban areas positively relates to the size and emissions of the city (Labzovskii et al., 2019). To quantify CO<sub>2ff</sub> emissions from space, recent studies have either 1) assimilated observed  $X_{\text{CO}_2}$  enhancement in a transport model and used the distribution and magnitude of emission sources from bottom-up inventories as a priori information (e.g., Ye et al., 2020) or 2) directly computed CO<sub>2ff</sub> emissions from the combination of enhancements in  $X_{\text{CO}_2}$  observations and local wind information (e.g., Nassar et al., 2017; Varon et al., 2018). In the first approach, observed column-averaged dry-air mole fractions of CO<sub>2ff</sub> ( $X_{\text{CO}_2ff}$ ) are assimilated into a Bayesian inverse system to estimate CO<sub>2ff</sub> emissions (posteriors) (e.g., Pillai et al., 2016). Eulerian models (e.g., WRF-Chem, Ye et al., 2020) adopt fixed grid cells

and simulate  $X_{\text{CO}_2}$  within the model grid cells by transporting the emitted CO<sub>2</sub> molecules forward-in-time. In Lagrangian modeling (e.g., X-STILT Wu et al., 2018 and WRF-STILT, Nehr Korn et al., 2010), the model directly calculates the satellite footprint at the surface and efficiently defines the area of influence, and thus possible upwind sources, by transporting air parcels backward-in-time from the measurement locations. The second approach relies on detecting an enhancement in the observations near the intersection of the satellite track and the supposed city plume location. The emissions are quantified by computing the flux through the plume transect as the product of the wind and the integral of the CO<sub>2</sub> mass in the detected plume, using methods such as flux cross-sectional integration (FCSI) and Gaussian plume inversion. The second approach requires less computational time and is therefore favourable for analyzing a large number of cities (e.g., Zheng et al., 2020) or power plants (e.g., Nassar et al., 2017). While the first method can be strongly impacted by model transport errors at the local scale, the second method is highly sensitive to assumptions about how the effective wind applies to the plume at the satellite transect location. Both are impacted by uncertainties in the wind field driving the plume from the cities.

While satellite missions offer unprecedented spatial coverage of CO<sub>2</sub> over the globe, sampling from space is limited by the cloud coverage, low solar radiances at high latitudes, the interference caused by aerosols, and the difficulty of characterizing surface properties through retrieval algorithms (O'Dell et al., 2018). Given the pollution around urban areas, aerosol-related biases are far from negligible over large metropolitan areas (Pillai et al., 2016). The narrow swath of current satellite tracks (e.g., OCO-2 retrieves 8 soundings over a 10.3-km cross-track) often fails to capture the local CO<sub>2ff</sub> enhancement caused by a city if the track is not located downwind of the city or is too far away to detect the enhancement. Finally, because of the long revisit time (e.g., OCO-2 every 16 days, GOSAT every 3 days), a limited number of the satellite overpasses can be collected within a year for a given city, which reduces researchers' ability to quantify the large day-to-day variability in CO<sub>2ff</sub> emissions (Zhang et al., 2016). However, this limitation can be overcome by next generation satellite missions with increased imaging capabilities (e.g., OCO-3, Eldering et al., 2019) that provide more details of the CO<sub>2</sub> spatial distribution (Kiel et al. 2021) and more frequent observations (e.g. CO2M) (Kuhlmann et al., 2019).

Despite the pros and cons of current CO<sub>2</sub> satellite missions, this study focuses on the detection capability of long-term trends in urban CO<sub>2ff</sub> emissions. To evaluate the current potential of space-based quantification techniques, we present the first attempt to monitor long-term changes in CO<sub>2ff</sub> emissions based on OCO-2 satellite measurements over the fast-growing Asian metropolitan area of Lahore, Pakistan. After examining the OCO-2 data availability at global scale, we evaluated the data quality and its potential use for CO<sub>2ff</sub> emission estimations over the largest cities. We then locally evaluated the OCO-2 data quality flags designed for global studies within a multi-model comparison of three top-down methods (two based on atmospheric numerical models, WRF-Chem and X-STILT, and the FCSI method) for the 25 available tracks near Lahore. Finally, we evaluated the capability of OCO-2 to track the 5-year trend of city-scale CO<sub>2ff</sub> emissions over Lahore, Pakistan, considering both the uncertainties and significance of the trend calculation.

## 2. Data and method

### 2.1. OCO-2 data and quality flags

The OCO-2 satellite was launched on July 2, 2014 and started collecting data on September 4, 2014. It operates in a sun-synchronous polar orbit at an altitude of about 705 km, nominally crossing the equator at 13:36 local time. OCO-2 collects eight adjacent spatially-resolved soundings every 0.333 s (24 samples per second) along a narrow (0.8°) swath, with a cross-track resolution of 0.1–1.3 km (Crisp



et al., 2010). This results in about 400 soundings per degree of latitude per orbit, or  $\sim 1$  million soundings, collected each day over the sunlit hemisphere. However, a large fraction of the  $X_{CO_2}$  retrievals is inadequate for inverting  $CO_{2ff}$  emissions, due to the data loss associated with cloud blockages, aerosol contaminations, or invalid geolocations. To investigate the number of usable tracks and determine the causes of data loss, we analyzed the available soundings and the quality flags representing sounding quality from 2014 to 2019. We focused on the OCO-2 nadir and glint modes, excluding the target mode from this study due to its limited sampling area.

The OCO-2  $X_{CO_2}$  soundings are subject to a two-level quality inspection (L1 and L2). Only soundings that meet all selection criteria in the inspection are marked as high-quality soundings in the L2 OCO-2 quality flags (QF = 0). Soundings failing to meet one or more criteria are marked as low-quality soundings (QF = 1). A detailed introduction of the two-level quality inspection can be found in Section Text S2.

## 2.2. OCO-2 background $X_{CO_2}$ determination

To constrain  $CO_{2ff}$  emissions from cities, we needed to remove the large-scale influence (so-called “background”) from the observations and only keep the local  $X_{CO_2}$  signatures. We used the “two-step linear regression” background removal method as described in (Ye et al., 2020). First, we applied noise canceling by averaging  $X_{CO_2}$  soundings over one second (covering  $\sim 10.32 \text{ km} \times 6.75 \text{ km}$ ) to reduce the instrumental noise in the data. We then assumed that the 1-s averaged  $X_{CO_2}$  data ( $X_{CO_2,1s}$ ) consisted of two parts: “background samples” and “local samples”. Because the “background samples” have less spatial variability compared to the “local samples” affected by local urban  $CO_{2ff}$  emissions, we selected “background samples” from  $X_{CO_2,1s}$  using the criteria:  $X_{CO_2,detrend} < 0.5 \cdot \sigma_{detrend}$ , where  $X_{CO_2,detrend}$  is the detrended  $X_{CO_2,1s}$  and  $\sigma_{detrend}$  is the standard deviation of  $X_{CO_2,detrend}$ .  $X_{CO_2,detrend}$  is derived by a linear function:  $X_{CO_2,1s} = a \cdot x + b$ , where  $x$  is latitude, and  $a$  and  $b$  are the slope and intercept derived by linear regression. We then recalculated the linear regression line, or the “background line,” based on the “background samples” representing the background spatial trend. Physically  $CO_{2ff}$  should all be greater than zero, so some 1-s averaged soundings were removed if they were below zero after background removal.

## 2.3. Case study: Lahore in Pakistan

Limited by computational resources, we could only select one city to serve as a case study to test if OCO-2 can capture the trend of  $CO_{2ff}$  emissions over urban areas. The idealized sample city should have sufficient OCO-2 tracks and a clear growing trend of  $CO_{2ff}$  emissions. Lahore is the second-largest city in Pakistan in a flat and mostly agricultural region of Asia (Punjab region) (World Bank, 2014). The city's gross domestic product (GDP) by purchasing power parity (PPP) was estimated at \$40 billion as of 2008 (PricewaterhouseCoopers, 2009) and \$65.14 billion as of 2017 (InpaperMagazine, 2018), with a projected average growth rate of 5.6%. The population exceeded 11 million in 2017 with an annual growth rate of 4.07% since 1998 (Pakistan Bureau of Statistics, 2017a, 2017b). The ODIAC inventory version 2019 inventory suggested that the Lahore whole-city  $CO_{2ff}$  emissions increased by about 646 kt C/year during October 2014–May 2019, translating into a total change of 27% over 2015–2019 (i.e., a mean annual 5.9% increase), which is consistent with Pakistan's national emission estimates of 5.05% during 2001–2018 (Lei et al., 2020). The fast-growing economy and population over the recent two decades make it ideal for testing the potential of detecting trends based on OCO-2 data.

We selected 25 tracks of OCO-2 over Lahore from 2014 to 2019 that meet the following criteria:

- 1) must have a sufficient number of retrievals, i.e., more than 150 retrievals in a  $50 \times 50 \text{ km}$  box around Lahore evenly distributed along the track;
- 2) located downwind of Lahore;
- 3) variations in the 10-m wind field are less than  $45^\circ$  to minimize transport model errors;
- 4) a local enhancement in 1-s average retrievals larger than the background variations.

The 25 tracks, referred to as all-data tracks, contain all high- and low-quality soundings (i.e., quality flags are not considered yet). Only 8 out of 25 tracks fit the above criteria, referred to as high-quality tracks, if just high-quality soundings are considered. Detailed information about the selected tracks is shown in Fig. S1. Due to the lack of ground-based  $X_{CO_2}$  data, we ensured the robustness of the results by comparing the OCO-2 data with outputs of three flux quantification methods, WRF-Chem, X-STILT, and the FCSI method.

The outputs of WRF and X-STILT are  $X_{CO_2}$  based on ODIAC, while the FCSI method output is  $CO_{2ff}$  emissions. We compared the ratios of  $X_{CO_2}$  from OCO-2 to  $X_{CO_2}$  from WRF and X-STILT and the ratios of  $CO_{2ff}$  emissions from the FCSI method to  $CO_{2ff}$  emissions from the ODIAC product in Section 3.5 to evaluate the effectiveness of OCO-2 quality flags at city scale. The ratios are mathematically equivalent in Bayesian inversion, so we call them ratios of satellite/bottom-up-emissions (OCO-2/ODIAC) for simplicity.

## 2.4. WRF-Chem model setup

We simulated the  $X_{CO_2ff}$  mole fractions using WRF-Chem V3.6.1 (Grell et al., 2005; Skamarock et al., 2008) coupled with  $CO_2$  emissions and biospheric fluxes in passive tracer mode (Lauvaux et al., 2012), following the WRF-Chem setup (domain size, resolution, physics schemes) and emission estimation method for “plume city” located in relatively flat terrain as described in Ye et al. (2020).

### 2.4.1. Atmospheric transport model setup

This study uses one-way nested domains with resolutions of 9 km and 3 km centered on Lahore. The outer domain is set to  $59.04\text{--}89.64^\circ\text{E}$ ,  $15.43\text{--}39.97^\circ\text{N}$ ,  $\sim 2700 \text{ km} \times 2700 \text{ km}$ , which covers part of the Pamir Mountains, the Tibetan Plateau, the Indian subcontinent, the Arabian Sea, and the Bay of Bengal. It includes the complex meteorology introduced by high mountains and vast water bodies. The inner 3 km domain is set to  $73.55\text{--}75.04^\circ\text{E}$ ,  $30.88\text{--}32.15^\circ\text{N}$ , a  $\sim 50 \text{ km} \times 50 \text{ km}$  domain centered on Lahore covering the large urban area and surrounding rural region.

The hourly ERA5 data (Hersbach et al., 2020) on  $0.25^\circ \times 0.25^\circ$  grids are used as the initial and boundary conditions of the meteorological and land surface fields. The model levels represent the atmospheric column from the surface to 50 hPa using 51 vertical levels. The initial and boundary conditions for the  $CO_2$  mole fractions are set constant, assuming that the long-range transport of  $CO_2$  generates only large-scale spatial gradients and preserves the local enhancements. The simulations run for 4 days starting at 00:00 UTC 3 days before the OCO-2 overpassing day, including a spin-up time of 12 h, producing hourly model outputs for each available OCO-2 track. The simulations were nudged to ERA5 to minimize the  $X_{CO_2}$  errors caused by model transport errors. A comparison of  $X_{CO_2ff}$  distribution between nudged and non-nudged simulations is shown in Fig. S7.

### 2.4.2. Fossil fuel $CO_2$ emissions

Fossil fuel  $CO_2$  emissions are based on the  $1 \text{ km} \times 1 \text{ km}$  gridded global and monthly product of ODIAC Version 2019 (Oda et al., 2018; Oda and Maksyutov, 2011). It disaggregates country-level  $CO_{2ff}$  emission estimates based on satellite-observed nighttime data and power plant profiles. Here we sum and compare the WRF-Chem and ODIAC total emissions over each domain to conserve the total mass of emitted

CO<sub>2</sub> after re-projection. We then downscaled the monthly ODIAC product to hourly resolution, using the Temporal Improvements for Modeling Emissions by Scaling (TIMES) model (Nassar et al., 2013) to consider diurnal and weekly cycles (scaling factors).

#### 2.4.3. Biogenic CO<sub>2</sub> fluxes

Biogenic CO<sub>2</sub> fluxes are based on a 3-hourly net ecosystem exchange (NEE) suite provided by the 15 different global Terrestrial Biogeochemical Models (TBMs; 0.5° × 0.5°) in the Multi-scale Synthesis and Terrestrial Model Intercomparison Project (MsTMIP) (Huntzinger et al., 2013). The 3-hourly fluxes were linearly interpolated to hourly resolution for the simulations. Spatial downscaling followed Ye et al. (2020), in which the Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) climatological Green Vegetation Fraction (GVF) is used to downscale the native biogenic fluxes to model grids, under the assumption that vegetation productivity and respiration scale linearly with canopy coverage in each grid cell.

#### 2.5. X-STILT model setup

Built upon the Stochastic Time-Inverted Lagrangian Transport (STILT) model (Fasoli et al., 2018; Lin et al., 2003), the column version, X-STILT (Wu et al., 2018), tracks the movement of air parcels backward in time from the same atmospheric column as OCO-2 soundings (“column receptors”). It incorporates averaging kernel and pressure weighting functions from OCO-2 to generate source-receptor matrices or “column footprints” (ppm / (μmol m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>), which describe the sensitivity of potential upwind emission sources on downwind satellite soundings. Specifically, 100 air parcels are released from each of the vertical levels, ranging from the surface to 6 km with a vertical spacing of 100 m below 3 km and 500 m above. For every track, we sampled approximately equally spaced 40 soundings within a 1° latitude range of Lahore and 20 soundings per degree-latitude outside Lahore. The meteorology from Global Data Assimilation System at 0.5° grid spacing (GDAS0p5, Rolph et al., 2017) is used to drive X-STILT. The sum of the convolution of gridded footprints and ODIAC emissions represent the CO<sub>2</sub> enhancement from fossil fuel emissions, as sampled by air parcels arriving at the OCO-2 sounding locations. To have the same representation of the WRF-Chem model setup, only contributions from the near-field land (30.88–32.155°N, 73.55–75.04°E) were included in the X<sub>CO2ff</sub> calculation.

#### 2.6. Flux cross-sectional integration (FCSI) method setup

Our flux integration technique follows Varon et al. (2018) and we applied it to each OCO-2 track city plume transect. To establish the link between the flux computed across the plume transect and the city emissions, our method assumes steady-state conditions for both emissions and wind in the hours preceding the satellite overpass and a relatively homogeneous wind field over the area. The method follows five successive steps: (i) estimation of the effective wind driving the plume from the city, (ii) calculation of the background concentrations, (iii) detection of the limits of the plume section, (iv) integration of the flux directly derived from the plume enhancements, and (v) determination of the surface footprint of the selected plume.

The effective wind corresponds to the mean wind seen by the targeted CO<sub>2</sub> signal, i.e. the mean over the plume of the wind weighted by local CO<sub>2</sub> mass. Because the CO<sub>2</sub> vertical distribution is unknown, the effective wind cannot be directly estimated. We used the mean wind in the planetary boundary layer (PBL), weighted by the dry air mass instead of the unknown CO<sub>2</sub> mass. This estimator for the effective wind is similar to Kuhlmann et al. (2020) and Zheng et al. (2020), who used a specific altitude (500 m above ground level) as the vertical limit. Here, we assumed that the observed CO<sub>2ff</sub> is well-mixed within the PBL because OCO-2 transects are located sufficiently far from the sources. The effective wind vector is averaged horizontally over the whole WRF-

Chem 3-km domain to smooth the integrations along the OCO-2 tracks. For wind information, we used the high-resolution operational forecasts (HRES, available at 0.1°/1-h resolution) of the Integrated Forecasting System of the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) (Owens and Hewson, 2018). The estimate of the effective wind is a major source of uncertainty in the method (Section Text S1.5). Both errors on its speed and its direction generate errors in the emission estimates (see Eq. 2). Information on the actual effective wind direction could be derived from the direction from Lahore to the detected plume. However, as discussed in section 3.4, the inconsistencies between this direction and that of the estimate of the effective wind could be linked to a misattribution of the detected enhancement. Furthermore, using a combination between such a characterization of the effective wind direction and the estimate of the effective wind speed from the meteorological analysis may not make more sense than using the full and consistent estimate of the effective wind speed and direction from the meteorological analysis. The level of coherence between the estimate of the effective wind direction and the plume direction is thus taken as a qualitative indication on the accuracy of the results but is not exploited to adjust the estimate of the effective wind.

The determination of the background X<sub>CO2</sub> over Lahore, the X<sub>CO2</sub> due to upwind sources and sinks other than the emissions from Lahore, aims at isolating the X<sub>CO2</sub> enhancement from sources within the urban area of Lahore. We used two different estimators for the background, detailed in Section Text S1.1.

X<sub>CO2</sub> enhancements (peaks) can appear along the OCO-2 tracks due to nearby sources, fine-scale variations in the background caused by complex transport patterns, structured errors in the OCO-2 retrievals, and/or potential errors in the background determination method. Therefore, the next step consists of identifying the enhancement originating from Lahore. Spatial smoothing of the retrievals is applied to the background-removed retrievals to filter the noise in the data, separate the different enhancements, and identify the most probable plume. Multiple smoothing methods are applied (Section Text S1.2), along with two peak identification methods (Section Text S1.2). The combination of processing steps and two background calculation methods (Section Text S1.1) give us a set of emissions estimates for each track. The sets are filtered to ensure the coherence between the wind direction from the effective wind computation and the direction from Lahore to the plume section, as well as verify that the plume section is wide enough to catch a representative segment of Lahore emissions (Section Text S1.4).

The enhancement identified as being the plume from Lahore (denoted ΔX<sub>CO2Lahore</sub>) is then integrated to estimate the flux of CO<sub>2</sub> mass coming from Lahore through the transect. The enhancement, in ppm, is converted in kg/m<sup>2</sup> using the following equation:

$$\Delta\Omega_{\text{Lahore}} = \frac{M_{\text{CO}_2}}{M_{\text{dryair}}} \Delta X_{\text{CO}_2\text{Lahore}} \times 10^6 P_{\text{dryair}(\text{surf})} / g \quad (1)$$

where  $M_{\text{CO}_2}$  and  $M_{\text{dryair}}$  are the CO<sub>2</sub> and dry air molar masses,  $P_{\text{dryair}(\text{surf})}$  is the dry air surface pressure, and  $g$  is the gravitational acceleration. The flux is then calculated following:

$$F_{\text{OCO-2}} = \int_{x \in \text{plume}} \Delta\Omega_{\text{Lahore}}(x) \vec{U}_{\text{eff}} \cdot \vec{n}_{\text{Track}} dx \quad (2)$$

where  $\vec{n}_{\text{Track}}$  is the vector normal to the track and  $x$  the along track distance and  $\vec{U}_{\text{eff}}$  is the effective wind vector. A key parameter for OCO-2 track selection is the angle between the OCO-2 track and the effective wind vector, which are ideally normal to each other. Indeed, the impact of wind angle errors increases non-linearly with the angle between the normal to the track and the wind (Section Text S1.5).

As the detected plume corresponds to a fraction of the city administrative boundaries or area with significant emissions in and around the city, we define the emission zone as the surface area upwind of the selected plume (Section Text S1.3). The flux estimate will then be

compared to ODIAC emissions within this specific emission zone.

## 2.7. CO<sub>2ff</sub> emission trend detection

### 2.7.1. Bayesian inversion framework

The posterior emission ( $E_m$ ) and its error variance ( $\sigma_e^2$ ) are obtained as follows:

$$E_m = \lambda E_i \quad (3)$$

$$\sigma_e^2 = \sigma^2 E_m \quad (4)$$

where  $\lambda$  is the scaling factor,  $E_i$  is the emission from the priori emission inventory and  $\sigma^2$  is the error variance of the scaling factor. Note that  $\lambda$  is different from the ratios of satellite/bottom-up-emissions. The Bayesian inversion calculated  $\lambda$  by optimizing the satellite/reference ratios with uncertainties (Eq. 6).

Following Ye et al. (2020), the scaling factor ( $\lambda$ ) was calculated using a Bayesian inversion method. We estimated the error variance in the observations ( $\sigma_o^2$ ) by adding the two terms:

$$\sigma_o^2 = \sigma_{\text{satellite}}^2 + \sigma_{\text{model}}^2 \quad (5)$$

where  $\sigma_{\text{satellite}}^2$  is the satellite measurement error variance and  $\sigma_{\text{model}}^2$  is the forward model error variance. The estimations of these two terms are detailed in Section 2.7.2.

For each track, scaling factor ( $\lambda$ ) and the posterior error variance ( $\sigma^2$ ) can be written as:

$$\lambda = \lambda_a + y_m \sigma_a^2 (y_m^2 \sigma_a^2 + \sigma_o^2)^{-1} (y_o - y_m \lambda_a) \quad (6)$$

$$\sigma^2 = \sigma_a^2 \sigma_o^2 (\sigma_o^2 + y_m^2 \sigma_a^2)^{-1} \quad (7)$$

where  $y_o$  and  $y_m$  represent the integrated  $X_{\text{CO2ff}}$  along a latitudinal range from the satellite and model, respectively and  $\sigma_a$  is the uncertainty of the prior estimate, set as a fraction of the emissions. The prior estimate ( $\lambda_a$ ) is set to unity (1).

In this study, we estimated the posterior emissions based on outputs of WRF-Chem only, allowing us to include error estimations for both the biosphere and the transport model error in the final estimation. The inputs include CO<sub>2ff</sub> prior emission ( $E_i$ ), prior uncertainty ( $\sigma_a$ ), integrated  $X_{\text{CO2ff}}$  along a latitudinal range from the satellite ( $y_o$ ) and model ( $y_m$ ), and satellite and model errors ( $\sigma_{\text{satellite}}$  and  $\sigma_{\text{model}}$ ). Specially,  $E_i$  is obtained from ODIAC and  $y_o$  is derived based on OCO-2  $X_{\text{CO2}}$  after removing the background and the Biogenic  $X_{\text{CO2}}$  (See Section 2.2 and 2.4.3), with error determination described in Section 2.7.2.

### 2.7.2. Error determination

**2.7.2.1. Prior uncertainty and measurement error.** We assumed 3 different (10%, 20%, and 40%) prior uncertainty levels to test their effect on CO<sub>2ff</sub> emission inversion. The satellite measurement error ( $\sigma_{\text{satellite}}$  in eq. (5)) of each  $X_{\text{CO2}}$  sounding consists of three parts: a random error related to noise, a systematic error, and the uncertainty from biogenic flux. Similar to a previous study (Ye et al., 2020), we conservatively considered a random error for each  $X_{\text{CO2}}$  sounding with a standard deviation of 1 ppm, leading to a 0.20–0.45 ppm standard deviation for the 1-s averaged data calculated with 5–24 soundings (a fraction of soundings filtered by the quality flags). Systematic errors are ignored as we used bias-corrected data, which is presumably free from potential biases. The uncertainty from biogenic fluxes cannot be derived from the satellite data. Instead, we used the standard deviations of Bio- $X_{\text{CO2}}$  driven with the 15 different global TBMs (also see Section 2.4.3) to represent the biogenic flux uncertainty in observed  $X_{\text{CO2}}$ .

**2.7.2.2. Model error caused by transport error.** Following the method described in Ye et al. (2020), we determined transport model errors

using the rotation and stretch of modeled wind fields. We rotated the simulated plume  $\bar{c}(x, y, t)$  at a given time ( $t$ ) by an angle  $\theta$  about the emission center ( $x_0, y_0$ ) to get  $\bar{c}_r(x_r, y_r, t)$ . The rotated plume was then transformed to incorporate random wind speed error ( $\varepsilon$ ) as:

$$\bar{c}_r(x_r, y_r, t) = \frac{\bar{u}}{\bar{u} + \varepsilon} \bar{c}_r(x_r, y_r, t) \quad (8)$$

where

$$x_r = \frac{\bar{u} + \varepsilon}{\bar{u}} (x_r - x_0) + x_0, y_r = y_r \quad (9)$$

We assumed that errors in wind speed and direction follow the normal distributions of  $N(0, \sigma_{\text{ws}})$  (unit: m/s) and  $N(0, \sigma_{\text{wd}})$  (unit: °), respectively, where  $\sigma_{\text{ws}}$  and  $\sigma_{\text{wd}}$  are standard deviations of wind speed and direction, respectively. The evaluations of  $\sigma_{\text{ws}}$  and  $\sigma_{\text{wd}}$  are shown in Section Text S4. The  $X_{\text{CO2}}$  model errors are represented by the standard deviations of 10,000 Monte Carlo simulations of transformed plumes.

## 3. Results

### 3.1. Global view of high-quality OCO-2 tracks

To understand the potential of OCO-2 satellite data on detecting an urban CO<sub>2ff</sub> emission trend, the global data availability must be quantified. Thus, we scanned all the OCO-2 soundings from 2014 to 2019 and calculated how many are high-quality soundings, as marked by quality flags on  $1^\circ \times 1^\circ$  grids (Fig. 1). Note that the OCO-2 soundings are subject to a two-level quality inspection (L1 and L2). The ratios of high-quality soundings for each level are shown in Fig. S3. The ratios used in Fig. 1 were obtained by multiplying the ratios in L1 and L2. Globally, about 10.82% of soundings are marked as high-quality by OCO-2 quality flags, while the high-quality sounding ratio in the low- and mid-latitudes ( $< 60^\circ$ ) is 14.61%. The global mean ratio over land (11.47%, excluding Antarctica) is similar to the global ocean (11.85%) mean ratio. In the low- and mid-latitudes, the mean ratio over land is 14.36% and 14.71% over the oceans. The ratios over Asia, Latin America, North America, Africa, Europe, and Oceania are 9.82%, 6.99%, 7.39%, 18.57%, 6.10%, and 38.07%, respectively. Some areas in the mid-latitude, such as the western United States, southern Africa, Australia, North Africa, and the Middle East, have ratios higher than 50% while some areas in China, Southeast Asia, part of the Sahara Desert, Central Africa, and the Amazon forests have ratios lower than 10%.

### 3.2. OCO-2 high-quality soundings over the 70 most populated cities

Since this study focuses on the CO<sub>2ff</sub> emissions from city areas, we scanned all OCO-2 tracks over the 70 most populated cities globally from 2014 to 2019 to examine how many tracks are valid for CO<sub>2ff</sub> emission inversion calculations. The names of the 70 cities are listed in Fig. S4. Considering that cities vary significantly by size, we calculated the ratios of OCO-2 high-quality soundings from all soundings within boxes of

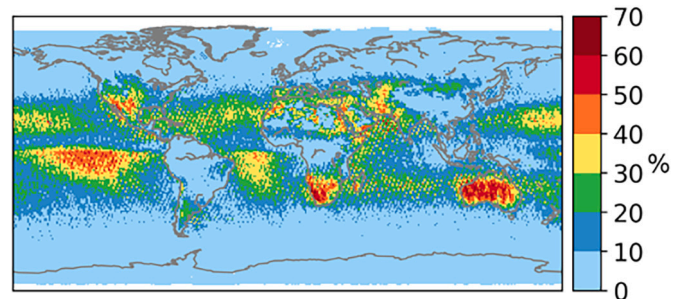


Fig. 1. Global  $1^\circ \times 1^\circ$  OCO-2 high-quality sounding ratios past two-level quality inspection.

different sizes (from 25- to 200-km border-to-center distance) to account for suburban areas and nearby towns (Fig. 2). Like the  $1^\circ \times 1^\circ$  global view, the ratios of high-quality soundings over the 70 cities are shown more specifically at the L1 and L2 levels in Fig. S5. Overall, the ratio remains at about 17%, independent of the box sizes. Further investigation shows that the data loss in OCO-2 measurements is mainly due to cloud and aerosol followed by topography (see Section Text S3). We only considered the target and glint modes in our study. The numbers of soundings in the same-size boxes over different cities are almost equal because the soundings are evenly distributed along the tracks (for both nadir and glint modes). Assuming that the ratio of useable tracks is similar to the fraction of high-quality soundings, on average 3–4 tracks per city per year are valid for  $\text{CO}_2$  emission inversion, given the 16-day OCO-2 revisit period. The ratios of high-quality soundings near cities in North America and Africa are higher than for any other continent. Over North America, Europe, and Asia the ratios of high-quality soundings gradually decrease as the box size increases. There are more high-quality soundings within a 25-km box than other sized boxes in Latin America, which might relate to the proximity of the coastline (lower retrieval density over water). The ratio of good soundings increases significantly as the box size increases in Oceania because Sydney, the only selected city in Oceania, is on the coast and far from other large cities. The ratio of good soundings also increases with box size in Africa from 25 to 100 km.

### 3.3. Comparison of modeled and observed local $X_{\text{CO}_2\text{ff}}$ enhancement over Lahore

The  $X_{\text{CO}_2\text{ff}}$  enhancement is defined as the enhancement in  $X_{\text{CO}_2}$  due to local fossil fuel emissions. Fig. 3 shows two sample comparisons between modeled and observed  $X_{\text{CO}_2\text{ff}}$  enhancements. On Apr 2, 2017, the OCO-2 1-s averaged data showed a 0.68 ppm  $X_{\text{CO}_2\text{ff}}$  enhancement peak at  $31.57^\circ$  E latitude. WRF-Chem captured a similar 0.58 ppm peak, but the position shifted slightly south. X-STILT showed a 0.29 ppm peak, much lower than OCO-2 and WRF-Chem, located between the OCO-2 and WRF-Chem peaks. On Jan 15, 2018, OCO-2 1-s averaged data showed a 0.22 ppm peak at  $31.43^\circ$  E latitude. WRF-Chem also shows a peak at that position, but the enhancement is about 1.77 times higher than the OCO-2 peak at 0.39 ppm. X-STILT showed a similar 0.38 ppm

peak as WRF-Chem, but located at  $31.22^\circ$  E latitude. It is notable that the modeled peak enhancement and position are sensitive to the modeled wind field. For example, the WRF-Chem and X-STILT peaks on Jan 15, 2018, not overlapping but show a similar enhancement (Fig. 3d), implying that the wind directions slightly differ in the two models.

The comparison of 25 all-data tracks is shown in Fig. S9 and the comparison of the 8 high-quality tracks is shown in Fig. S10. Overall, the OCO-2 data in the all-data tracks showed greater variations of  $X_{\text{CO}_2\text{ff}}$  and greater discrepancies with the two models than the high-quality tracks. The  $X_{\text{CO}_2}$  enhancement peaks of the two models are more consistent with each other than with those in the OCO-2 data, in terms of both position and magnitude.

### 3.4. FCSI method emission ratios

Fig. 4 shows two representative examples of plume transects by OCO-2 and illustrates the application of the different steps of the FCSI method. The first example (Fig. 4ab) corresponds to favourable conditions on Jan. 15, 2018 with a near-perfect match between the maximum enhancement and the projected wind vector, while the second example illustrates the more challenging conditions on May 15, 2015. Note that favourable condition is a stricter condition than high-quality tracks. Tracks with favourable conditions are much fewer than high-quality tracks, not enough to evaluate the performance of the FCSI method. In the second example, the mismatch between the location of the detected plume section and the estimate of the effective wind direction can be explained by either (i) uncertainties in the wind field from the meteorological re-analysis product used to estimate the effective wind, (ii) uncertainties in the derivation of the effective wind due to a lack of knowledge on the vertical distribution of  $\text{CO}_2$  (especially when  $\text{CO}_2$  accumulates near the surface), or (iii) the fact that the detected plume section could actually correspond to a signal from  $\text{CO}_2$  sources other than the city of Lahore. A lack of coherence between the detected plume direction characterized by the location of the detected plume section and the effective wind direction estimate highlights a major error in the estimate of the effective wind that applies to both direction and speed or misattribution of the enhancement. To determine the corresponding surface area influencing the OCO-2 retrievals, a mask is applied to ODIAC based on the effective wind direction of the plume (computed

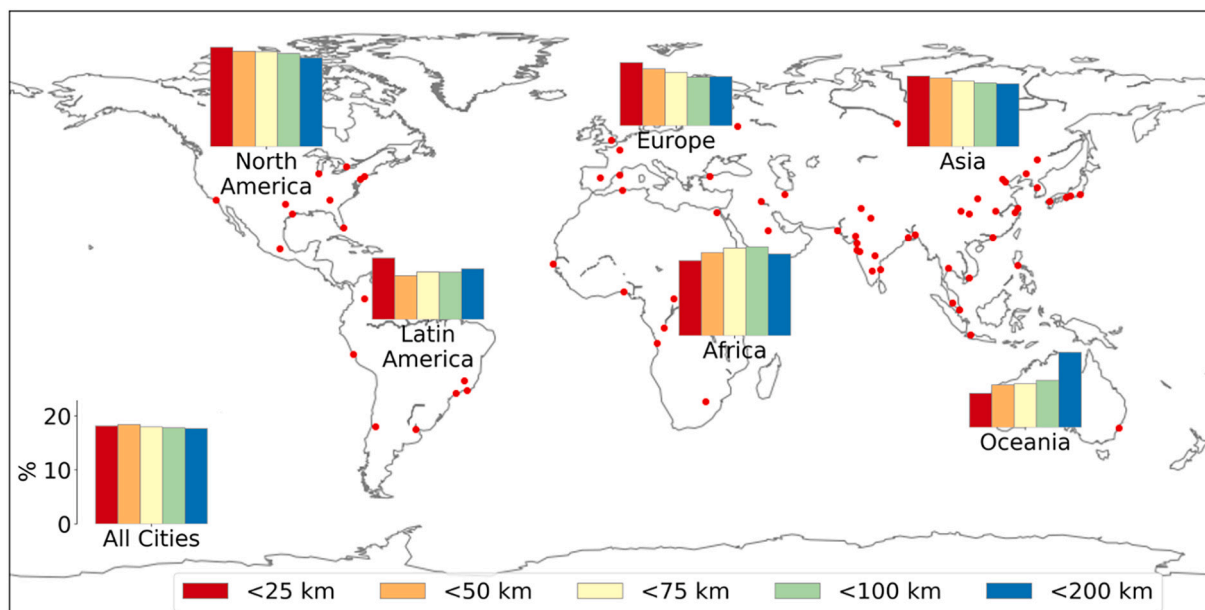
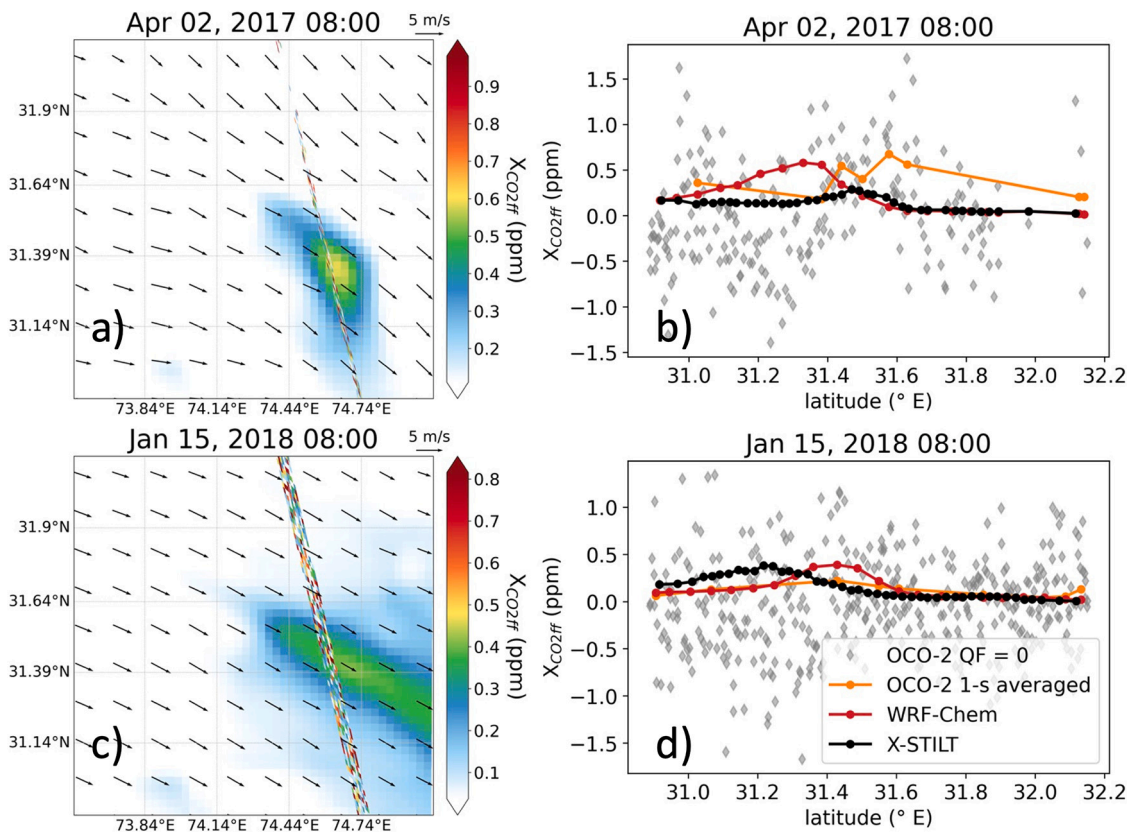


Fig. 2. Regional ratios of OCO-2 high-quality soundings from all soundings over the most populated 70 cities within boxes of 25-, 50-, 75-, 100-, and 200-km border-to-center distance (the red dots are city locations). (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)



**Fig. 3.** Comparison between modeled and observed  $X_{CO2ff}$  enhancements of two sample high-quality tracks over Lahore. Panels (a) and (c) show the simulated  $X_{CO2ff}$  from WRF-Chem and the observed  $X_{CO2ff}$  obtained from the OCO-2 data (background and biosphere  $X_{CO2}$  have been subtracted). The vectors represent 10-m wind from WRF-Chem with the reference vector standing for a wind speed of 5 m/s. Panels (b) and (d) show the OCO-2  $X_{CO2ff}$  (grey diamond marks represent high-quality (QF = 0) soundings, with background and biosphere  $X_{CO2}$  subtracted), 1-s averaged OCO-2  $X_{CO2ff}$  (Orange dotted line), simulated  $X_{CO2ff}$  by WRF-Chem (red dotted line), and X-STILT (black dot line). (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

from the plume center instead of the ECMWF HRES wind vector for consistency).

### 3.5. Evaluation of OCO-2 quality flags at the city-level

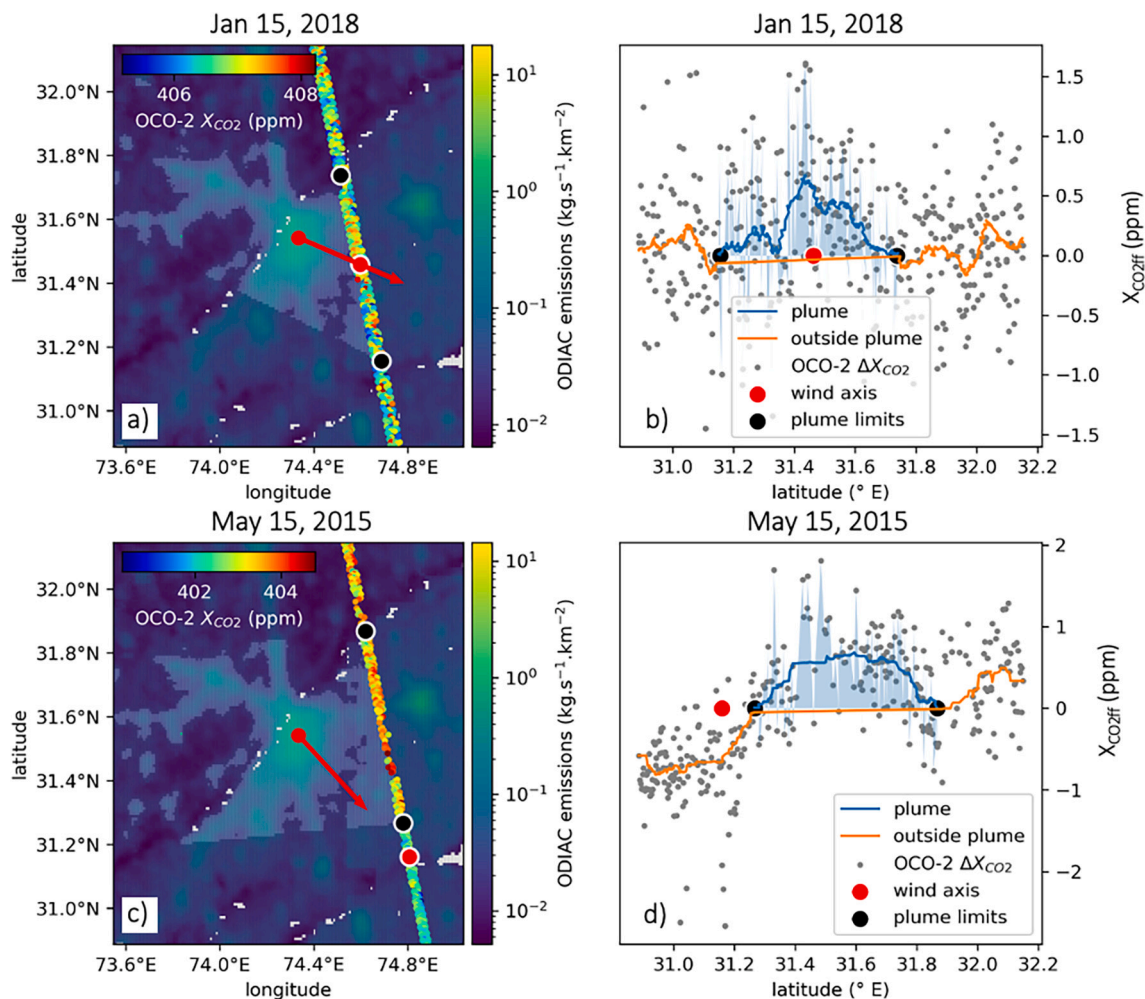
The OCO-2 quality flags were originally designed for global-scale studies. Although there are some TCCON sites located in urban areas (<http://www.tcon.caltech.edu/site-locations/index.html>), its effectiveness at city scale has not been fully evaluated. Because the soundings filtered out by the quality flags in the L1 product have no corresponding  $X_{CO2}$  values, we could only examine the  $X_{CO2}$  soundings in the L2 data. Due to the lack of ground-based  $X_{CO2}$  data, we evaluated the relevance of quality flags in L2 products based on the three methods. This multi-model evaluation is independent of model-specific assumptions, especially the meteorological conditions: WRF driven by ERA-5, X-STILT driven by GDAS, and FCSI with ECMWF HRES.

Fig. 5 shows the satellite/bottom-up-emissions (OCO-2/ODIAC) ratios for the 25 all-data tracks (in red) and 8 high-quality tracks (in blue). We compared the ratios rather than the differences because the  $CO_{2ff}$  emission scaling factors are based on the satellite/bottom-up-emissions ratios. For simplicity, Fig. 5 is a boxplot without outliers (see Fig. S11 for outliers). The ratios of the high-quality group converge closer to 1 compared to the all-data group. The high-quality tracks produce relatively few outliers while the 25-track ratios show large outliers (>10; Fig. S11). For high-quality tracks, WRF-Chem and X-STILT have similar reported error bars but the error bar of the FCSI method is greater. All 3 models consistently suggest that the median ratios are greater than 1, which implies that the ODIAC slightly underestimates the  $CO_{2ff}$  emis-

unreported sources or inaccurate emission factors over fast-growing areas like Lahore. For the FCSI method, the mean of high-quality cases is not similar to the other methods, but the spread is much smaller than the all-data estimate. Based on the reduced spreads of high-quality tracks, we conclude that the OCO-2 quality flags are useful filters to identify low-quality OCO-2 retrievals producing unlikely emission values over Lahore. Hence, quality flags should be considered in city-scale studies. The larger uncertainties of the FCSI method might be caused by the variability in the surface footprint, which is difficult to accurately determine due to uncertainties in the identification of the city plume and vertical distribution of  $CO_2$  (with well-mixed conditions assumed in the wind calculation). The high-quality track ratios from X-STILT seem to converge more (smaller range) than WRF-Chem. Given that only 8 high-quality tracks are used for comparison, more tracks are needed to confirm which model is optimal for  $CO_{2ff}$  inversion. The large spread in low-quality OCO-2 tracks across the three methods confirms the relevance of the quality flags in urban emission quantification.

### 3.6. Emission trend detection over Lahore

We calculated the  $CO_{2ff}$  emissions using our Bayesian inversion system applied to the 8 high-quality tracks simulated by WRF-Chem (Fig. 6). We estimated the posterior (optimal) emissions only using WRF-Chem, as it is the only model for which both biosphere fluxes and transport errors have been quantified here. To better understand the impact of prior emissions and observations (defined as  $\sigma_a$  and  $\sigma_o$  in eqs. (5), (6), and (7)), we ran our Bayesian inversion system with various uncertainty levels. In a previous study (Ye et al., 2020), prior uncertainties over cities other than Los Angeles were estimated as 40% of

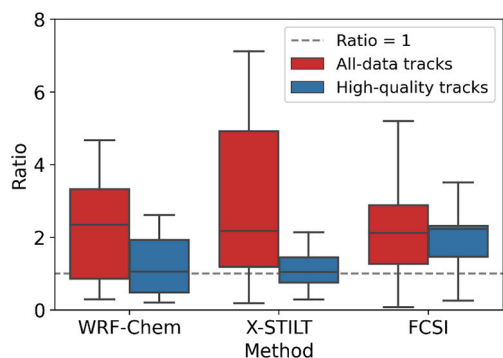


**Fig. 4.**  $X_{CO_2}$  retrievals and their corresponding surface footprints on Jan 15, 2018 (a and b) and May 15, 2015 (c and d). Panels (a) and (c) show the OCO-2  $X_{CO_2}$  sounding over the ODIAC inventory (in the WRF inner domain), with the calculated emission zone (white shading) and estimated effective wind direction (red arrow). Panels (b) and (d) show the along-track background-removed raw OCO-2  $X_{CO_2}$  data (grey dots) with the smoothed data inside (blue line) and outside (orange line) the detected plume. The blue area highlights the integrated area used for emission calculation. The variations of the  $X_{CO_2}$  signal outside the detected limits of the plume originate from other sources excluded by our emission mask and are thus not used for the emission calculation. In all panels, black dots represent the plume detected limits and the red dots are the wind axis-track axis intersection. (For interpretation of the references to colour in this figure legend, the reader is referred to the web version of this article.)

the net emissions at the daily time scale. We also defined our initial prior emission uncertainty as 40% of city emissions. However, the observation uncertainty varies by track; see Section 2.7.2 and Table S2 for details of observation uncertainty estimation. The baseline (red line in Fig. 6a) uses a prior uncertainty of 40% of emissions and observation uncertainty as indicated in Table S2. We tested the impact of prior uncertainties by assigning different values, from 10% to 20% and 40% of emissions (Fig. 6a), as well as the impact of observation uncertainties by decreasing the variances down to 10%, 20%, and 40% of the original estimation (Fig. 6b). The inversion inputs are listed in Table S2. Note that the 8 high-quality tracks are sampled at different times of the year. We adjusted the individual posterior emissions by their prescribed monthly and weekday scaling factors to remove the effects of sub-annual variability. Monthly scaling factors are the ratios of monthly emissions / monthly averaged emissions in corresponding years from ODIAC. Weekday scaling factors were obtained from the Temporal Improvements for Modeling Emissions by Scaling (TIMES) model (Nassar et al., 2013). In future studies, these adjustments should be based on economic activity data (e.g., energy production/consumption, traffic, industrial activities) instead of a prescribed climatology of fossil fuel emission.

The trend in the posterior emission baseline case is about 734 kt<sup>141</sup> Carbon per year (or 6.7%) independent of prior uncertainty. However,

the emission trend decreases as the level of confidence in the OCO-2 data (and the WRF-Chem model) increases (i.e., observation uncertainty decreases) (cf. Table 1). Based on the Mann-Kendall test (Lei et al., 2018, 2019), we evaluated the trend significant probability at various prior uncertainty levels. We calculated the possibility of  $p$ -values less than 0.05 from 10,000 Monte Carlo simulations of the Mann-Kendall upward trend test. The possibility significantly increases as prior uncertainty decreases, while significantly decreasing as observation uncertainty decreases. We conclude here that for the 8 high-quality tracks, the trend is mostly driven by prior emissions while the track-to-track variability is too large to identify the positive trend based solely on OCO-2 data. To understand the effect of the number of valid satellite tracks, we also ran idealized simulations of  $p$ -values for 25 high-quality tracks (with the same dates as the 25 all-data tracks) assuming that posterior emissions and uncertainties are equal to the prior. The probability of detecting the positive trend with 25 tracks increases to 98.71%, 60.20%, and 25.25% when prior uncertainties are set at 10%, 20%, and 40%, respectively. The possibility is significantly higher than using 8 high-quality tracks. To achieve a greater-than-50% significance possibility at the 95% confidence level, less than 10% prior uncertainty for 8 tracks (or less than 20% prior uncertainty for 25 tracks) is required. This implies that the trend is driven by prior and not optimized emissions, even with 25 valid



**Fig. 5.** Comparison of satellite/bottom-up-emissions (OCO-2/ODIAC) ratios for the 25 all-data tracks and 8 high-quality tracks. The ratios of WRF-Chem and X-STILT correspond to the ratios of the integrals of  $X_{CO_2ff}$  along the OCO-2 tracks. The ratios of the FCSI method correspond to the ratios of  $CO_{2ff}$  emissions over the areas identified as plumes. For each box, the central line indicates the median while the bottom and top edges of the box indicate the 25th and 75th percentiles ( $q_1$  and  $q_3$ ), respectively. Outliers greater than  $q_3 + 2 \times (q_3 - q_1)$  or less than  $q_1 - 2 \times (q_3 - q_1)$  are omitted for simplicity and can be found in Fig. S11. The whiskers extend to the most extreme value that is not an outlier.

tracks over 5 years.

#### 4. Discussion

We calculated the number of usable tracks based on the ratios of OCO-2 high-quality soundings compared to all available soundings. We also found that the number of usable tracks varies significantly among cities when searching for tracks with over 150 high-quality soundings. For example, 7–9 high-quality tracks per year are found over Los Angeles and 14–16 high-quality tracks per year are found over Mexico City, but we found less than 1 high-quality track per year over Beijing and Washington DC. On the other hand, the number of high-quality tracks is limited by factors such as downwind location of the track, wind homogeneity, sounding distribution, magnitude of  $X_{CO_2}$  enhancement, city size, and aerosol contamination.

We selected Lahore in Pakistan as a case study. In theory, its size and fast-growing economy should make it easier to capture the annual  $CO_{2ff}$  emission trend from satellite data. For cities with slowed growth or reduced fossil fuel consumption under climate policies, a longer time window is needed until the total changes in emissions that can be statistically confirmed are greater than sub-annual variations. Currently, the number of high-quality satellite tracks is not sufficient to capture sub-annual variations. Forthcoming satellite missions will provide additional observations potentially able to capture urban emission trends (e.g. GeoCarb, CO2M). Another solution is to refine the sounding

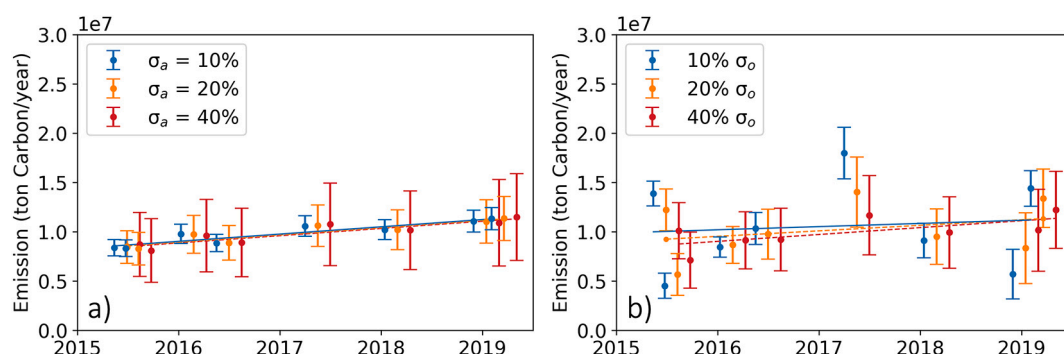
selection criteria for cities. We examined the thresholds of selection criteria that trigger the quality flags and found the default thresholds in the OCO-2 L2 product are slightly over-cautious for Lahore (Section Text S5). Adjusting the thresholds for cities may bring more high-quality tracks from current satellites (OCO-2/3). Note that the impact of local topography on dispersion varies between plume city and base city (Ye et al., 2020), which might lead to large differences in sounding selection criteria due to aerosol accumulation.

The signal-to-noise ratio is also a notable problem. The  $X_{CO_2ff}$  enhancements derived from 1-s averaged data (Fig. 3 and Fig. S10) are usually less than 1 ppm, but the variation in non-average data can be as high as 1.5 to 2.0 ppm in the 1-s interval. Thus, satellite data with higher precision would be beneficial to better constrain  $CO_{2ff}$  emissions.

Observing System Simulation Experiments (OSSEs) (Y. Wang et al., 2020a; Ye et al., 2020) could constrain the monthly emission uncertainties with multiple valid tracks at higher temporal frequency, thanks to the absence of any significant bias in model errors. If multiple tracks were made available each month, the  $CO_{2ff}$  emission trend could be captured by satellite observations independently of priori emission trends.

The cost-efficiency ratios of the models must be considered for future expansions of this study to more cities. The FCSI method is the least CPU demanding but its satellite/bottom-up-emissions ratios of suitable tracks seem to converge less than for WRF and X-STILT. However, more valid tracks would be needed to confirm this result. X-STILT requires mid-level computational resources among three approaches and its derived ratios of high-quality tracks converged more than the other two methods. Given that only 8 high-quality tracks were examined over Lahore in this study, no definitive conclusion can be drawn whether X-STILT or WRF-Chem is an optimal solution with the highest cost-effectiveness. Additional comparisons between these approaches using more tracks and over different cities are required in the future.

The next generation Orbiting Carbon Observatory satellite, OCO-3, was launched in May 2019, providing a novel viewing mode dedicated to denser data collection over cities. The Snapshot Area Map (SAM) mode of OCO-3 yields a raster of data by scanning wider areas over cities compared to OCO-2, reducing the possibility that the tracks miss the plumes from cities. The Bayesian inversion framework should be adjusted to fit the wider spatial coverage. OCO-2 continues to collect observations even after the launch of OCO-3, allowing us to study the difference between the two satellites and whether the SAM mode improves  $CO_{2ff}$  emission inversion. In addition, more  $CO_2$  monitoring satellites (e.g. GeoCarb and CO2M) will be launched in the coming years. Reconciling various satellite products will remain challenging with noticeable differences between  $X_{CO_2}$  retrievals from the different satellites, but this constellation also represents an opportunity to leverage a large volume of satellite-derived  $X_{CO_2}$  data to better understand urban carbon emissions.



**Fig. 6.** Posterior  $CO_{2ff}$  emissions over Lahore at various uncertainty levels: a) fix observation uncertainty ( $\sigma_o$ ) as 100% of derived from OCO-2 and WRF-Chem as well as set prior uncertainty ( $\sigma_a$ ) as 10%, 20%, and 40%; b) fix prior uncertainty ( $\sigma_a$ ) as 40% and set observation uncertainty ( $\sigma_o$ ) as 10%, 20%, and 40% of derived from OCO-2 and WRF-Chem. Note: To avoid overlapping error bars, we offset 20% and 40% error bars by 1.5 and 3 months, respectively. The dash lines represent the least-squares linear regression of the medians.

## 5. Conclusions

In this study, we examined the number of valid OCO-2 tracks over the 70 most populated cities globally by examining the ratios of high-quality soundings. About 17% of OCO-2 soundings are marked as high-quality by the current flagging procedure. Given the 16-day OCO-2 revisit period, this produces 3–4 valid tracks per year per city on average. The occurrence of sounding selection criteria shows that cloud blockage and aerosol contamination are the two main causes of data loss.

The OCO-2 quality flags were originally designed for global-scale studies. We for the first time evaluated their effectiveness at the city level. We selected Lahore in Pakistan as a case study and compared satellite/bottom-up-emissions ratios from WRF-Chem, X-STILT, and the FCSI method using 25 all-data tracks and 8 high-quality tracks. The ratios of the high-quality group with significantly lower uncertainties converge closer to 1 compared to the all-data group. Thus, OCO-2 quality flags defined at the global level are useful filters for removing low-quality OCO-2 retrievals in city-scale studies. All three models consistently suggest that the ratio medians are greater than 1, implying that the ODIAC product may be slightly underestimating CO<sub>2ff</sub> emissions over Lahore.

We estimated the posterior (optimal) CO<sub>2ff</sub> emissions over Lahore using a Bayesian inversion system at various prior and observation uncertainty levels and adjusted posterior emissions by monthly and weekday scaling factors. The prior CO<sub>2ff</sub> emissions from ODIAC suggest that the Lahore 2014–2019 trend was about 646 kt C/year (i.e., an annual 5.9% increase), while the baseline of posterior CO<sub>2ff</sub> emission trend was about 734 kt C/year (i.e., an annual 6.7% increase). The trend significant probability of posterior emissions was independent of prior uncertainty but decreases as the observation uncertainty decreases. This suggests that the emission trend is mostly driven by ODIAC emissions. To understand the effect of the number of valid satellite tracks, we also ran idealized simulations of *p*-values for 25 tracks assuming that posterior emissions and uncertainties equal to the prior values. The 10,000 Monte Carlo simulations of the Mann-Kendall upward trend test showed that less than 10% prior uncertainty for 8 tracks (or less than 20% prior uncertainty for 25 tracks) is required to achieve a greater-than-50% trend significant possibility at a 95% confidence level. It implies that the trend is driven primarily by the prior emissions and not the OCO-2 observations, with either 8 or 25 valid tracks over 5 years. The key to improving the role of satellites and models in emission trend detection is to obtain more valid tracks. This requires additional satellite measurements with an increased sampling frequency, wider swaths of satellite tracks, a better understanding of X<sub>CO2</sub> retrievals over cities, and a parallel improvement of CO<sub>2ff</sub> emission inversion methods.

### Data availability

The following data in this study is available from public sources:  
 NCAR Upper Air Database: <https://rda.ucar.edu/datasets/ds370.1/>  
 NCEP ADP Global Surface Observational Weather Data: <https://rda.ucar.edu/datasets/ds461.0/>  
 CO<sub>2ff</sub> emission from ODIAC: [http://db.cger.nies.go.jp/dataset/ODIAC/DL\\_odiac2019.html](http://db.cger.nies.go.jp/dataset/ODIAC/DL_odiac2019.html)  
 TIMES temporal scaling factors: [https://cdiac.ess-dive.lbl.gov/ftp/Nassar\\_Emissions\\_Scale\\_Factors/MsTMIP\\_Biogenic\\_CO2\\_Fluxes](https://cdiac.ess-dive.lbl.gov/ftp/Nassar_Emissions_Scale_Factors/MsTMIP_Biogenic_CO2_Fluxes): [https://nacp.ornl.gov/MsTMIP\\_products.shtml#datasets](https://nacp.ornl.gov/MsTMIP_products.shtml#datasets)  
 OCO2\_L2\_Lite\_FP: [https://disc.gsfc.nasa.gov/datasets/OCO2\\_L2\\_Lite\\_FP\\_9r/summary](https://disc.gsfc.nasa.gov/datasets/OCO2_L2_Lite_FP_9r/summary)  
 ERA5 climate reanalysis: <https://climate.copernicus.eu/climate-reanalysis>  
 GDAS0p5: <ftp://arlftp.arlhq.noaa.gov/archives/gdas0p5/>  
 All analysis code will be made available on request.

**Table 1**

Least-squares linear regression equations of posterior CO<sub>2ff</sub> emissions over Lahore and trend significant probabilities at various uncertainty levels. Note: the trend significant probabilities are defined as the possibilities that the *p*-values of the Mann-Kendall upward trend test less are than 0.05 derived by 10,000 Monte Carlo simulation.

Prior uncertainty (σ <sub>a</sub> )	Observation uncertainty (σ <sub>o</sub> )	Linear regression equation	Trend significant probability
10%		$y = 7.37 \times 10^5 \times -1.48 \times 10^9, R^2 = 0.86$	57.37%
20%	100% σ <sub>o</sub>	$y = 7.37 \times 10^5 \times -1.48 \times 10^9, R^2 = 0.86$	23.04%
40%		$y = 7.34 \times 10^5 \times -1.47 \times 10^9, R^2 = 0.83$	10.26%
	10% σ <sub>o</sub>	$y = 3.23 \times 10^5 \times -6.41 \times 10^8, R^2 = 0.01$	0.01%
40%	20% σ <sub>o</sub>	$y = 5.62 \times 10^5 \times -1.12 \times 10^9, R^2 = 0.09$	3.87%
	40% σ <sub>o</sub>	$y = 7.00 \times 10^5 \times -1.40 \times 10^9, R^2 = 0.44$	9.49%

### Declaration of Competing Interest

The authors declare that they have no known competing financial interests or personal relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

### Acknowledgments

R. Lei and S. Feng have been funded jointly by the NASA grants #80NSSC18K1313 (subcontracted from the Universities Space Research Association #05783-01 to Penn State) and #80NSSC19k0093. S. Feng is also supported by NASA grant #80HQTR21T0070 at Pacific Northwest National Laboratory (PNNL). PNNL is operated for DOE by Battelle Memorial Institute under contract DE-AC06-76RLO 1830. T. Lauvaux has been supported by the French research program Make Our Planet Great Again (project CIUDAD). A. Danjou has been supported by the PhD fellowship program of Commissariat à l'Energie Atomique et aux Energies Alternatives. G. Broquet has been supported by the French National Space Agency (CNES) as part of the TOSCA program (OCO-3 City project). D. Wu and J. Lin have been funded by the NASA grants #80NSSC19K0196. C. O'Dell was funded by a subcontract with the NASA Jet Propulsion Laboratory. Computing resources supporting this work were provided by the NASA High-End Computing (HEC) Program through the NASA Advanced Supercomputing (NAS) Division at Ames Research Center.

We thank Albert Y. Chang at the California Institute of Technology for explaining the quality flags in OCO-2 L2Sel files. We also thank Annmarie Eldering and Robert Nelson at NASA Jet Propulsion Laboratory (JPL) for their assistance in explaining the quality flags in OCO-2 L2 v9r lite files. The authors acknowledge the support of Beth Mundy (PNNL) in editing this manuscript.

### Appendix A. Supplementary data

Supplementary data to this article can be found online at <https://doi.org/10.1016/j.rse.2021.112625>.



## References

- Andres, R.J., Marland, G., Fung, I., Matthews, E., 1996. A  $1^\circ \times 1^\circ$  distribution of carbon dioxide emissions from fossil fuel consumption and cement manufacture, 1950–1990. *Glob. Biogeochem. Cycles* 10, 419–429. <https://doi.org/10.1029/96GB01523>.
- Andres, R.J., Boden, T.A., Higdón, D., 2014. A new evaluation of the uncertainty associated with CDIAC estimates of fossil fuel carbon dioxide emission. *Tellus B: Chem. Phys. Meteorol.* 66, 23616. <https://doi.org/10.3402/tellusb.v66.23616>.
- Birof, F., 2008. *World energy outlook*. Paris: Int. Energy Agency 23, 329.
- Bousquet, P., Peylin, P., Ciais, P., Quéré, C.L., Friedlingstein, P., Tans, P.P., 2000. Regional changes in carbon dioxide fluxes of land and oceans since 1980. *Science* 290, 1342–1346. <https://doi.org/10.1126/science.290.5495.1342>.
- Crippa, M., Oreggioni, G., Muntean, M., Schaaf, E., Lo Vullo, E., Solazzo, E., Monforti, F., Oliver, J., Vignati, E., 2019. Fossil CO<sub>2</sub> and GHG emissions of all world countries - 2019 report. In: EUR 29849 EN, Publications Office of the European Union, Luxembourg. <https://doi.org/10.2760/687800>.
- Crippa, M., Guizzardi, D., Muntean, M., Schaaf, E., Solazzo, E., MONFORTI-FERRARIO, F., OLIVIER, J., Vignati, E., 2020. Fossil CO<sub>2</sub> Emissions of all World Countries: 2020 Report.
- Crisp, D., Bösch, H., Brown, L., Castano, R., Christi, M., Connor, B., Frankenberg, C., McDuffie, J., Miller, C., Natraj, V., others, 2010. OCO (Orbiting Carbon Observatory)-2 Level 2 Full Physics Retrieval Algorithm Theoretical Basis. Internet. [http://disc.sci.gsfc.nasa.gov/acdisc/documentation/OCO-2\\_L2\\_FP\\_ATBD\\_v1\\_rev4\\_Nov10.pdf](http://disc.sci.gsfc.nasa.gov/acdisc/documentation/OCO-2_L2_FP_ATBD_v1_rev4_Nov10.pdf).
- Crowell, S., Baker, D., Jacobson, A.R., Basu, S., Liu, J., Schuh, A.E., Chevallier, F., Deng, F., Feng, L., Chatterjee, A., 2019. Improved Regional CO<sub>2</sub> Flux Estimates from OCO-2 v9 Retrievals. *AGU Fall Meeting Abstracts* 52.
- Eldering, A., Taylor, T.E., O'Dell, C.W., Pavlicek, R., 2019. The OCO-3 mission: measurement objectives and expected performance based on 1 year of simulated data. *Atmos. Measur. Tech.* 12, 2341–2370. <https://doi.org/10.5194/amt-12-2341-2019>.
- Enting, I.G., Trudinger, C.M., Francey, R.J., 1995. A synthesis inversion of the concentration and  $\delta^{13}C$  of atmospheric CO<sub>2</sub>. *Tellus B* 47, 35–52. <https://doi.org/10.1034/j.1600-0889.47.issue1.5.x>.
- Fasoli, B., Lin, J., Bowling, D., Mitchell, L.E., Mendoza, D., 2018. Simulating Atmospheric Tracer Concentrations for Spatially Distributed Receptors: Updates to the Stochastic Time-Inverted Lagrangian Transport model's R Interface (STILT-R Version 2). <https://doi.org/10.5194/GMD-11-2813-2018>.
- Graven, H., Fischer, M.L., Lueker, T., Jeong, S., Guilderson, T.P., Keeling, R.F., Bamba, R., Brophy, K., Callahan, W., Cui, X., Frankenberg, C., Gurney, K.R., LaFranchi, B.W., Lehman, S.J., Michelsen, H., Miller, J.B., Newman, S., Paplawsky, W., Parazoo, N.C., Sloop, C., Walker, S.J., 2018. Assessing fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions in California using atmospheric observations and models. *Environ. Res. Lett.* 13, 065007. <https://doi.org/10.1088/1748-9326/aabd43>.
- Gregg, J.S., Andres, R.J., Marland, G., 2008. China: emissions pattern of the world leader in CO<sub>2</sub> emissions from fossil fuel consumption and cement production. *Geophys. Res. Lett.* 35. <https://doi.org/10.1029/2007GL032887>.
- Grell, A., Peckham, E., Schmitz, R., McKeen, A., Frost, G., Skamarock, W., Eder, B., 2005. Fully-coupled online chemistry within the WRF model. *Atmospheric Environment* 6957–6975. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.04.027>.
- Gurney, K.R., Razlivanov, I., Song, Y., Zhou, Y., Benes, B., Abdul-Massih, M., 2012. Quantification of fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions on the building/street scale for a large US city. *Environ. Sci. Technol.* 46, 12194–12202.
- Hakkaraian, J., Ialongo, I., Maksyutov, S., Crisp, D., 2018. Global XCO<sub>2</sub> anomalies as seen by orbiting carbon Observatory-2. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* 1–18. <https://doi.org/10.5194/acp-2018-649>.
- Hersbach, H., Bell, B., Berrisford, P., Hirahara, S., Horányi, A., Muñoz-Sabater, J., Nicolas, J., Peubey, C., Radu, R., Schepers, D., Simmons, A., Soci, C., Abdalla, S., Abellan, X., Balsamo, G., Bechtold, P., Biavati, G., Bidlot, J., Bonavita, M., Chiara, G. D., Dahlgren, P., Dee, D., Diamantakis, M., Dragani, R., Flemming, J., Forbes, R., Fuentes, M., Geer, A., Haimberger, L., Healy, S., Hogan, R.J., Hólm, E., Janisková, M., Keeley, S., Laloyaux, P., Lopez, P., Lupu, C., Radnoti, G., de Rosnay, P., Rozum, I., Vamborg, F., Villaume, S., Thépaut, J.-N., 2020. The ERA5 global reanalysis. *Q. J. R. Meteorol. Soc.* 146, 1999–2049. <https://doi.org/10.1002/qj.3803>.
- Hu, X.-M., Crowell, S., Wang, Q., Zhang, Y., Davis, K.J., Xue, M., Xiao, X., Moore, B., Wu, X., Choi, Y., DiGangi, J.P., 2020. Dynamical downscaling of CO<sub>2</sub> in 2016 over the contiguous United States using WRF-VRM, a weather-biosphere-online-coupled model. *J. Adv. Model. Earth Syst.* 12, e2019MS001875. <https://doi.org/10.1029/2019MS001875>.
- Huntzinger, D.N., Schwalm, C., Michalak, A.M., Schaefer, K., King, A.W., Wei, Y., Jacobson, A., Liu, S., Cook, R.B., Post, W.M., Berthier, G., Hayes, D., Huang, M., Ito, A., Lei, H., Lu, C., Mao, J., Peng, C.H., Peng, S., Poulter, B., Ricciuto, D., Shi, X., Tian, H., Wang, W., Zeng, N., Zhao, F., Zhu, Q., 2013. The north American carbon program multi-scale synthesis and terrestrial model intercomparison project – part 1: overview and experimental design. *Geosci. Model Dev.* 6, 2121–2133. <https://doi.org/10.5194/gmd-6-2121-2013>.
- InpaperMagazine, 2018. Lahore's Economy: Rs1 Trillion and Growing Dr Nadia Tahir [WWW Document]. DAWN.COM. URL. <https://www.dawn.com/news/1382881> (accessed 10.1.20).
- Kiel, Matthäus, Annmarie, Eldering, Roten, Dustin D, Feng, John C., Lin, Sha C., Lei, Ruixue C., Lauvaux, Thomas C., et al., 2021. Urban-focused satellite CO<sub>2</sub> observations from the Orbiting Carbon Observatory-3: A first look at the Los Angeles megacity. *Remote Sensing of Environment* 258, 112314. <https://doi.org/10.1016/j.rse.2021.112314>.
- Kort, E.A., Frankenberg, C., Miller, C.E., Oda, T., 2012. Space-based observations of megacity carbon dioxide. *Geophys. Res. Lett.* 39. <https://doi.org/10.1029/2012GL052738>.
- Kuhlmann, G., Broquet, G., Marshall, J., Clément, V., Löscher, A., Meijer, Y., Brunner, D., 2019. Detectability of CO<sub>2</sub> emission plumes of cities and power plants with the Copernicus anthropogenic CO<sub>2</sub> monitoring (CO2M) mission. *Atmospheric Measurement Techniques* 12, 6695–6719. <https://doi.org/10.5194/amt-12-6695-2019>.
- Kuhlmann, G., Brunner, D., Broquet, G., Meijer, Y., 2020. Quantifying CO<sub>2</sub> emissions of a city with the Copernicus anthropogenic CO<sub>2</sub> monitoring satellite mission. *Atmos. Measur. Tech. Discuss.* 1–33. <https://doi.org/10.5194/amt-2020-162>.
- Labzovskii, L.D., Jeong, S.-J., Parazoo, N.C., 2019. Working towards confident spaceborne monitoring of carbon emissions from cities using orbiting carbon Observatory-2. *Remote Sens. Environ.* 233, 111359. <https://doi.org/10.1016/j.rse.2019.111359>.
- Lauvaux, T., Schuh, A.E., Uliasz, M., Richardson, S., Miles, N., Andrews, A.E., Sweeney, C., Diaz, L.L., Martins, D., Shepson, P.B., Davis, K.J., 2012. Constraining the CO<sub>2</sub> budget of the corn belt: exploring uncertainties from the assumptions in a mesoscale inverse system. *Atmos. Chem. Phys.* 12, 337–354. <https://doi.org/10.5194/acp-12-337-2012>.
- Lauvaux, T., Miles, N.L., Deng, A., Richardson, S.J., Cambaliza, M.O., Davis, K.J., Gaudet, B., Gurney, K.R., Huang, J., O'Keefe, D., Song, Y., Karion, A., Oda, T., Patarasuk, R., Razlivanov, I., Sarmiento, D., Shepson, P., Sweeney, C., Turnbull, J., Wu, K., 2016. High-resolution atmospheric inversion of urban CO<sub>2</sub> emissions during the dormant season of the Indianapolis flux experiment (INFLUX). *J. Geophys. Res.: Atmos.* 121, 5213–5236. <https://doi.org/10.1002/2015JD024473>.
- Lei, R., Talbot, R., Wang, Y., Wang, S.-C., Estes, M., 2018. Influence of cold fronts on variability of daily surface O<sub>3</sub> over the Houston-Galveston-Brazoria area in Texas USA during 2003–2016. *Atmosphere* 9, 159. <https://doi.org/10.3390/atmos9050159>.
- Lei, R., Talbot, R., Wang, Y., Wang, S.-C., Estes, M., 2019. Surface MDA8 ozone variability during cold front events over the contiguous United States during 2003–2017. *Atmos. Environ.* 213, 359–366. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.06.003>.
- Lei, R., Feng, S., Lauvaux, T., 2020. Country-scale trends in air pollution and fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions during 2001–2018: confronting the roles of national policies and economic growth. *Environ. Res. Lett.* doi. <https://doi.org/10.1088/1748-9326/abc9e1>.
- Li, M., Zhang, Q., Kurokawa, J., Woo, J.-H., He, K., Lu, Z., Ohara, T., Song, Y., Streets, D. G., Carmichael, G.R., 2017. MIX: a mosaic Asian anthropogenic emission inventory under the international collaboration framework of the MICS-Asia and HTAP. *Atmos. Chem. Phys. (Online)* 17.
- Lin, J.C., Gerbig, C., Wofsy, S.C., Andrews, A.E., Daube, B.C., Davis, K.J., Grainger, C.A., 2003. A near-field tool for simulating the upstream influence of atmospheric observations: The Stochastic Time-Inverted Lagrangian Transport (STILT) model. *J. Geophys. Res.: Atmos.* 108. <https://doi.org/10.1029/2002JD003161>.
- Liu, Y., Wang, J., Yao, L., Chen, X., Cai, Z., Yang, D., Yin, Z., Gu, S., Tian, L., Lu, N., Lyu, D., 2018. The TanSat mission: preliminary global observations. *Sci. Bull.* 63, 1200–1207. <https://doi.org/10.1016/j.scib.2018.08.004>.
- Liu, Z., Guan, D., Wei, W., Davis, S., Ciais, P., Bai, J., Peng, S., Zhang, Q., Klaus, H., Marland, G., Andres, R., Crawford-Brown, D., Lin, J., Zhao, H., Hong, C., Boden, T., Feng, K., Peters, G., Xi, F., He, H., 2015. Reduced carbon emission estimates from fossil fuel combustion and cement production in China. *Nature* 524, 335–338. <https://doi.org/10.1038/nature14677>.
- Macknick, J., 2009. Energy and Carbon Dioxide Emission Data Uncertainties [WWW Document]. URL. <http://pure.iiasa.ac.at/id/eprint/9119/> (accessed 11.28.20).
- Marland, G., 2008. Uncertainties in accounting for CO<sub>2</sub> from fossil fuels. *J. Ind. Ecol.* 12, 136–139. <https://doi.org/10.1111/j.1530-9290.2008.00014.x>.
- Mitchell, L.E., Lin, J.C., Bowling, D.R., Pataki, D.E., Strong, C., Schauer, A.J., Bares, R., Bush, S.E., Stephens, B.B., Mendoza, D., Mallia, D., Holland, L., Gurney, K.R., Ehleringer, J.R., 2018. Long-term urban carbon dioxide observations reveal spatial and temporal dynamics related to urban characteristics and growth. *PNAS* 115, 2912–2917. <https://doi.org/10.1073/pnas.1702393115>.
- Nassar, R., Napier-Linton, L., Gurney, K.R., Andres, R.J., Oda, T., Vogel, F.R., Deng, F., 2013. Improving the temporal and spatial distribution of CO<sub>2</sub> emissions from global fossil fuel emission data sets. *J. Geophys. Res.: Atmos.* 118, 917–933. <https://doi.org/10.1029/2012JD018196>.
- Nassar, R., Hill, T.G., McLinden, C.A., Wunsch, D., Jones, D.B.A., Crisp, D., 2017. Quantifying CO<sub>2</sub> emissions from individual power plants from space. *Geophys. Res. Lett.* 44, 10,045–10,053. <https://doi.org/10.1002/2017GL074702>.
- Nehrkorn, T., Eluszkiewicz, J., Wofsy, S.C., Lin, J.C., Gerbig, C., Longo, M., Freitas, S., 2010. Coupled weather research and forecasting-stochastic time-inverted lagrangian transport (WRF-STILT) model. *Meteorol. Atmos. Phys.* 107, 51–64. <https://doi.org/10.1007/s00703-010-0068-x>.
- Nickless, A., Rayner, P.J., Scholes, R.J., Engelbrecht, F., Erni, B., 2019. An atmospheric inversion over the city of Cape Town: sensitivity analyses. *Atmos. Chem. Phys.* 19, 7789–7816. <https://doi.org/10.5194/acp-19-7789-2019>.
- NOAA, n.d. The NOAA Annual Greenhouse Gas Index (AGGI) [WWW Document]. URL. <https://www.esrl.noaa.gov/gmd/aggi/> (accessed 11.29.20).
- Oda, T., Maksyutov, S., 2011. A very high-resolution (1 km $\times$ 1 km) global fossil fuel CO<sub>2</sub> emission inventory derived using a point source database and satellite observations of nighttime lights. *Atmos. Chem. Phys.* 11, 543–556. <https://doi.org/10.5194/acp-11-543-2011>.
- Oda, T., Maksyutov, S., Andres, R.J., 2018. The open-source data inventory for anthropogenic carbon dioxide (CO<sub>2</sub>), version 2016 (ODIAC2016): a global, monthly fossil-fuel CO<sub>2</sub> gridded emission data product for tracer transport simulations and

- surface flux inversions. *Earth Syst Sci Data* 10, 87–107. <https://doi.org/10.5194/essd-10-87-2018>.
- O'Dell, C., Eldering, A., Wennberg, P., Crisp, D., Gunson, M., Fisher, B., Frankenberg, C., Kiel, M., Lindqvist, H., Mandrake, L., Merrelli, A., Natraj, V., Nelson, R., Osterman, G., Payne, V., Taylor, T., Wunch, D., Drouin, B., Oyafuso, F., Chang, A., McDuffie, J., Smyth, M., Baker, D., Basu, S., Chevallier, F., Crowell, S., Feng, L., Palmer, P., Dubey, M., Garcia, O., Griffith, D., Hase, F., Iraci, L., Kivi, R., Morino, I., Notholt, J., Ohyama, H., Petri, C., Roehl, C., Sha, M.K., Strong, K., Sussmann, R., Te, Y., Uchino, O., Velasco, V., 2018. Improved retrievals of carbon dioxide from orbiting carbon observatory-2 with the version 8 ACOS algorithm. *Faculty Sci. Med. Health - Papers: Part B* 6539–6576. <https://doi.org/10.5194/amt-11-6539-2018>.
- Owens, R., Hewson, T., 2018. ECMWF Forecast User Guide [WWW Document]. <https://doi.org/10.21957/m1cs7h>.
- Pakistan Bureau of Statistics, 2017a. District Wise Population by Sex and Rural/Urban – Census 2017. Archived from the original (PDF) on 29 August 2017.
- Pakistan Bureau of Statistics, 2017b. Population of Major Cities Census – 2017 Archived from the original (PDF) on 29 August 2017.
- Pillai, D., Buchwitz, M., Gerbig, C., Koch, T., Reuter, M., Bovensmann, H., Marshall, J., Burrows, J.P., 2016. Tracking city CO<sub>2</sub> emissions from space using a high-resolution inverse modeling approach: a case study for Berlin, Germany. *Atmos. Chem. Phys.* 16, 9591–9610. <https://doi.org/10.5194/acp-16-9591-2016>.
- PricewaterhouseCoopers, 2009. Global city GDP rankings 2008–2025.
- Rolph, G., Stein, A., Stunder, B., 2017. Real-time environmental applications and display system: READY. *Environ. Model Softw.* 95, 210–228. <https://doi.org/10.1016/j.envsoft.2017.06.025>.
- Schuh, A.E., Otte, M., Lauvaux, T., Oda, T., 2021. Far-field biogenic and anthropogenic emissions as a dominant source of variability in local urban carbon budgets: a global high-resolution model study with implications for satellite remote sensing. *Remote Sens. Environ.* 262, 112473. <https://doi.org/10.1016/j.rse.2021.112473>.
- Skamarock, C., Klemp, B., Dudhia, J., Gill, O., Barker, D., Duda, G., Huang, X., Wang, W., Powers, G., 2008. A Description of the Advanced Research WRF Version 3. <https://doi.org/10.5065/D68S4MVH>.
- Turnbull, J.C., Karion, A., Davis, K.J., Lauvaux, T., Miles, N.L., Richardson, S.J., Sweeney, C., McKain, K., Lehman, S.J., Gurney, K.R., Patarasuk, R., Liang, J., Shepson, P.B., Heimbürger, A., Harvey, R., Whetstone, J., 2019. Synthesis of urban CO<sub>2</sub> emission estimates from multiple methods from the Indianapolis flux project (INFLUX). *Environ. Sci. Technol.* 53, 287–295. <https://doi.org/10.1021/acs.est.8b05552>.
- UNFCCC, 2015. Paris Agreement.
- Varon, D.J., Jacob, D.J., McKeever, J., Jervis, D., Durak, B.O.A., Xia, Y., Huang, Y., 2018. Quantifying methane point sources from fine-scale satellite observations of atmospheric methane plumes. *Atmos. Meas. Tech.* 11, 5673–5686. <https://doi.org/10.5194/amt-11-5673-2018>.
- Wang, J.S., Oda, T., Kawa, S.R., Strode, S.A., Baker, D.F., Ott, L.E., Pawson, S., 2020b. The impacts of fossil fuel emission uncertainties and accounting for 3-D chemical CO<sub>2</sub> production on inverse natural carbon flux estimates from satellite and in situ data. *Environ. Res. Lett.* 15, 085002. <https://doi.org/10.1088/1748-9326/ab9795>.
- Wang, R., Tao, S., Ciais, P., Shen, H.Z., Huang, Y., Chen, H., Shen, G.F., Wang, B., Li, W., Zhang, Y.Y., Lu, Y., Zhu, D., Chen, Y.C., Liu, X.P., Wang, W.T., Wang, X.L., Liu, W.X., Li, B.G., Piao, S.L., 2013. High-resolution mapping of combustion processes and implications for CO<sub>2</sub> emissions. *Atmos. Chem. Phys.* 13, 5189–5203. <https://doi.org/10.5194/acp-13-5189-2013>.
- Wang, Y., Broquet, G., Bréon, F.-M., Lespinas, F., Buchwitz, M., Reuter, M., Meijer, Y., Loeschner, A., Janssens-Maenhout, G., Zheng, B., Ciais, P., 2020a. PMIF v1.0: assessing the potential of satellite observations to constrain CO<sub>2</sub> emissions from large cities and point sources over the globe using synthetic data. *Geosci. Model Dev.* 13, 5813–5831. <https://doi.org/10.5194/gmd-13-5813-2020>.
- World Bank, 2014. World Development Indicators.
- Wu, D., Lin, J., Fasoli, B., Oda, T., Ye, X., Lauvaux, T., Yang, E., Kort, E., 2018. A Lagrangian approach towards extracting signals of urban CO<sub>2</sub> emissions from satellite observations of atmospheric column CO<sub>2</sub> (XCO<sub>2</sub>): X-stochastic time-inverted Lagrangian transport model (“X-STILT v1”). *Geosci. Model Dev.* 11, 4843–4871. <https://doi.org/10.5194/gmd-11-4843-2018>.
- Ye, X., Lauvaux, T., Kort, E.A., Oda, T., Feng, S., Lin, J.C., Yang, E.G., Wu, D., 2020. Constraining fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions from urban area using OCO-2 observations of total column CO<sub>2</sub>. *J. Geophys. Res.: Atmos.* 125, e2019JD030528. <https://doi.org/10.1029/2019JD030528>.
- Zhang, X., Gurney, K.R., Rayner, P., Baker, D., Liu, Y., 2016. Sensitivity of simulated CO<sub>2</sub> concentration to sub-annual variations in fossil fuel CO<sub>2</sub> emissions. *Atmos. Chem. Phys.* 16, 1907–1918. <https://doi.org/10.5194/acp-16-1907-2016>.
- Zheng, B., Chevallier, F., Ciais, P., Broquet, G., Wang, Y., Lian, J., Zhao, Y., 2020. Observing carbon dioxide emissions over China's cities and industrial areas with the orbiting carbon Observatory-2. *Atmos. Chem. Phys.* 20, 8501–8510. <https://doi.org/10.5194/acp-20-8501-2020>.



## Remerciements

Un grand merci à mes 3 encadrants : Grégoire Broquet, Thomas Lauvaux et François-Marie Bréon. J'ai beaucoup appris grâce à vous au cours de ces 3 années : merci Grégoire pour ta méticulosité qui m'a poussé à être toujours plus précis et à aller au fond des choses ; merci Thomas pour tes conseils, ton enjouement et ton don pour la présentation, j'espère m'être amélioré sur ce point sous ton influence ; merci François-Marie pour le recul et les questionnements que tu as apportés sur mon travail.

Merci à toutes celles et ceux que j'ai côtoyés pendant ces 3 ans au sein de ce laboratoire pour le cadre de travail. Merci dans un ordre aléatoire à Elise, Robin, Aurélie, Audrey, Grégoire, Antoine, Frédéric, Juliette, Marielle, Isabelle, Joël pour les bons moments partagés et les repas du midi.

Je tenais aussi à remercier ma famille. Les mots sont faibles pour exprimer ma gratitude et mon amour. Merci à mes parents qui ont grandement contribué à faire la personne que je suis aujourd'hui : votre soutien et vos conseils ont toujours été précieux. Merci à mes frères (keurkeurlove) : Guillaume, best grand frère ever, toujours là pour moi, dernièrement pour écouter ton petit frère se plaindre et lui apporter du réconfort ; Eugène, best petit frère ever, mon gars sûr pour retourner en enfance et rire à des blagues débiles (même si je suis parfois le seul à rire..). Merci à mes grands-parents : maternels, dont le mode de vie simple, la détermination et la force intérieure dont leurs vies témoignent, la gentillesse sont des exemples pour moi ; ma grand-mère paternelle qui a toujours trouvé des ressources face aux difficultés de la vie. C'est à vous tous que je dois la vie que j'ai aujourd'hui, merci.

Enfin merci à mes amis. Les camarades fanfarons, qui occupent une grande place dans ma vie : aux Mango Coco, aux petits Cus ; les répètes, les concerts, les week-ends, je veux continuer à faire ça **très** longtemps. Un merci spécial aux K-Brass, avec qui j'ai grandi et partagé les moments les plus formateurs de ma vie. Merci à Clovis, à Bertille, à Simon, à William, à Perceval, à Pablo, à Etienne.