



**HAL**  
open science

# La composition chimique de la haute troposphère : étude de l'impact des feux de biomasse et des processus de transports verticaux avec le modèle MOCAGE et les mesures IAGOS

Martin Cussac

## ► To cite this version:

Martin Cussac. La composition chimique de la haute troposphère : étude de l'impact des feux de biomasse et des processus de transports verticaux avec le modèle MOCAGE et les mesures IAGOS. Sciences de la Terre. Institut National Polytechnique de Toulouse - INPT, 2020. Français. NNT : 2020INPT0128 . tel-04172436

**HAL Id: tel-04172436**

**<https://theses.hal.science/tel-04172436>**

Submitted on 27 Jul 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.



Université  
de Toulouse

# THÈSE

En vue de l'obtention du

## DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

**Délivré par :**

Institut National Polytechnique de Toulouse (Toulouse INP)

**Discipline ou spécialité :**

Océan, atmosphère, climat

---

**Présentée et soutenue par :**

M. MARTIN CUSSAC

le jeudi 26 novembre 2020

**Titre :**

La composition chimique de la haute troposphère : étude de l'impact des feux de biomasse et des processus de transports verticaux avec le modèle MOCAGE et les mesures IAGOS

---

**Ecole doctorale :**

Sciences de l'Univers de l'Environnement et de l'Espace (SDU2E)

**Unité de recherche :**

Groupe d'étude de l'Atmosphère Météorologique (CNRM-GAME)

**Directeur(s) de Thèse :**

MME VIRGINIE MARECAL

MME VALERIE THOURET

**Rapporteurs :**

M. DIDIER HAUGLUSTAINE, LAB SCIENCES DU CLIMAT ET DE L'ENVIR.

M. JEROME BRIOUDE, Labo de l'Atmosphère et des Cyclones

**Membre(s) du jury :**

MME CELINE MARI, CNRS TOULOUSE, Président

M. EMMANUEL RIVIERE, UNIVERSITE DE REIMS, Membre

M. GERARD ANCELLET, LATMOS, Membre

MME BEATRICE JOSSE, CENTRE NATIONAL DE RECHERCHES METEO, Invité(e)

MME VALERIE THOURET, CNRS TOULOUSE, Membre

MME VIRGINIE MARECAL, METEO FRANCE TOULOUSE, Membre



# RÉSUMÉ

---

L’ozone troposphérique est un gaz à effet de serre qui maximise son effet dans la haute troposphère. Les feux de biomasse étant une source importante de précurseurs d’ozone, l’objectif de cette thèse est d’étudier l’impact de ces émissions combiné avec celui des processus de transports verticaux sur la production d’ozone dans la haute troposphère. Pour cela, on se sert du modèle de chimie-transport MOCAGE (MODèle de Chimie Atmosphérique à Grande Échelle), ainsi que des mesures in-situ effectuées à bord d’avions commerciaux issues de l’infrastructure de recherche européenne IAGOS (In service Aircraft for a Global Observating System). On évalue et améliore dans un premier temps les performances de MOCAGE par rapport aux mesures IAGOS, en montrant que les processus de transport vertical que sont la convection et la diffusion atmosphérique sont clés dans la représentation de la composition chimique autour de la tropopause. Ensuite, des produits récents à base d’observations satellites sont utilisés pour améliorer l’injection des émissions des feux de biomasse dans MOCAGE, et donc la représentation des panaches et de leur transport jusqu’à et dans la haute troposphère. Enfin, on montre à l’aide de plusieurs simulations MOCAGE l’impact important des émissions des feux de biomasse sur les concentrations de précurseurs d’ozone dans la haute troposphère, en particulier pour le monoxyde de carbone. La production d’ozone associée est évaluée à la fois à l’échelle des panaches de feux de biomasse, puis à l’échelle globale, où l’on montre qu’elle est maximale dans la haute troposphère aux tropiques.

---



# ABSTRACT

---

Tropospheric ozone is a greenhouse gas that maximizes its effect in the upper troposphere. As biomass burning is an important source of ozone precursors, the objective of this thesis is to study the impact of these emissions combined with that of vertical transport processes on ozone production in the upper troposphere. For this purpose, the MOCAGE (MOdèle de Chimie Atmosphérique à Grande Échelle) chemistry-transport model is used, as well as in-situ measurements carried out on board commercial aircraft from the European research infrastructure IAGOS (In service Aircraft for a Global Observing System). The performance of MOCAGE compared to IAGOS measurements is first evaluated and improved, showing that vertical transport such as atmospheric convection and diffusion are key processes in the representation of the chemical composition around the tropopause. Then, recent products based on satellite observations are used to improve the injection of biomass fire emissions into MOCAGE, and thus the representation of plumes and their transport in the upper troposphere. Finally, several MOCAGE simulations are used to show the important impact of biomass fire emissions on ozone precursor concentrations in the upper troposphere, in particular for carbon monoxide. The associated ozone production is evaluated both at the scale of biomass burning plumes and at the global scale, where it is shown to be maximal in the upper troposphere in the tropics.

---



# Remerciements

Cette troisième année de thèse s'achevant avec le présent manuscrit, il est aussi venu le temps des remerciements, aux personnes sans qui vous ne liriez pas ces mots, et à toutes celles qui ont rendu le l'expérience bien plus agréable et enrichissante.

Tout d'abord merci à mes trois encadrantes, pour leur bienveillance et leur patience, et surtout leur confiance tout au long de ces trois années. Elles m'ont permis, chacune à leur manière, de donner le meilleur de moi-même tout au long de la thèse. Merci à Virginie pour ton aide, toujours infallible quel que soit le contexte, j'aurais beaucoup appris à tes côtés. Ton aide pour la rédaction de l'article et du manuscrit aura été décisive. Merci à Valérie pour ses idées et ses conseils toujours pertinents, particulièrement pour ce qui était de l'exploitation des résultats. Et merci à Béatrice, pour ta constante positivité et ton soutien. Tes conseils auront toujours été d'une grande aide quelque que soit le sujet, et travailler avec toi est toujours simple et agréable. Je peux m'estimer chanceux d'avoir eu ces trois super encadrantes. Je remercie aussi Bastien et Emmanuel pour les discussions scientifiques, qui ont très certainement aidé à la construction des travaux et à leur qualité. Enfin je remercie les deux rapporteurs de cette thèse, Jérôme Brioude et Didier Hauglustaine, d'avoir accepté d'évaluer mon travail ainsi que tout les membres du jury pour les discussions scientifiques pertinentes qui en ont découlé.

Le temps ne serait pas passé aussi vite sans la bonne ambiance qui règne dans le couloir des équipes "chimie" du CNRM. Aussi j'en remercie tous les membres pour leur accueil chaleureux, et leur bonne humeur jour après jour. Un merci particulier à Jo, Sophie et Joaquim, toujours disponibles pour un petit coup de main à la chasse aux bugs.

Merci aux autres doctorants et post-doc du reste du CNRM, pour les repas et EUREST, les soirées, les parties de ping-pong... Je pense en particulier à Quentin, Benjamin et Stéphane pour les petites pauses au poste de garde ou à l'ENM, ou encore Sarah, William et Tony pour les parties de billard du midi. Plus généralement, merci aux amis, que ce soit de Toulouse ou de Savoie, avec une mention particulière pour Laurent, Johan, ou encore Stephen qui se sont lancé dans cette grande aventure qu'est le doctorat.

Je remercie aussi chaleureusement mes parents, mes frères et ma famille en général pour le soutien apporté au quotidien. Et enfin mais surtout, merci à Margaux, pour tout ce que tu m'as apporté pendant ces trois années, pour ton amour et ton soutien permanent. Avec toi les moments difficiles sont rapidement remplacés par des bons, et le courage revient facilement !

*Soutien financier* : Je remercie la région Occitanie et Météo-France pour le financement des présents travaux de thèse.



# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>13</b>
<b>1 Composition chimique et structure de la haute troposphère</b>	<b>21</b>
1.1 Structure et dynamique de la haute troposphère . . . . .	21
1.1.1 Structure verticale de l'atmosphère . . . . .	21
1.1.2 Dynamique troposphérique . . . . .	23
1.1.2.1 Circulation générale . . . . .	23
1.1.2.2 Mécanismes de transport/mélange vertical . . . . .	25
1.1.3 Dynamique stratosphérique . . . . .	27
1.1.4 De la troposphère à la stratosphère : la tropopause . . . . .	28
1.1.4.1 Description générale . . . . .	28
1.1.4.2 Définitions de la tropopause . . . . .	31
1.1.5 Échanges entre troposphère et stratosphère . . . . .	33
1.1.6 L'importance de l'UTLS . . . . .	35
1.2 L'ozone dans l'atmosphère . . . . .	36
1.2.1 La production d'ozone dans l'atmosphère . . . . .	36
1.2.1.1 Cycle de Chapman et ozone stratosphérique . . . . .	36
1.2.1.2 L'ozone troposphérique : le système chimique O <sub>3</sub> /NO <sub>x</sub> /COV . . . . .	38
1.2.1.3 Régimes chimiques dans la troposphère . . . . .	42
1.2.2 Les précurseurs de l'ozone dans la troposphère . . . . .	44
1.2.2.1 Le monoxyde de carbone et les COV . . . . .	44
1.2.2.2 Les oxydes d'azote NO <sub>x</sub> . . . . .	45
1.3 Les émissions de feux de biomasse . . . . .	48
1.3.1 Les feux de biomasse et leurs émissions . . . . .	49
1.3.2 Détection et inventaires d'émissions : état de l'art . . . . .	51
1.3.2.1 Localisation et facteurs d'émissions . . . . .	51
1.3.2.2 Dynamique d'émission : hauteur de panache . . . . .	52
<b>2 Outils et méthode</b>	<b>57</b>
2.1 La base de données IAGOS . . . . .	57
2.1.1 Objectifs et origine de l'Infrastructure de Recherche IAGOS . . . . .	57
2.1.2 Instrumentation et description de la base de données . . . . .	59
2.1.3 L'utilisation des données IAGOS dans les sciences de l'atmosphère . . . . .	62
2.1.4 Identification de sources : l'apport des données SOFT-IO . . . . .	64
2.2 Le modèle de Chimie Transport MOCAGE . . . . .	67
2.2.1 Présentation générale et géométrie du modèle . . . . .	67

2.2.2	Schéma chimique et solveur . . . . .	69
2.2.3	Schémas de transport et de dépôt . . . . .	71
2.2.3.1	Transport de grande échelle . . . . .	72
2.2.3.2	Transport par la convection . . . . .	74
2.2.3.3	Transport par la diffusion turbulente . . . . .	76
2.2.3.4	Processus de dépôt . . . . .	76
2.2.4	Gestion des émissions . . . . .	78
2.2.4.1	Les émissions de surface . . . . .	79
2.2.4.2	Le cas particulier des feux de biomasse . . . . .	79
2.2.4.3	Les émissions d'altitude . . . . .	80
2.2.5	Développements . . . . .	82
2.2.5.1	Modification des schémas de transport vertical . . . . .	83
2.2.5.2	Modification de l'injection des émissions de feux de biomasse. . . . .	85
<b>3</b>	<b>Sensibilité de la composition de l'UTLS à la représentation des processus de transports verticaux</b>	<b>87</b>
3.1	Méthode de comparaison entre MOCAGE et IAGOS . . . . .	87
3.2	Évaluation de MOCAGE dans sa version originale . . . . .	88
3.3	Évaluation des modifications des schémas de diffusion et convection . . . . .	92
3.3.1	Impact des modifications du schéma de convection . . . . .	93
3.3.2	Impact des modifications du schéma de diffusion . . . . .	95
3.3.3	Évaluation générale . . . . .	97
3.4	Conclusion . . . . .	101
<b>4</b>	<b>Injection et redistribution du monoxyde de carbone dans la haute troposphère par les feux de biomasse.</b>	<b>103</b>
4.1	Résumé en français de l'article . . . . .	104
4.2	Article . . . . .	106
4.2.1	Abstract . . . . .	106
4.2.2	Introduction . . . . .	107
4.2.3	Methodology . . . . .	112
4.2.3.1	Data description . . . . .	112
4.2.3.2	Global model . . . . .	116
4.2.4	Improvement of biomass burning injection height in MOCAGE . . . . .	122
4.2.4.1	Global evaluation of the plume representation . . . . .	122
4.2.4.2	Global impact of the plume representation . . . . .	127
4.2.5	MOCAGE evaluation against IAGOS measurements . . . . .	130
4.2.6	Global impact of biomass burning on upper tropospheric carbon monoxide . . . . .	136
4.2.6.1	Global contribution . . . . .	136
4.2.6.2	Sensitivity to regional emissions . . . . .	138
4.2.7	Summary and conclusions . . . . .	140
4.2.8	Appendix A : Statistical score used for evaluation . . . . .	142

<b>5</b>	<b>Impact des émissions de feux de biomasse sur le bilan de l’ozone dans la haute troposphère</b>	<b>145</b>
5.1	Évaluation de MOCAGE dans la haute troposphère. . . . .	146
5.1.1	Évaluation de l’ozone. . . . .	146
5.1.1.1	Profil verticaux d’ozone troposphérique. . . . .	146
5.1.1.2	Évaluation de l’ozone dans l’UTLS . . . . .	148
5.1.2	Évaluation des espèces azotées. . . . .	152
5.2	Production d’ozone dans les panaches de feux de biomasse. . . . .	157
5.2.1	Évaluation de l’ozone dans les panaches . . . . .	157
5.2.2	Méthode d’évaluation de la production d’ozone . . . . .	160
5.2.3	Résultats . . . . .	163
5.3	Impact des feux de biomasse sur l’ozone dans la haute troposphère à l’échelle globale . . . . .	168
5.3.1	Effets sur les oxydes d’azotes et espèces réservoir . . . . .	168
5.3.1.1	Impact sur les NO <sub>x</sub> . . . . .	169
5.3.1.2	Oxydes d’azotes totaux . . . . .	171
5.3.2	Production d’ozone par les feux de biomasse dans l’UT . . . . .	173
5.3.2.1	Impact global sur l’ozone . . . . .	173
5.3.2.2	Production d’ozone et régimes chimiques . . . . .	176
5.3.2.3	Impact des émissions régionales . . . . .	178
5.4	Conclusion . . . . .	180
	<b>Conclusions et perspectives</b>	<b>181</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>187</b>
<b>A</b>	<b>Supplément de l’article</b>	
	"The impact of biomass burning on upper tropospheric carbon monoxide : A study using MOCAGE global model and IAGOS airborne data."	<b>207</b>
<b>B</b>	<b>Profils verticaux saisonniers pour l’ozone</b>	<b>211</b>



# Introduction

L'étude de l'atmosphère en tant que composante de notre système Terre est principalement focalisée sur les phénomènes physiques qui y prennent place, mais est aussi indissociable de sa composition chimique. Au-delà du diazote ( $N_2$ ) et du dioxygène ( $O_2$ ) qui la constituent en quasi-totalité (plus de 99%), on retrouve une diversité de gaz traces, qui malgré leurs faibles quantités, jouent un rôle important sur le bilan radiatif terrestre, les cycles biogéochimiques ou encore ont un impact sanitaire. Parmi ces gaz traces, l'ozone ( $O_3$ ) fait l'objet d'un grand nombre de travaux de recherche. Il est surtout connu pour sa présence dans la stratosphère, où il filtre les rayons UV-C les plus nocifs. Mais l'ozone est aussi présent dans la troposphère, à hauteur de 10% de son bilan total. Il y contribue à la capacité oxydante de l'atmosphère, mais entraîne aussi des effets néfastes sur la santé humaine ou la végétation (comme par exemple lors d'épisodes de pollution estivale). Enfin, l'ozone troposphérique est un gaz à effet de serre, dont l'augmentation des concentrations depuis l'époque pré-industrielle est responsable d'un forçage radiatif additionnel de  $0.40$  ( $0.20$ – $0.60$ )  $W m^{-2}$  (IPCC, 2013). Cet effet est maximal autour de la tropopause, l'interface entre la troposphère et la stratosphère, région de l'atmosphère aussi appelée UTLS (de l'anglais, *Upper Troposphere Lower Stratosphere*). Dans cette assez fine couche de l'atmosphère, l'impact radiatif de l'augmentation de sa concentration est estimé à  $0.16 W m^{-2}$  (Xia et al., 2018). Mais d'importantes incertitudes persistent, et ce bilan radiatif est par exemple très sensible au mélange vertical qui a lieu autour de la tropopause (Riese et al., 2012).

L'ozone est une espèce atmosphérique secondaire, c'est-à-dire qu'elle n'est pas émise directement dans l'atmosphère, mais formée à partir de précurseurs. Dans la troposphère,

la formation d’ozone se fait en présence d’oxydes d’azotes  $\text{NO}_x(\text{NO}+\text{NO}_2)$ , de composés organiques volatiles (COV) ou de monoxyde de carbone CO, ainsi que de rayonnement solaire. La variabilité de l’ozone troposphérique est donc liée, aux delà des conditions météorologiques, aux émissions desdits précurseurs, mais aussi à leur répartition dans la troposphère, qui varie en fonction de l’altitude, la latitude et la saison.

Les sources des précurseurs d’ozone sont multiples, qu’elles soient d’origine anthropiques ou naturelles. Parmi elles, on retrouve les feux de biomasse, émettant à la fois COV, CO, et  $\text{NO}_x$ . Par exemple concernant le CO et les  $\text{NO}_x$ , les feux de biomasse sont responsables respectivement de l’émission de  $350\text{-}600 \text{ TgCOyr}^{-1}$  (Tg de CO par an) et de  $4\text{-}16 \text{ TgNyr}^{-1}$  (van der Werf et al., 2006), soit des quantités comparables aux émissions anthropiques de CO qui sont de  $450\text{-}600 \text{ TgCOyr}^{-1}$  (Lamarque et al., 2010) mais inférieures en termes de  $\text{NO}_x$  qui sont de  $28\text{-}32 \text{ TgNyr}^{-1}$  (Granier et al., 2011). Les feux de biomasse sont des feux de végétation, qu’ils soient liés à l’agriculture, la déforestation ou encore les feux de forêt. Ces émissions s’organisent autour de différents foyers, à des latitudes très variées. On retrouve par exemple de fortes émissions par les feux de biomasse en Afrique équatoriale, dans la forêt amazonienne ou encore aux latitudes boréales. À la différence des émissions anthropiques, elles s’étendent souvent sur de larges zones géographiques, et sont soumises à une forte variabilité interannuelle, en particulier à l’échelle régionale. Leur localisation et la quantification de leur émissions ont été rendues possible grâce aux observations satellitaires, permettant la construction d’inventaires d’émissions. Mais les incertitudes associées sont encore assez conséquentes, que ce soit à propos des quantités de composés émises, ou bien leur interaction avec la dynamique atmosphérique environnante. Les feux de biomasse sont à l’origine de panaches assez denses, qui peuvent être transportés sur de longues distances, redistribuant ainsi les émissions autour du globe. Ces panaches sont aussi chimiquement actifs, impliquant une production d’ozone interne (Real et al., 2010; Thomas et al., 2013), mais aussi dans toute la troposphère au fur et à mesure qu’ils sont dilués dans leur environnement (Jaffe and Wigder, 2012). Dans un contexte où les émissions des feux de biomasse, après avoir décliné graduellement ces 30

dernières années, sont prévues à la hausse sous les effets du changement climatique, il est nécessaire de bien quantifier l'impact présent de ces dernières pour pouvoir mieux prévoir leur impact futur.

Dans ce cadre, l'objectif général de cette thèse est donc d'étudier les émissions des feux de biomasse et leur impact sur l'ozone et ses précurseurs dans la haute troposphère, et ce faisant contribuer à l'amélioration de la compréhension de la composition chimique de cette couche de l'atmosphère, qui est particulièrement importante pour le bilan radiatif terrestre.

Notre étude concernant la haute troposphère, on s'intéresse aux voies que peuvent prendre ces émissions pour atteindre cette altitude. Le plus souvent, ces émissions sont injectées dans les basses couches de l'atmosphère et peuvent être transportées verticalement par la convection atmosphérique. Les saisons des feux de forêts étant souvent associées à une activité convective importante tout autour du globe, cette voie de transport est la voie privilégiée des émissions des feux de biomasse vers la haute troposphère. Mais ces émissions peuvent aussi être injectées directement assez haut dans la troposphère par le phénomène de pyroconvection. La forte chaleur dégagée par la combustion contribue à réchauffer les masses d'air au niveau de la zone d'émission. Cela peut entraîner des ascendances fortes, et une injection des émissions jusque dans la haute troposphère. Quel que soit le type de transport vertical, les émissions de feux de biomasse prennent la forme de panaches, qui sont ensuite transportés par la circulation de grande échelle en se diluant au fur et à mesure du temps. À ce propos, Fromm et al. (2019) montrent que le rôle de la pyroconvection a certainement été sous-estimé à l'échelle globale. Les développements récents réalisés à partir d'observations par satellites ont permis d'inclure dans les inventaires d'émissions des estimations de hauteur d'injection prenant en compte ce processus (Zhu et al., 2018; Rémy et al., 2017). Il a aussi été montré dans ces études que l'utilisation de ces nouveaux produits pour l'étude de la composition de l'atmosphère au travers de modélisation numérique permettait une meilleure représentation des panaches et de leur devenir dans la troposphère. Dans les panaches de feux de biomasse,

des augmentations des niveaux d’ozone ont été observés, et attribuées à une production locale dans ces derniers (Real et al., 2010; Parrington et al., 2013). Au travers de l’analyse d’un grand nombre de cas d’étude, il a été établi que l’efficacité de cette production varie en fonction des régions d’origine des feux ou encore de l’âge du panache (Jaffe and Wigger, 2012). Au-delà de la production dans les panaches, il est connu que les émissions de feux de biomasse jouent sur le bilan de l’ozone dans la haute troposphère (Gaudel et al., 2018), mais sa quantification s’est limitée jusqu’ici à toute la couche de la troposphère aux latitudes tropicales dans l’étude de Ziemke et al. (2009). Notre étude va plus loin en cherchant à évaluer précisément cet impact des feux de biomasse sur le bilan global de l’ozone dans la haute troposphère.

Au regard de ce contexte scientifique, notre objectif se décline de la manière suivante :

- Étudier l’impact des émissions par les feux de biomasse du principal précurseur d’ozone dans la haute troposphère, le monoxyde de carbone, en précisant les processus de transports verticaux qui contribuent à les acheminer dans cette couche de l’atmosphère. On étudiera aussi les différences entre les différentes régions émettrices du globe, en termes de quantités émises et de la saisonnalité associée.
- Quantifier la production d’ozone supplémentaire dans la haute troposphère induite par les feux de biomasse de plusieurs régions émettrices à différentes saisons, toujours à l’échelle globale.

Pour ces deux objectifs, on s’intéresse à la fois à un effet plutôt à court terme des émissions des feux qui se manifestent dans la haute troposphère sous la forme de panaches, et à un effet "moyen" qui correspond à leur impact une fois ces panaches dilués dans la haute troposphère.

Pour répondre à ces objectifs scientifiques, ces travaux de thèse se basent sur une approche couplée entre modélisation et observations. En général, l’étude de la composition de l’atmosphère et des processus associés à l’échelle globale repose en partie sur le développement et la mise en œuvre de modèle numérique, complétés par l’acquisition de mesures globales de la composition chimique de l’atmosphère qui peuvent permettre d’évaluer ces

derniers. Parmi les différents types de modèles existants, les modèles de chimie-transport (ou CTM), sont les plus adaptés à ce type d'étude, car ils permettent des simulations 3D à l'échelle globale, et une représentation détaillée des processus physico-chimiques qui ont lieu dans l'atmosphère. Ici, le CTM utilisé est MOCAGE, développé au Centre National de Recherches Météorologiques (CNRM - Météo-France/CNRS). MOCAGE permet la modélisation de la composition chimique de la troposphère et de la stratosphère. Il est utilisé à des échelles de temps courtes (prévision de la qualité de l'air), jusqu'à des échelles de temps longues, comme par exemple dans le cadre de l'exercice de modélisation CCMI (*Chemistry–Climate Model Initiative*, Morgenstern et al., 2017).

Au vu des objectifs de cette thèse, il est nécessaire d'utiliser des estimations pour les émissions des feux de biomasse aussi précises que possible. Le choix est fait d'utiliser l'inventaire d'émission GFAS (*Global Fire Assimilation System*, Kaiser et al., 2012). Cet inventaire fournit des estimations globales de flux d'émissions par les feux de biomasse pour les principaux composés émis, et ce, à une échelle journalière. De plus, récemment ont été inclus des produits concernant la hauteur d'injection moyenne et d'altitude maximale des panache des feux de biomasse (Rémy et al., 2017). Une fois implémentés dans MOCAGE, ils doivent en principe permettre de mieux prendre en compte la répartition verticale des émissions des feux de biomasse.

Pour évaluer les simulations MOCAGE, en particulier dans l'UTLS, des observations sont nécessaires. Il existe plusieurs manières d'obtenir des mesures de la composition de l'atmosphère à l'échelle globale. Pour commencer, les instruments à bord des satellites permettent des mesures régulières avec une couverture globale de certains composés comme l'O<sub>3</sub> ou le CO, mais très peu résolues sur la verticale. Une meilleure résolution verticale peut être obtenue par l'acquisition de mesures in-situ. Les ballons-sondes par exemple, lâchés plusieurs fois par semaine, permettent un bon échantillonnage vertical de l'UTLS, mais leur couverture horizontale est très limitée. Cette extension horizontale peut être obtenue en embarquant les appareils de mesures à bord d'avions. Lorsque l'on cherche à étudier certains processus particuliers de manière détaillée, des campagnes de mesures

sont mises en place. Elles permettent d’obtenir des observations de grande qualité pour un large panel d’espèces chimiques, le plus souvent in-situ grâce à des appareils de mesures aéroportées, mais sont souvent limitées dans le temps et l’espace. De manière complémentaire, l’infrastructure de recherche IAGOS (In service Aircraft for a Global Observing System, Petzold et al., 2015) équipe des avions commerciaux d’instruments qui mesurent à chaque vol le contenu en  $O_3$  et de quelques autres espèces comme le CO dans les masses d’air traversées. L’avantage de vols commerciaux équipés est un échantillonnage régulier de la troposphère aux abords des aéroports, mais surtout de l’UTLS pendant le vol, l’altitude de croisière typique allant de 10 à 12 km. La base de données IAGOS présente ainsi l’avantage d’à la fois comprendre des mesures in-situ de qualité, avec une grande quantité d’observations à une échelle quasi globale. C’est donc un choix pertinent pour évaluer un modèle tel que MOCAGE dans le cadre des objectifs de cette thèse. De plus, cette base de données s’enrichit régulièrement de données ancillaires pour aider à l’interprétation des mesures, comme par exemple les produits SOFT-IO (Sauvage et al., 2017). SOFT-IO est un outil d’identification de sources des masses d’air rencontrées par les avions IAGOS, sous la forme d’une contribution récente des émissions de CO. Il est utilisé dans cette thèse pour identifier à posteriori des panaches de feux de biomasse dans la base de données IAGOS.

En pratique, ce travail de thèse s’organise en trois étapes. En premier lieu, il s’agit d’évaluer MOCAGE dans la haute troposphère et la basse stratosphère dans sa version à 1° de résolution horizontale. Pour cela, on utilise les mesures de CO et d’ $O_3$  IAGOS. Les processus de transport étant importants pour la composition de l’UTLS, des améliorations ont été apportées à MOCAGE concernant le transport par convection et diffusion atmosphérique. Ensuite, un travail est réalisé pour prendre en compte la hauteur d’injection des émissions des feux de biomasse dans les simulations MOCAGE. Ce nouveau schéma d’injection est validé en utilisant les mesures IAGOS de monoxyde de carbone réalisées dans des panaches des feux de biomasse identifiés grâce à SOFTIO. On se sert alors des simulations MOCAGE pour réaliser une évaluation de la contribution des feux

de biomasse aux quantités de CO dans la haute troposphère. Enfin, l'étude sur les feux de biomasse est prolongée, en s'intéressant à leur impact sur l'ozone dans la haute troposphère. On s'attache d'abord à estimer l'efficacité de la production d'ozone qui a lieu dans les panaches, puis à quantifier la production d'ozone dans la haute troposphère à l'échelle globale.

Cela se traduit par l'organisation suivante du présent manuscrit. Le premier chapitre résume l'état actuel des connaissances sur la composition chimique de la haute troposphère, la production d'ozone et les émissions des feux de biomasse. Dans le deuxième chapitre sont décrits les outils qui sont utilisés par la suite, soit la base de données IA-GOS, et le modèle MOCAGE ainsi que certaines modifications qui lui ont été apportées. Le troisième chapitre est consacré à l'évaluation de MOCAGE dans l'UTLS. Le quatrième chapitre présente l'étude faite sur la hauteur d'injection des émissions des feux de biomasse et leur impact sur le CO dans la haute troposphère. Le cinquième et dernier chapitre de cette thèse est dédié à l'étude de la production d'ozone due aux feux de biomasse dans la haute troposphère.



# Chapitre 1

## Composition chimique et structure de la haute troposphère

Dans ce chapitre, nous allons commencer par rapidement décrire la structure générale et la dynamique de l'atmosphère, afin de comprendre la place de la haute troposphère dans ce système atmosphérique. Nous détaillerons ensuite différents processus physico-chimiques qui conditionnent la composition chimique de l'atmosphère, en se focalisant toujours sur la haute troposphère. Il ne s'agit pas d'en faire une liste exhaustive, mais de se concentrer sur les processus clés qui sont par la suite étudiés dans le manuscrit. Enfin, les caractéristiques des émissions de feux de biomasse sont présentées, ainsi que les méthodes utilisées pour les estimer, en lien avec l'objectif principal de cette thèse.

### 1.1 Structure et dynamique de la haute troposphère

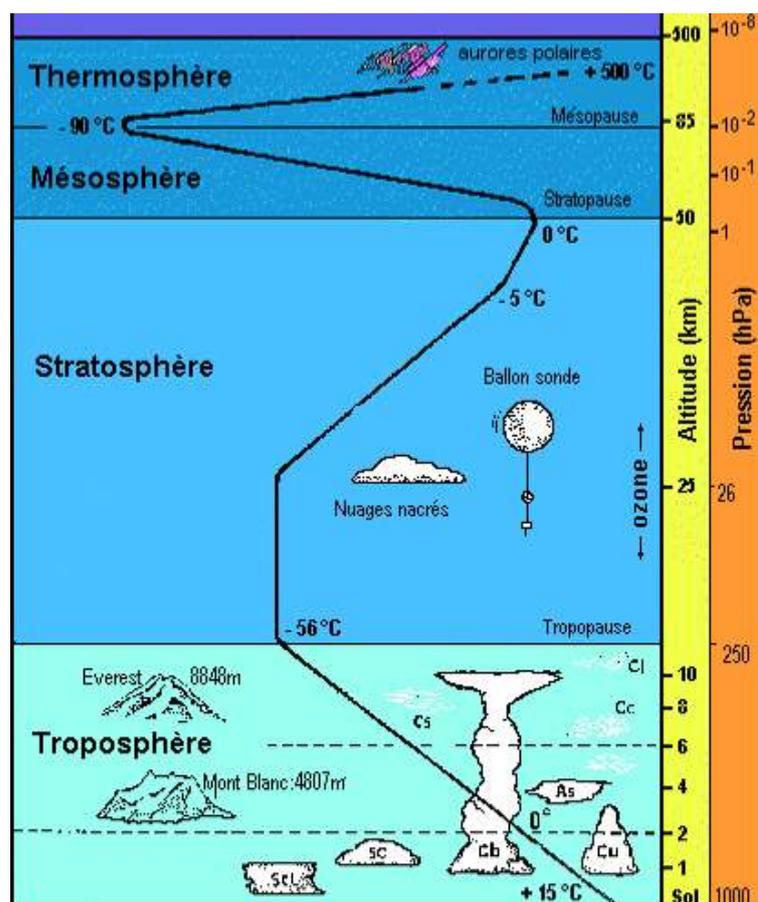
#### 1.1.1 Structure verticale de l'atmosphère

L'atmosphère terrestre est l'enveloppe gazeuse qui, retenue par la force de gravité, joue un rôle primordial dans le bilan radiatif de la Terre. Son extension verticale est d'environ une centaine de kilomètres, soit une couche relativement fine en rapport au rayon de 6400 km de la Terre. Cette atmosphère est stratifiée verticalement, avec plusieurs couches que

l'on distingue principalement par leur gradient thermique interne. On peut voir sur la figure 1.1 ces différentes couches, ainsi que l'évolution verticale de la température. On retrouve du haut vers la surface :

- **La thermosphère** : appelée ainsi car la température y augmente très fortement jusqu'à des températures pouvant dépasser les 100 °C, bien que la définition de la température y soit purement théorique au vu de la très faible pression qui y règne.
- **La mésosphère** : couche intermédiaire entre 50 et 80 km, la pression y est toujours très faible, aussi le régime y est encore radiatif.
- **La stratosphère** : Dans cette couche de l'atmosphère, la pression devient assez forte pour que le régime passe de radiatif à collisionnel. Cette couche de l'atmosphère est principalement connue car elle inclut la couche d'ozone, dont les mécanismes de formation sont discutés plus loin dans le manuscrit. De par son gradient de température positif, cette couche de l'atmosphère est relativement stable et stratifiée, ce qui est à l'origine de son nom.
- **La troposphère** : la couche atmosphérique qui s'étend de la surface à la tropopause, dont l'altitude varie avec la latitude (de 7-9 km aux pôles jusqu'à 15-18 km aux tropiques). C'est dans cette couche qu'ont lieu les principaux phénomènes météorologiques, ainsi que divers processus de mélange des masses d'air tels que la convection et la turbulence.

Ces couches sont séparées par des zones d'inversion du gradient thermique, associées à un accroissement local de la stabilité, nommées mésopause, stratopause et tropopause. Ici on s'intéresse à la partie basse de l'atmosphère, qui comprend la majorité de la masse de cette dernière (99 % de la masse est en dessous de 30 km d'altitude), soit la troposphère et la partie basse de la stratosphère. Notre zone d'intérêt est plus particulièrement la partie haute de la troposphère, juste en dessous de la tropopause, qui est décrite plus en détail tout au long de ce chapitre.



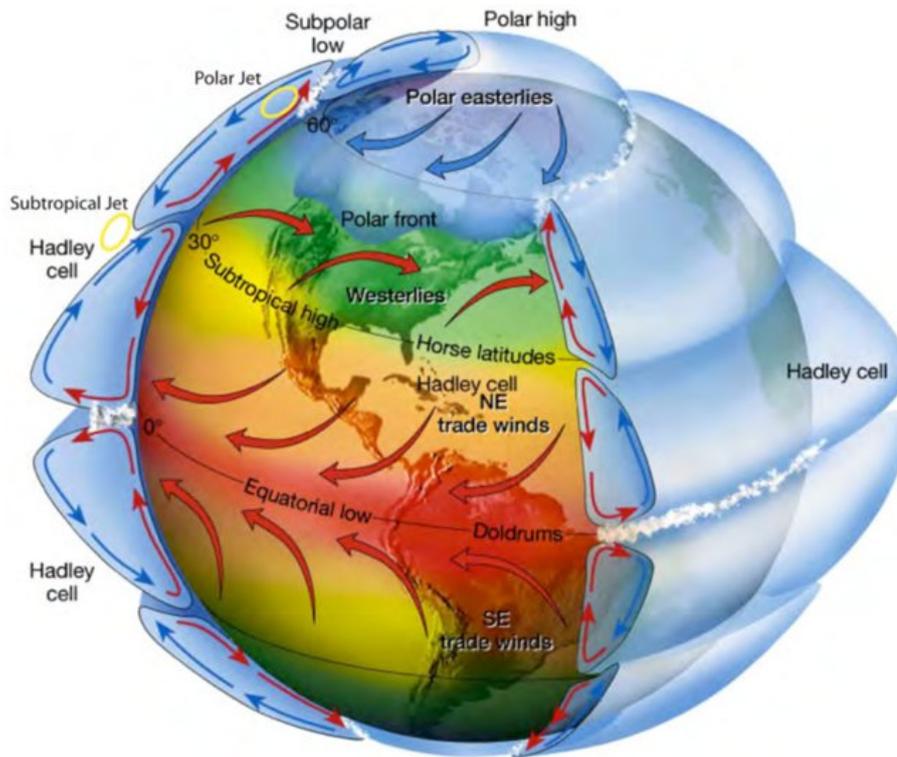
**Figure 1.1** – Représentation schématique de la structure verticale de l’atmosphère. L’évolution verticale moyenne de la température y est aussi représentée. © Météo France

### 1.1.2 Dynamique troposphérique

#### 1.1.2.1 Circulation générale

On décrit dans cette partie la circulation générale dans la troposphère, décrivant les mouvements de grande échelle qui sont responsables du transport de longue distance des masses d’air. Cette circulation peut se comprendre comme étant la résultante du chauffage solaire, qui induit un déséquilibre radiatif, à la fois méridien, zonal et vertical dans l’atmosphère. Les mouvements moyens de grande échelle peuvent alors être vus comme une réponse à ce déséquilibre radiatif, qui, associés à la force de Coriolis induite par la rotation de la Terre, s’organisent en différentes cellules de circulation de l’air (voir figure 1.2).

En premier lieu, les cellules de Hadley, situées de part et d’autre de l’équateur, sont les



**Figure 1.2** – Représentation schématique des cellules de Hadley, Ferrel et polaires. D'après Lutgens et al. (2001)

plus importantes en terme de circulation. A cette latitude, le flux solaire est maximal et entraîne donc le chauffage des basses couches de l'atmosphère. Ces parcelles d'air chaud et humide deviennent alors instables, et initient la circulation en s'élevant à travers la troposphère. Au cours de leur ascension, elles se refroidissent et la vapeur d'eau condense et précipite en libérant de la chaleur latente, ce qui entretient la circulation de l'air. Arrivé en dessous de la tropopause (vers 15 km), l'air circule vers les pôles, et continue de se refroidir par condensation de la vapeur d'eau. A partir de 30° de latitude, l'air devenu plus froid que son environnement entame une descente adiabatique. Une partie de cet air est redirigée vers l'équateur en étant déviée vers l'ouest par la force de Coriolis, donnant naissance aux Alizés, caractéristiques de ces latitudes. La bande de latitude où les masses d'air convergent est appelée la Zone de Convergence Intertropicale (ZCIT, ou ITCZ en anglais pour *Inter-Tropical Convergence Zone*). Elle se déplace autour de l'équateur, entre 10°S et 10°N selon l'hémisphère d'été. Cette zone est associée à une forte activité convective.

La cellule de Ferrel est visible aux moyennes latitudes. D'une moindre intensité, elle contribue à acheminer de la chaleur vers les pôles au travers de perturbations qui se déplacent d'ouest en est (dans l'hémisphère nord, et inversement dans l'hémisphère sud). En altitude, cette circulation ramène de l'air vers l'équateur, où elle rejoint le courant descendant de la cellule de Hadley aux tropiques.

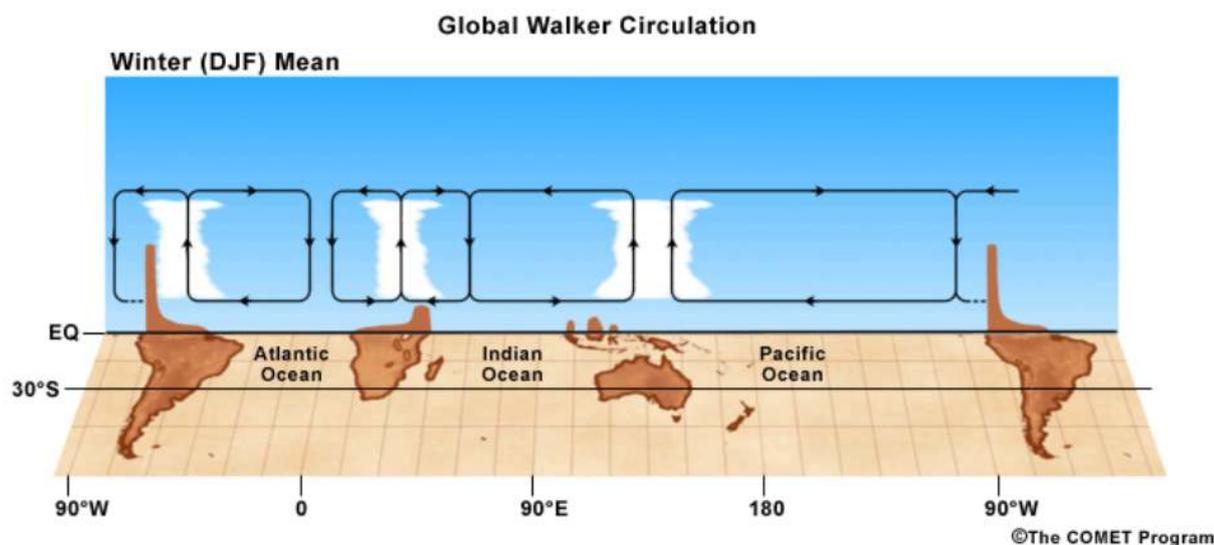
Enfin, la plus petite des trois, la cellule polaire, couvre les plus hautes latitudes. La circulation y est ascendante au niveau du front polaire (vers 60°N), pour devenir descendante aux niveaux des pôles et revenir vers des latitudes plus basses. La figure 1.2 résume de manière schématique les caractéristiques de ces différentes cellules.

De plus, il existe des courants d'altitude d'ouest en est, appelés courant-jet (de jet stream en anglais) que l'on retrouve sous la tropopause entre les cellules de Hadley et Ferrel (courant-jet subtropical) et entre les cellules de Ferrel et Polaire (courant-jet polaire). Les vents peuvent y atteindre des vitesses de plusieurs centaines de  $\text{km h}^{-1}$ .

Un autre type de circulation est associé à ces cellules de Hadley, la circulation de Walker, zonale cette fois-ci. Cette circulation est une réponse au chauffage différentiel qui a lieu entre les zones continentales et océaniques aux tropiques. Il en résulte que les mouvements ascendants se font principalement au dessus des différents continents (Amérique du Sud, Afrique et Océanie), et les subsidences au-dessus des océans Pacifique, Atlantique et Indien, comme on peut le voir sur la figure 1.3. Cette circulation, et notamment la localisation des subsidences, est très liée à l'oscillation ENSO (pour *El Nino Southern Oscillation*). Cette oscillation, qui prend son origine dans le courant océanique du Pacifique, impacte directement la circulation de Walker, et plus globalement la météorologie à l'échelle planétaire.

### 1.1.2.2 Mécanismes de transport/mélange vertical

Nous avons vu dans la partie précédente les mécanismes de circulation générale de l'air dans la troposphère. Ces mouvements sont efficaces pour redistribuer les masses d'air horizontalement, mais assez peu verticalement, avec un temps de transport de la surface



**Figure 1.3** – Représentation schématique méridienne de la circulation de Walker. D’après (Jacobs, 1999).

à la tropopause de l’ordre d’une dizaine de jours. D’autres mécanismes liés aux ondes de Rossby sont à l’origine de transport vertical dans la troposphère, particulièrement aux moyennes et hautes latitudes, tels que les *warm conveyor belt*, et intrusion sèches associées. Plus de détails sont donnés dans la partie 1.1.5 portant sur les échanges de masses d’air entre troposphère et stratosphère. Les phénomènes de convection et de diffusion turbulente en revanche, sont plus locaux mais aussi plus efficaces pour le transport vertical.

La convection atmosphérique est en fait la réponse à une instabilité de flottabilité. Sous l’influence du chauffage radiatif, une masse d’air proche de la surface devient plus chaude que son environnement. Si cette instabilité est suffisamment grande, la convection peut alors s’enclencher et la masse d’air s’élève. Au cours de son ascension, la parcelle d’air se refroidit et sa pression de vapeur saturante diminue. A un certain point (appelé niveau de condensation), la vapeur d’eau commence donc à condenser, refroidissant encore la parcelle d’air en relâchant sa chaleur latente et accentuant l’instabilité de flottabilité. C’est généralement à partir de ce niveau que le nuage se forme. La parcelle d’air continue son ascension jusqu’à atteindre un niveau où sa flottabilité s’équilibre avec celle de son environnement, qui marque la fin de son extension verticale. Les événements convectifs les plus importants sont appelés convection profonde. Ils sont généralement associés à de

fortes précipitations, ainsi que des ascendances rapides (d'un ordre de grandeur d'un à une dizaine de  $\text{m s}^{-1}$ ). Cela permet le transport vertical de masses d'air sur des échelles de temps beaucoup plus courtes que par la circulation de grande échelle, ce qui peut résulter dans l'injection rapide de polluants émis à la surface jusque dans la haute troposphère. On observe régulièrement des concentrations en CO similaires à celles que l'on trouve proches de la surface à des altitudes d'une dizaine de km à proximité du haut des nuages convectifs (Jiang et al., 2007). La convection est caractéristique de l'ITCZ évoquée précédemment, car le chauffage est maximal autour de l'équateur. On la retrouve aussi aux moyennes latitudes dans une moindre mesure, principalement lors de la saison d'été. L'ordre de grandeur de l'extension horizontale de ces événements est de quelques dizaines de km, ce qui rend leur influence assez locale.

A encore plus fine échelle, la turbulence atmosphérique entre en jeu dans le transport vertical des masses d'air. Dans un écoulement turbulent se forment de manière imprévisible des tourbillons dont la taille caractéristique peut varier du cm au km, et qui contribuent à mélanger de manière très efficace l'écoulement. La turbulence atmosphérique est caractéristique de la couche limite atmosphérique, car typique des interactions entre l'atmosphère et la surface, et des gradients verticaux de vent résultants. Elle permet de mélanger cette couche limite sur une échelle de temps typique de la journée. On retrouve aussi des phénomènes turbulents plus haut dans la troposphère libre et la haute troposphère, à l'origine des turbulences parfois rencontrées par les avions de ligne dans la haute troposphère (aussi référencées comme *Clear Air Turbulence* car pouvant se produire en l'absence d'indications visuelles). Cette turbulence trouve son origine dans d'autres phénomènes, tels que l'interaction avec les courants-jet ou encore les foliations de tropopause (Shapiro, 1980; Sharman et al., 2012).

### 1.1.3 Dynamique stratosphérique

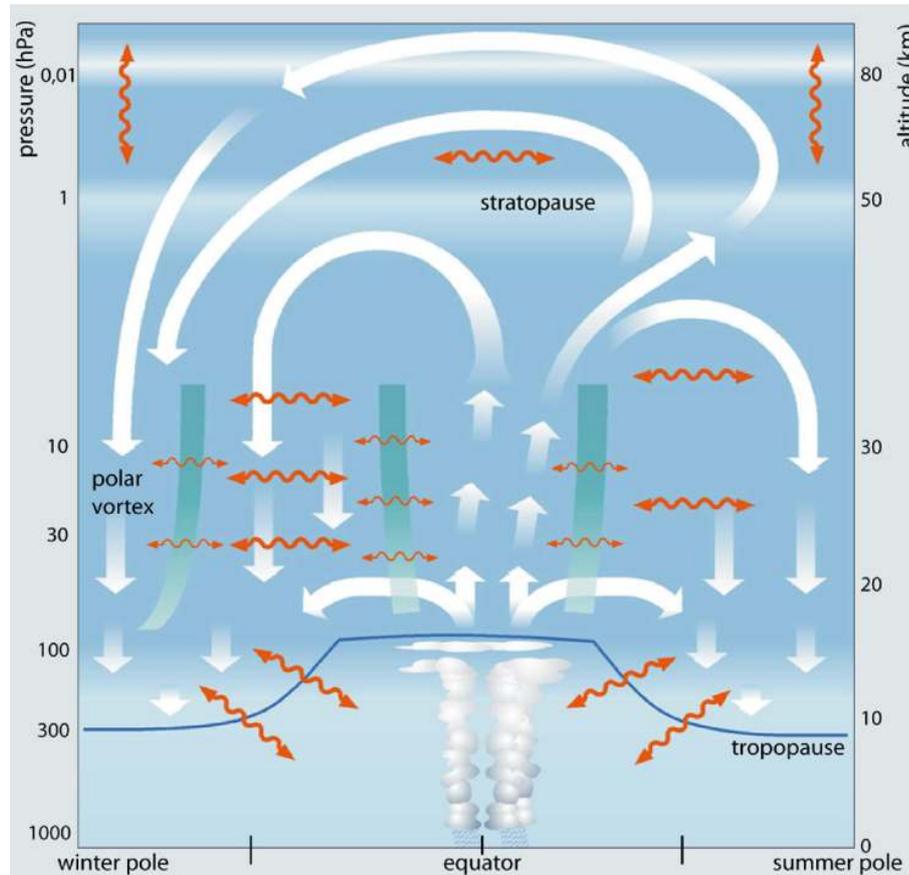
Comme évoqué précédemment, dans la stratosphère le gradient vertical de température est positif, impliquant une stabilité prononcée qui inhibe les mouvements verticaux. En re-

vanche, cette stabilité favorise la propagation d'ondes planétaires comme celles de Rossby, qui vont jouer un rôle prépondérant dans la dynamique stratosphérique. En plus d'être à l'origine d'un mélange méridien entre les masses d'air, les ondes de Rossby entraînent ce que l'on appelle en anglais le phénomène de *Rossby wave pump* (Plumb, 2002). Le déferlement des ondes de Rossby aux moyennes latitudes entraîne en effet la subsidence des masses d'air correspondantes vers les pôles, amorçant ainsi une circulation de plus grande échelle, dite de Brewer-Dobson, en référence aux deux premiers scientifiques à l'avoir décrite (Dobson et al., 1929; Brewer, 1949). Le phénomène de pompage cause l'ascendance de l'air aux tropiques, puis sa subsidence à des latitudes plus importantes après un transport méridien, que l'on retrouve schématisé sur la figure 1.4. Cette circulation est qualifiée de résiduelle au regard des faibles vitesses de transport induites. On notera qu'une branche ascendante de la circulation de Brewer-Dobson s'étend jusque dans la mésosphère où elle entraîne la redistribution de l'air de l'hémisphère d'été vers l'hémisphère d'hiver. Une description récente et approfondie de la circulation de Brewer-Dobson est donnée dans Butchart (2014).

## 1.1.4 De la troposphère à la stratosphère : la tropopause

### 1.1.4.1 Description générale

Comme cela a été évoqué précédemment, la troposphère et la stratosphère sont séparées par une fine couche appelée la tropopause, qui marque donc la limite de l'influence de la convection troposphérique et du réchauffement par absorption des rayons UV dans la stratosphère. Cette couche est identifiée par un changement de signe du gradient de température, ce qui implique un minimum local de température (en moyenne autour de  $-65^{\circ}\text{C}$ ). Cela s'accompagne d'un saut de stabilité, ce qui explique que l'on se réfère souvent à la tropopause comme une barrière dynamique. On peut voir ce maximum local de stabilité représenté sur la figure 1.5 par l'évolution verticale du carré de la fréquence de Brunt-Väisälä  $N^2$ , grandeur qui compare la flottabilité d'une masse d'air donnée par



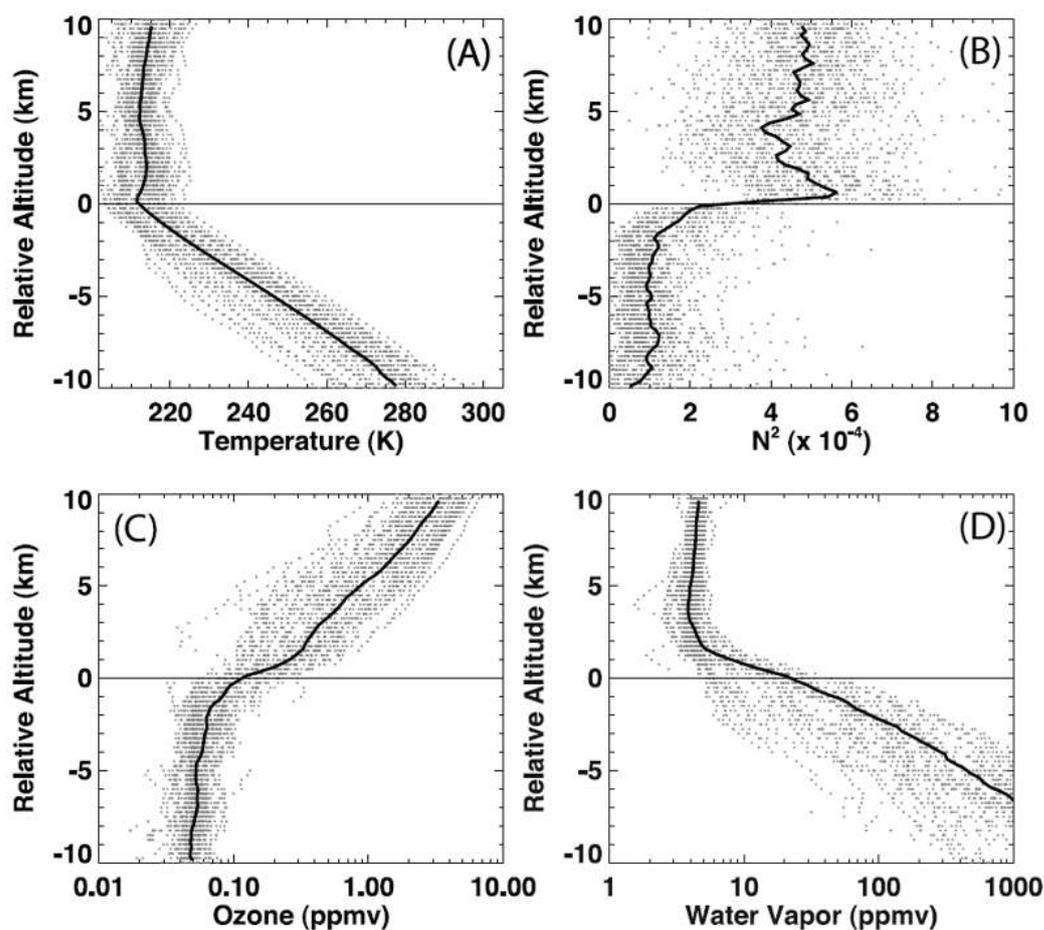
**Figure 1.4** – Représentation schématique de la circulation stratosphérique de Brewer-Dobson (en blanc) ainsi que des processus de mélange induits par les ondes planétaires (en orange). D’après Bönisch et al. (2011).

rapport à son environnement :

$$N^2 = \frac{g}{\theta} \frac{\delta\theta}{\delta z} = \frac{g}{T} (\Gamma_d - \Gamma) \quad (1.1)$$

Avec  $g$  la constante de gravité,  $\theta$  la température potentielle, et  $\frac{\delta\theta}{\delta z}$  son gradient potentiel. On peut aussi exprimer cette grandeur comme la comparaison du gradient vertical de température  $\Gamma = \partial T / \partial z$  au gradient vertical adiabatique sec  $\Gamma_d = g / c_p$ .

La tropopause ne marque pas seulement un changement dans la dynamique atmosphérique, mais aussi dans sa composition. Par exemple, toujours visible sur la figure 1.5, la tropopause marque aussi la baisse drastique de l’humidité et l’augmentation des quantités d’ozone de la troposphère vers la stratosphère. On l’a déjà évoqué à plusieurs re-



**Figure 1.5** – Profils moyens verticaux obtenus par ballon-sondes au dessus de Boulder, dans le Colorado, USA (45°N 105°W). L'altitude est donnée relative à la tropopause thermique. Les quantités mesurées sont les suivantes : (A) Température, (B) Stabilité statique  $N^2$ , (C) Ozone (D) Vapeur d'eau. D'après Gettelman et al. (2011)

prises, la tropopause agit comme une barrière qui sépare les masses d'air troposphériques et stratosphériques. Cette définition est une bonne approximation au premier ordre qui explique bien les différences dynamiques et de composition entre les deux couches. Cependant, elle n'est pas non plus complètement imperméable, et des échanges ont en fait lieu dans un sens comme dans l'autre, et on détaillera un peu plus loin dans le manuscrit les mécanismes à l'origine de ces flux.

Enfin, il faut noter que l'altitude et la structure de la tropopause varient avec la latitude. Aux tropiques, elle est assez épaisse (comprise entre 14 et 18.5 km). On la définit souvent comme la couche comprise entre l'altitude du maximum de l'injection par convection et celle du point froid. On y fait souvent référence en tant que TTL (de l'anglais

*Tropical Tropopause Layer*), et ses caractéristiques sont décrites de manière plus détaillées (Fueglistaler et al., 2009). Aux moyennes latitudes, elle est beaucoup plus fine (de l'ordre du km) et on la retrouve à des altitudes plus proches de 11 km. Elle y est alors appelée tropopause extra-tropicale ou encore TIL (de l'anglais *Tropopause Inversion Layer*).

### 1.1.4.2 Définitions de la tropopause

Il existe plusieurs manières de définir la tropopause quand on cherche à l'étudier à partir de mesures ou de données issues de modélisation numérique. La plupart de ces définitions cherchent à en déterminer l'altitude ou la pression en se basant sur l'évolution verticale de certains paramètres. On présente ci-après quelques-unes de ces définitions qui sont le plus souvent évoquées dans la littérature et qui sont pour la plupart utilisées dans les présents travaux.

**Tropopause(s) thermique(s)** : La tropopause thermique peut être définie de différentes manières en utilisant le profil vertical de température. On a en effet vu précédemment que la température diminuait dans la troposphère de manière assez constante ( $\Gamma = -6 \text{ K km}^{-1}$ ), avant d'atteindre un minimum au niveau de la tropopause. En partant de ce constat, on peut établir deux manières d'identifier la tropopause :

- On peut tout simplement chercher le niveau (d'altitude ou de pression) auquel on trouve le minimum de température. Référencée dans la littérature comme CPT (pour *Cold Point Tropopause*), cette définition est utile dans les tropiques pour estimer le haut de la TTL, mais elle nécessite une bonne résolution verticale de la température car la transition est abrupte. Dans un modèle numérique, on peut difficilement interpoler ce minimum de température, la résolution verticale étant souvent de plusieurs centaines de mètres à cette altitude. Toujours aux tropiques, cette définition de la tropopause est souvent confondue avec le niveau de température potentielle de 380 K, mais pas aux moyennes latitudes, où la tropopause est plus basse.

— En se basant cette fois-ci sur le gradient de température  $\Gamma$  plutôt que sur sa valeur absolue, on peut définir ce qu'on appelle la LRT (pour *Lapse Rate Tropopause*). Sa définition est fixée dans un bulletin de l'Organisation Mondiale de la Météorologie comme la plus basse altitude à laquelle  $\Gamma > -2 \text{ K km}^{-1}$ , et que cette inégalité soit valide au moins 2 km au-dessus (World Meteorological Organization, 1957). Cette définition permet aussi d'identifier des cas de double tropopause dans les cas où l'on observe  $\Gamma < -3 \text{ K km}^{-1}$  au-dessus, suivi d'une deuxième LRT. Cette définition est valide à la fois aux tropiques et aux moyennes latitudes, mais peut donner une surestimation de l'altitude de la tropopause aux latitudes polaires en hiver.

**Tropopause dynamique :** Afin de proposer une définition plus complète que par l'analyse de la stabilité statique, on peut analyser plus en détail la stabilité dynamique, due par exemple aux gradients de vent importants à cette altitude de par la présence des courants-jets. Cette définition se base sur la valeur du tourbillon potentiel (ou le plus souvent PV de l'anglais *Potential Vorticity*). Cette grandeur dynamique, qui est conservée lors des déplacements des masses d'air, s'exprime ainsi :

$$PV = N^2 \frac{\theta}{\rho g} (\zeta_\theta + f) \quad (1.2)$$

Avec  $\zeta_\theta$  le tourbillon relatif évalué comme la composante normale du rotationnel du vent et  $f = 2\Omega \sin \Phi$  ( $\Omega$  la fréquence de rotation de la Terre et  $\Phi$  la latitude) est le paramètre de Coriolis. On note aussi que l'on retrouve l'expression de la stabilité statique évaluée comme la fréquence de Brunt-Väisälä  $N^2$  dans la définition du PV. Sa valeur est positive dans l'hémisphère nord et négative dans l'hémisphère sud. On l'exprime le plus souvent en PVU (pour *Potential Vorticity Unit*) en sachant que  $1 \text{ PVU} = 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ K kg}^{-1} \text{ s}^{-1}$ . Sa valeur absolue est faible dans la troposphère avant d'augmenter brusquement au niveau de la tropopause. On définit alors sou-

vent la tropopause dynamique comme l'iso-surface de 2 PVU même si d'autres valeurs sont parfois utilisées (entre 1.5 et 5 PVU). Cette définition a l'avantage d'inclure la stabilité statique et dynamique, mais son calcul nécessite de connaître les champs tri-dimensionnels de température et de vent et est donc surtout utilisée sur des sorties de modèles numériques. On note aussi qu'à cause de la présence du paramètre de Coriolis  $f$  dans sa définition, le PV diverge à l'approche de l'équateur et doit donc être remplacé par une autre définition de la tropopause.

**Tropopause chimique** : Enfin, pour les raisons évoquées précédemment, la composition chimique de la troposphère et de la stratosphère sont assez distinctes. On peut alors aussi définir la tropopause à partir des concentrations de certains composés comme l'O<sub>3</sub> ou le CO. Un critère sur le gradient vertical d'O<sub>3</sub> est proposé par Bethan et al. (1996), localisant la tropopause chimique au niveau où ce gradient devient supérieur à 60 ppb/km. On peut aussi se baser sur la corrélation (ou plutôt anti-corrélation) entre les rapports de mélange d'O<sub>3</sub> et de CO, qui augmente fortement en valeur absolue en passant de la troposphère à la stratosphère (Zahn and Brenninkmeijer, 2003).

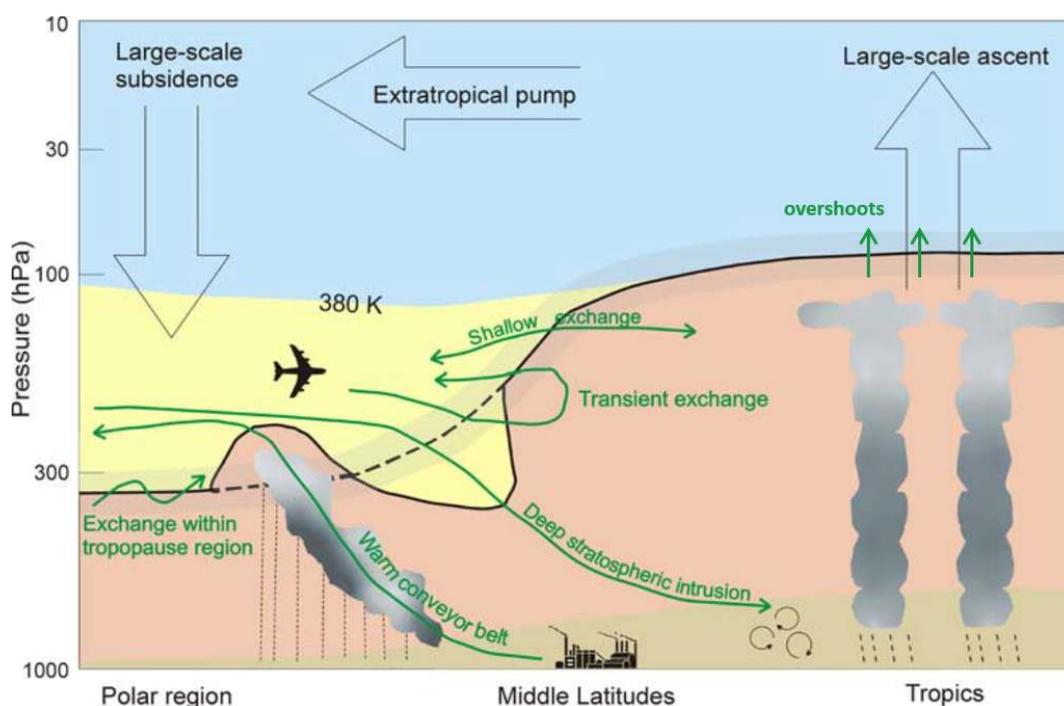
### 1.1.5 Échanges entre troposphère et stratosphère

Jusqu'ici, la tropopause a été présentée comme un "couvercle" au-dessus de la troposphère ou encore une "barrière" entre deux couches de l'atmosphère dont la dynamique et la composition chimique sont très distinctes. Cependant, il existe des mécanismes de transport irréversible entre ces deux couches, à la fois de la troposphère vers la stratosphère et inversement, et qui contribuent donc à l'échelle globale à leur mélange (sur des échelles de temps longues). Aux tropiques, la convection profonde, caractéristique de ces latitudes, impacte fortement la composition de la haute troposphère par le détrainement des masses d'air provenant de basse altitude. Dans le cas où le détrainement se produit au-dessus du niveau de chauffage radiatif nul, les mouvements d'air sont alors marqués par une lente ascendance radiative, qui amène de l'air de la haute troposphère tropicale à

la basse stratosphère. Le transport de l'air troposphérique vers la stratosphère peut aussi se faire lors des phénomènes d'*overshoot* qui ont lieu lors des événements convectifs les plus forts. Cela entraîne une injection directe dans la basse troposphère tropicale et est une voie non négligeable de passage de la troposphère à la stratosphère (Ricaud et al., 2007). Une deuxième voie d'échange prend place entre la haute troposphère tropicale et la basse stratosphère extratropicale le long des isentropes (iso-surface de température potentielle), qui croisent la tropopause autour de 30° de latitude (Jing and Banerjee, 2018). Ce processus est associé au déferlement des ondes de Rossby, favorisé par la proximité du courant-jet subtropical. Enfin, à partir des moyennes latitudes, il existe des échanges associés aux dépressions et aux fronts observés en altitude, qui entraînent des foliations de tropopause (Brioude et al., 2006). Ces foliations sont notamment à l'origine des intrusions stratosphériques qui sont caractéristiques de ces latitudes et constituent le principal flux de la stratosphère vers la troposphère (Škerlak et al., 2014; Jaeglé et al., 2017). Ces différents mécanismes entraînant des échanges entre troposphère et stratosphère sont résumés sur la figure 1.6.

La quantification de ces flux a fortement progressé ces dernières années, notamment grâce aux avancées dans l'observation satellitaire qui permettent des réanalyses de l'état de l'atmosphère de meilleure qualité autour de la tropopause. L'étude de Škerlak et al. (2014) apporte une quantification assez précise des flux nets de masses d'air traversant la tropopause, allant de  $-25 \times 10^5 \text{ kg s}^{-1} \text{ km}^{-1}$  (troposphère  $\rightarrow$  stratosphère) aux tropiques à  $30 \times 10^5 \text{ kg s}^{-1} \text{ km}^{-1}$  (stratosphère  $\rightarrow$  troposphère) aux moyennes latitudes. Ces flux suivent des cycles saisonniers prononcés et sont maximaux dans l'hémisphère d'été. A partir de ces flux, on peut estimer des quantités d'ozone transportées à travers la tropopause, mais ces estimations sont très dépendantes des concentrations estimées en ozone autour de la tropopause et donc soumises à des incertitudes.

## 1.1. STRUCTURE ET DYNAMIQUE DE LA HAUTE TROPOSPHÈRE



**Figure 1.6** – Représentation schématique des échanges entre troposphère et stratosphère. Les flèches les plus épaisses représentent la circulation générale tandis que les flèches vertes indiquent les différents processus de transport au travers de la tropopause. Adaptée de Stohl et al. (2003).

### 1.1.6 L'importance de l'UTLS

La composition chimique de l'UTLS est étudiée pour son impact important sur le bilan radiatif terrestre, et en particulier sur le climat de surface. L'étude de Riese et al. (2012) montre que la sensibilité de la température de surface aux variations de quantités d'ozone, de vapeur d'eau et de méthane est maximale autour de la tropopause. De plus, pour l'ozone et la vapeur d'eau, pour lesquelles leur gradient vertical est très important au niveau de la tropopause, leur impact radiatif est très sensible au mélange vertical qui a lieu entre troposphère et stratosphère au niveau de la tropopause. Cela est conforté par l'étude de Xia et al. (2018), où l'impact radiatif de l'ozone dans l'UTLS est évalué à  $0.16 \text{ Wm}^{-2}$ , à la fois par chauffage direct de l'UTLS par l'ozone mais aussi son interaction avec la vapeur d'eau et les nuages de haute altitude. Toujours dans la même étude, les auteurs avancent que pour mieux quantifier les impacts radiatifs de l'ozone, une attention particulière doit être portée sur l'UTLS, où améliorer la compréhension des différents processus permettrait

de réduire les incertitudes sur sa répartition et son évolution temporelle.

## 1.2 L'ozone dans l'atmosphère

On a commencé à le voir dans les parties précédentes, l'ozone joue un rôle central dans le système atmosphérique. C'est donc à travers le prisme de cette espèce que nous allons étudier la composition chimique de l'atmosphère. Étant une espèce secondaire, les réactions régissant sa production et sa destruction sont d'abord présentées, à la fois dans la stratosphère et la troposphère. On détaillera aussi l'origine de ses précurseurs, ainsi que son rôle dans le bilan radiatif de la Terre.

### 1.2.1 La production d'ozone dans l'atmosphère

#### 1.2.1.1 Cycle de Chapman et ozone stratosphérique

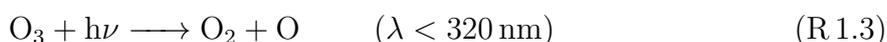
Même si l'on s'intéressera principalement à l'ozone dans la haute troposphère dans les présents travaux, il est important de comprendre comment l'ozone est produit dans la stratosphère. L'ozone stratosphérique représente en effet 90% de la colonne totale, et influence donc la haute troposphère au travers de la tropopause. Dans la stratosphère, les rayons UV les plus énergétiques n'ont pas encore été absorbés par les couches supérieures de l'atmosphère, et la densité de l'air y est assez élevée pour qu'ils soient interceptés par les molécules d'O<sub>2</sub> :



où les deux atomes d'oxygène sont libérés sous leur forme de base O(<sup>3</sup>P), très réactive. Ces atomes peuvent alors réagir avec les molécules d'O<sub>2</sub> présentes pour former de l'ozone :



où M est un radical libre. Ces deux réactions (R 1.1 et R 1.2) sont donc à l'origine du principal mécanisme de la création d'ozone stratosphérique. Cependant, l'ozone peut aussi être détruit par photolyse, à des longueurs d'ondes un peu plus grandes que l'O<sub>2</sub>.

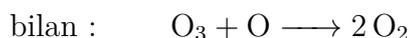


Cette fois-ci l'atome d'oxygène libéré l'est sous sa forme excitée O(<sup>1</sup>D), mais qui se stabilisera rapidement en O(<sup>3</sup>P). On note que R 1.3 n'est pas un puits final pour l'O<sub>3</sub>, puisque l'atome d'oxygène O(<sup>3</sup>P) peut toujours réagir avec O<sub>2</sub> selon R 1.2 pour reformer de l'O<sub>3</sub>. Une dernière réaction cause cependant la perte de ce singlet d'oxygène :



Ces réactions forment ce que l'on appelle le cycle ou mécanisme de Chapman, en référence au chercheur britannique Sydney Chapman qui l'a théorisé en 1930. Ce mécanisme explique bien la présence d'un maximum d'ozone dans la stratosphère correspondant à la couche d'ozone que l'on y observe, mais il en surestime la quantité d'ozone d'un facteur 2. Il existe donc d'autres réactions de destruction de l'ozone, qui ont été découvertes par la suite et qui impliquent les familles chimiques HO<sub>x</sub>, NO<sub>x</sub>, ClO<sub>x</sub>, BrO<sub>x</sub> ainsi que certains composés iodés. Ces réactions sont en fait des cycles catalytiques, dans le sens où le bilan net conduit à la destruction de molécules d'oxygène impaire O<sub>x</sub> (O<sub>3</sub> ou O), mais pas du radical X associé. Des concentrations très faibles desdits radicaux peuvent donc conduire à un taux de destruction de l'ozone élevé, expliquant ainsi la différence entre les obser-

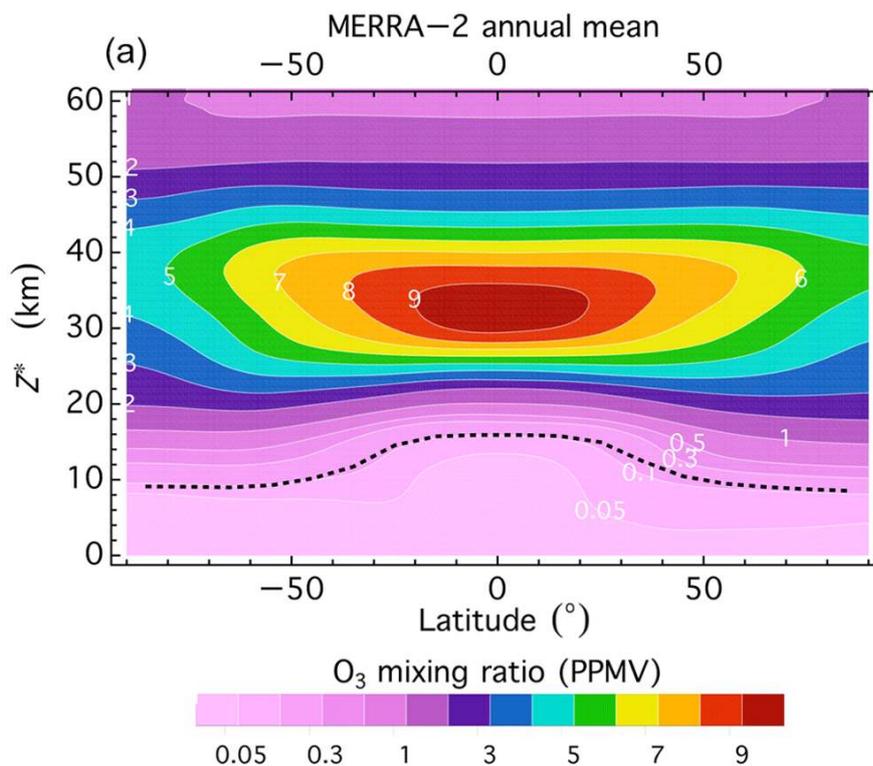
vations et le mécanisme de Chapman. Il existe plusieurs cycles catalytiques pour chaque famille de radical X, mais la plupart peuvent être résumés ainsi :



Ces différents cycles catalytiques permettent une bonne représentation des taux de destruction de l’ozone, et couplés au mécanisme de Chapman, permettent une bonne représentation de la couche d’ozone stratosphérique. On peut voir une coupe zonale des concentrations d’ozone dans l’atmosphère, où la couche d’ozone est bien visible autour de 35 km d’altitude. D’autres processus plus complexes entrent en jeu dans ce que l’on appelle la déplétion de la couche d’ozone polaire (aussi référencée comme trou dans la couche d’ozone), mais ne sont pas explicités ici.

### 1.2.1.2 L’ozone troposphérique : le système chimique $O_3/NO_x/COV$

Les rayons UV suffisamment énergétiques pour la photo-dissociation des molécules d’ $O_2$  ayant été absorbés intégralement dans la stratosphère, d’autres mécanismes que celui de Chapman sont nécessaires à la production d’ $O_3$  dans la troposphère. La photolyse de  $NO_2$  est d’ailleurs une source de singlet d’oxygène, et est possible pour des longueurs d’onde inférieures à 420 nm. Comme dans la stratosphère, cet atome d’oxygène peut s’associer à une molécule d’ $O_2$  pour former de l’ozone (R 1.2). La molécule de NO ainsi formée lors de la photolyse du  $NO_2$  peut ensuite réagir avec  $O_3$  pour reformer du  $NO_2$ . Ces trois réactions forment le cycle de Leighton :



**Figure 1.7** – Moyenne annuelle et zonale du rapport de mélange d’ozone en fonction de l’altitude, issue de la réanalyse MERRA-2 (*Modern-Era Retrospective Analysis for Research and Applications version 2*). Adaptée de Yang and Liu (2019).

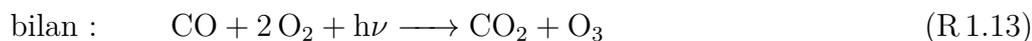


Les trois réactions de ce cycle se produisant toutes rapidement, résultant en un bilan nul le jour, et une destruction de l’ozone par NO pendant la nuit où la photolyse du  $\text{NO}_2$  ne se produit plus. Il existe d’autres voies réactionnelles permettant la reconversion de NO en  $\text{NO}_2$ , impliquant des radicaux peroxy  $\text{RO}_2$  et  $\text{HO}_2$  obtenus lors de l’oxydation de composés organiques volatiles (COV) par OH. Les radicaux OH sont formés eux à partir de la photolyse de l’ $\text{O}_3$  (R1.3). Cela a été abordé précédemment, lors de cette photolyse l’atome d’oxygène est dans un état excité  $\text{O}(^1\text{D})$ . La plupart du temps il va, de la même

manière que dans la stratosphère, revenir à son état fondamental  $O(^3P)$  en entrant en collisions avec  $N_2$  ou  $O_2$ . Mais dans 10% des cas, il peut réagir avec une molécule de  $H_2O$  pour donner OH :



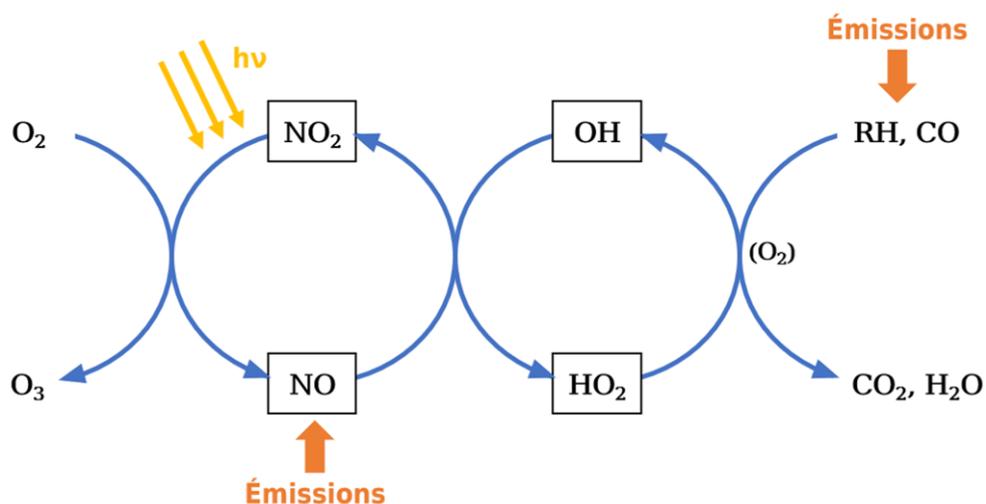
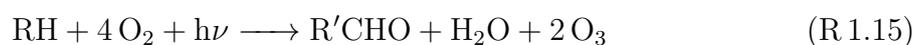
On ne retrouve pas cette voie de réaction dans la stratosphère, où la vapeur d'eau est beaucoup plus rare. Au passage, on note que l'ozone joue un rôle important dans la formation du radical OH, qui est le principal oxydant dans l'atmosphère. Une fois ces radicaux OH disponibles, ils vont pouvoir oxyder le CO ou les COV présents. En prenant l'exemple du CO, on obtient le cycle de suivant :



où la molécule d'hydrogène libérée lors de l'oxydation de CO par OH (R 1.10) permet la formation d'un radical hydroperoxyde  $HO_2$  (R 1.11). Ce radical permet la reformation de  $NO_2$  à partir de NO (R 1.12), ainsi que d'une molécule de OH, et ce sans consommation de molécule d'ozone. Comme on peut le voir dans la réaction bilan, on obtient une production nette d'une molécule d'ozone à partir d'une molécule de CO, et ce sans consommation de : OH,  $HO_2$ , NO ou  $NO_2$ . Pour les COV, le cycle catalytique est assez similaire, mais fait intervenir une deuxième réaction permettant de reformer du  $NO_2$  :



Avec R le radical du composé organique volatil concerné noté RH et RO<sub>2</sub> son peroxyde obtenu par réaction avec OH puis O<sub>2</sub>. La réaction bilan est :



**Figure 1.8** – Représentation schématique des différents cycles chimiques impliqués dans la production d’ozone dans la troposphère.

Tous ces cycles menant à de la production d’ozone sont résumés sur la figure 1.8. Enfin, la destruction d’O<sub>3</sub> peut se faire le jour soit par photolyse (R 1.3), soit par réaction avec OH ou HO<sub>2</sub> :

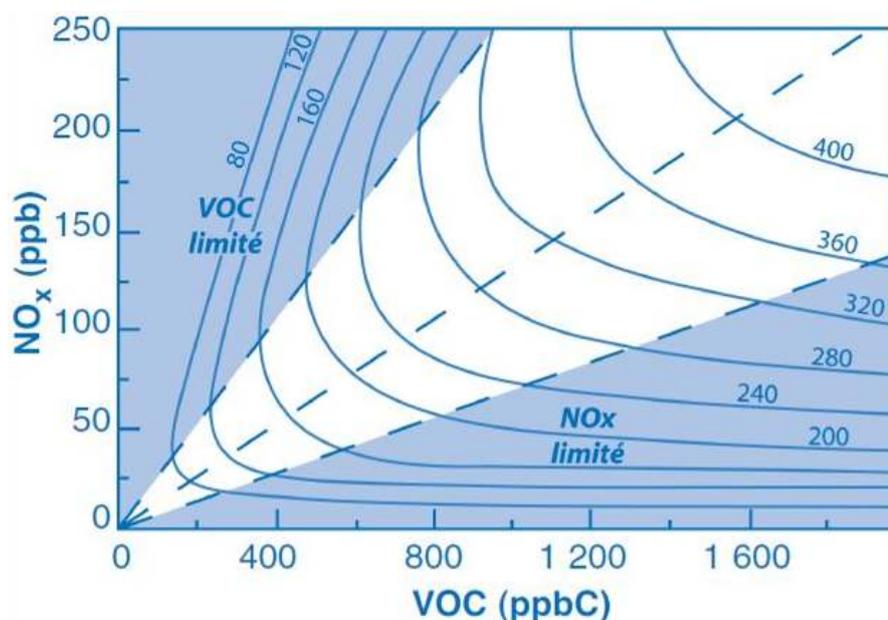


La nuit, en l’absence de ces radicaux, c’est la réaction avec NO (R 1.8) qui est à

l'origine de la destruction d'ozone.

### 1.2.1.3 Régimes chimiques dans la troposphère

À partir de ces différents cycles chimiques précédemment présentés, on peut en déduire l'efficacité de la production d'ozone en fonction de la disponibilité de certaines familles chimiques. Ces sont les COV et les  $\text{NO}_x$  qui sont les principales espèces limitantes, et l'on peut prédire le taux de production d' $\text{O}_3$  à partir des concentrations de ces deux familles d'espèces chimiques (voir figure 1.9). Il en découle alors plusieurs régimes de production, que l'on qualifie en fonction du rapport  $[\text{COV}] / [\text{NO}_x]$ .



**Figure 1.9** – Évolution du taux de production d'ozone (isoplèthes, en ppb/h) en fonction des rapports de mélange en COV (en ppb de C) et en  $\text{NO}_x$  (en ppb). D'après Camredon and Aumont (2007).

Le régime saturé en  $\text{NO}_x$  (ou limité en COV) a pour caractéristique une dépendance très forte de la production d'ozone à la valeur du rapport  $[\text{COV}] / [\text{NO}_x]$ . Cela implique que, si les concentrations en  $\text{NO}_x$  augmentent dans un régime déjà saturé, cela favorise la destruction d' $\text{O}_3$  par la réaction (R1.8). On observe alors une diminution du taux de production à concentration en COV constante. Ce régime est caractéristique des basses couches de l'atmosphère en milieu urbain ou périurbain, à proximité des sources de  $\text{NO}_x$

## 1.2. L'OZONE DANS L'ATMOSPHERE

---

car la durée de vie de ces derniers est assez faible (inférieure à un jour dans la couche limite atmosphérique).

Au cours de leur vieillissement, les masses d'air voient donc leur concentration en  $\text{NO}_x$  diminuer rapidement, et donc une augmentation du rapport  $[\text{COV}] / [\text{NO}_x]$ . La production d'ozone augmente donc, car le régime chimique n'est alors plus saturé en  $\text{NO}_x$ . C'est dans ce régime intermédiaire que la production d'ozone est maximale, et donc souvent à l'aval des sources de  $\text{NO}_x$ . La valeur de concentration en  $\text{NO}_x$  caractéristique de ce régime transitoire dépend de celle des COV. Dans la couche limite atmosphérique, elle est de quelques ppb, et de quelques centaines de ppt dans la haute troposphère (Delmas et al., 2005; Brune et al., 1999).

Enfin, dans le régime limité en  $\text{NO}_x$  (ou saturé en COV), la totalité des  $\text{NO}_x$  sont utilisés dans le cycle de Leighton pour de la production d'ozone. Le taux de production est alors assez insensible à une augmentation des concentrations de COV, mais très sensible à une injection de  $\text{NO}_x$ . Ce régime est rencontré dans la couche limite dans les zones rurales, ou encore dans la troposphère libre et la haute troposphère, toujours à cause de la courte durée de vie des  $\text{NO}_x$ . Pour les concentrations les plus faibles de  $\text{NO}_x$  (moins de quelques dizaines de ppt), les réactions de photolyse de l'ozone (R 1.3) et de destruction par les radicaux  $\text{HO}_x$  (R 1.16 et R 1.17) peuvent même prendre le pas sur le cycle de Leighton, résultant en une destruction nette d'ozone. On retrouve ce régime extrêmement limité en  $\text{NO}_x$  dans la couche limite atmosphérique au-dessus des océans. On y retrouve des masses d'air très pauvres en ozone, qui peuvent parfois être transportées jusque dans la haute troposphère par convection profonde (Solomon et al., 2005).

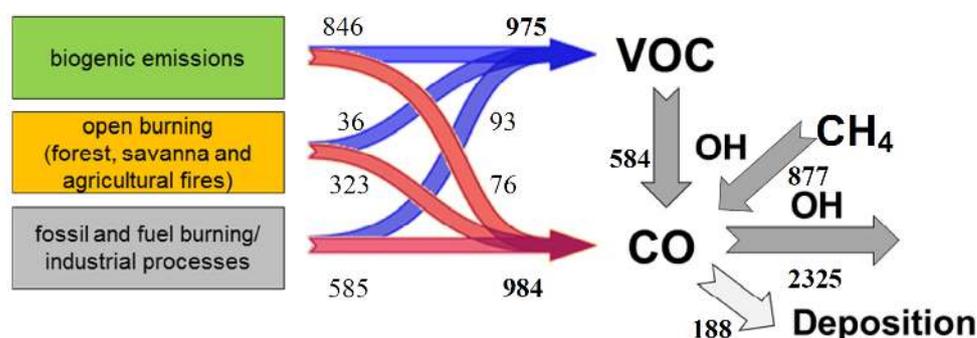
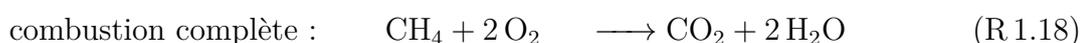
Dans la haute troposphère, la production d'ozone est le plus souvent limitée en  $\text{NO}_x$ , car leur courte durée de vie les empêche d'être transportés jusqu'à cette altitude. En revanche, l'efficacité de la production d'ozone, estimée comme le potentiel de production d' $\text{O}_3$  par molécule de  $\text{NO}_x$ , y est plus élevée que dans la couche limite (Sauvage et al., 2007b; Gressent et al., 2016). La production d'ozone va donc fortement dépendre de la présence de sources locales de  $\text{NO}_x$  que sont les éclairs et l'aviation, ainsi que de cycles

chimiques avec certaines espèces réservoir, détaillés dans la partie 1.2.2.2.

## 1.2.2 Les précurseurs de l’ozone dans la troposphère

### 1.2.2.1 Le monoxyde de carbone et les COV

Les COV sont les composés gazeux présentant au moins une molécule de carbone, à l’exception du CO et du CO<sub>2</sub>. Avec le CO justement, ils sont considérés comme des précurseurs de l’ozone car ils permettent la formation de HO<sub>2</sub>. Avec sa durée de vie généralement plus longue (1 à 2 mois contre quelques jours pour la plupart des COV), le CO est souvent le précurseur le plus abondant, et ce, particulièrement dans la haute troposphère. Il est principalement émis lors de combustion incomplète, c’est-à-dire une réaction de combustion où l’oxygène n’est pas présent en quantité suffisante. Par exemple pour une combustion de méthane :



**Figure 1.10** – Estimations des sources et des puits de CO atmosphérique pour l’année 2008 à partir des inventaires d’émissions MACCity, MEGAN et GFAS. D’après Stein et al. (2014).

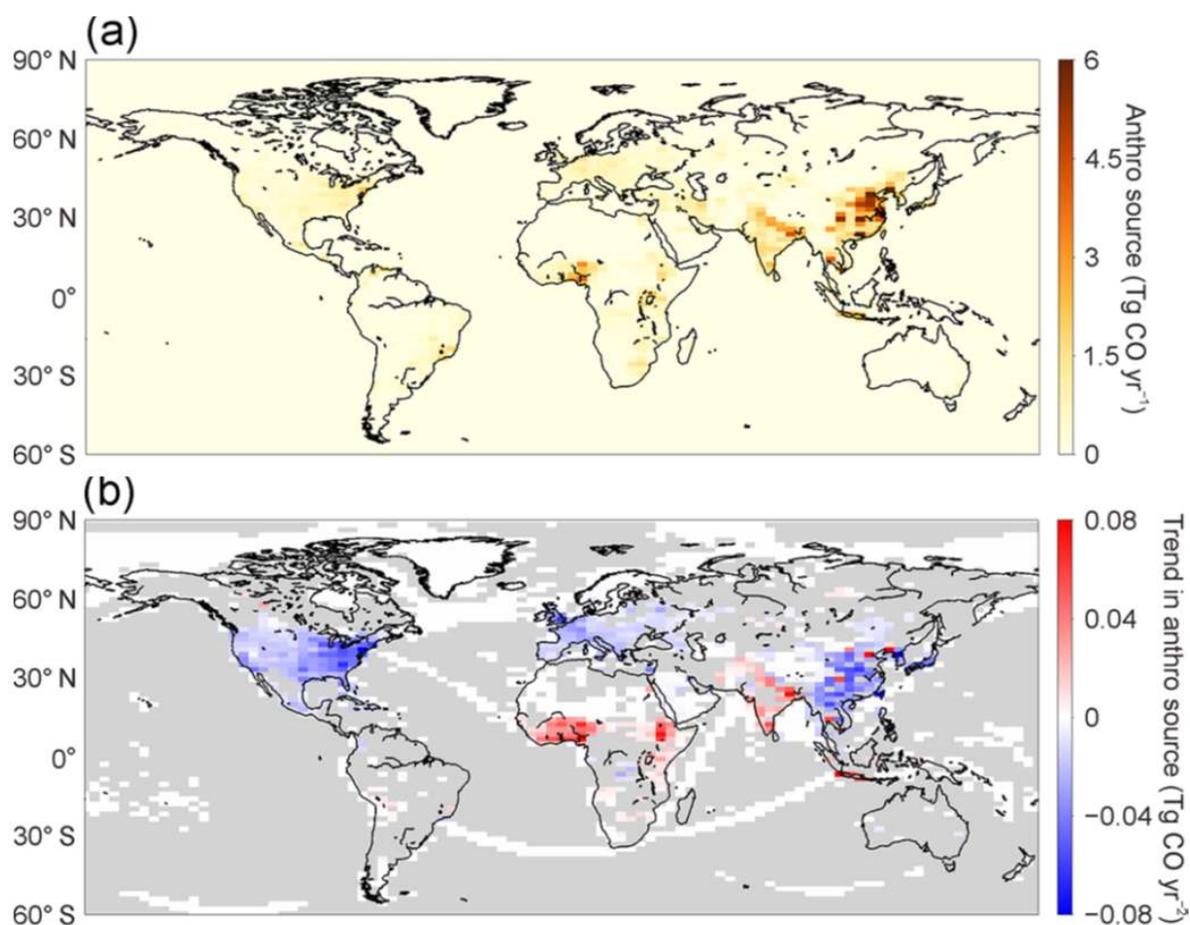
Le CO est aussi émis dans une moindre mesure par la végétation (émissions dites biogéniques), mais est surtout le résultat de l’oxydation des COV dans l’atmosphère, dont

il est l'espèce terminale. Pour ce qui est des puits de CO, le principal est aussi l'oxydation par OH (R1.10) qui mène à la production d'ozone. On note au passage que de manière réciproque, le CO est le principal puits pour OH (Lelieveld et al., 2016), entrant en concurrence avec toutes les autres espèces réagissant avec OH. Ainsi, de par son rôle important sur la présence de radicaux hydroxyles, le CO contribue à augmenter la durée de vie d'autres espèces, dont le méthane, et participe donc indirectement à l'augmentation du forçage radiatif (IPCC, 2013). Une petite partie (de l'ordre de 10%) est perdue par dépôt sec. Un exemple de quantification des sources et puits de CO dans l'atmosphère est présenté figure 1.10, pour l'année 2008. Ces estimations sont issues d'inventaires d'émissions, calculées à partir de facteurs d'émissions, de modélisation, et contraints par des mesures in-situ ou satellitaires. De manière plus générale, les quantités de CO émises par les activités humaines ( $450-600 \text{ TgCOyr}^{-1}$  Lamarque et al., 2010) et les feux de biomasse ( $350-600 \text{ TgCOyr}^{-1}$  van der Werf et al., 2006) sont assez comparables. Les émissions des feux de biomasse étant décrites en détail dans la prochaine partie (1.3), on se focalise ici sur la description des émissions anthropiques de CO.

La figure 1.11 présente une estimation récente des flux d'émissions de CO anthropique. On y distingue 4 foyers principaux d'émissions anthropiques de CO : l'Amérique du Nord, l'Europe l'Inde et la Chine. Ces émissions suivent un cycle saisonnier assez prononcé, avec un maximum en hiver. Ces émissions suivent globalement une tendance à la baisse, avec un contraste important entre les pays développés (Amérique du Nord, Europe et Inde) avec une décroissance assez prononcée, et les pays en voie de développement (Inde et Afrique équatoriale) où ces émissions sont à la hausse (Zheng et al., 2019).

### 1.2.2.2 Les oxydes d'azote $\text{NO}_x$

Les oxydes d'azotes réactifs  $\text{NO}_x$  (NO et  $\text{NO}_2$ ), sont des espèces clés dans la chimie atmosphérique, avec un rôle de précurseur pour l'ozone troposphérique, et un rôle de destruction de l'ozone dans la stratosphère. La principale source de  $\text{NO}_x$  en quantité est la combustion de fuels fossiles, avec  $28-32 \text{ TgNyr}^{-1}$  (Granier et al., 2011), répartis



**Figure 1.11** – Distribution spatiale des sources anthropiques de CO estimée par inversion de source multi-espèces sur la période 2000-2017 : (a) en moyenne annuelle et (b) la tendance linéaire associée sur la période. D'après Zheng et al. (2019).

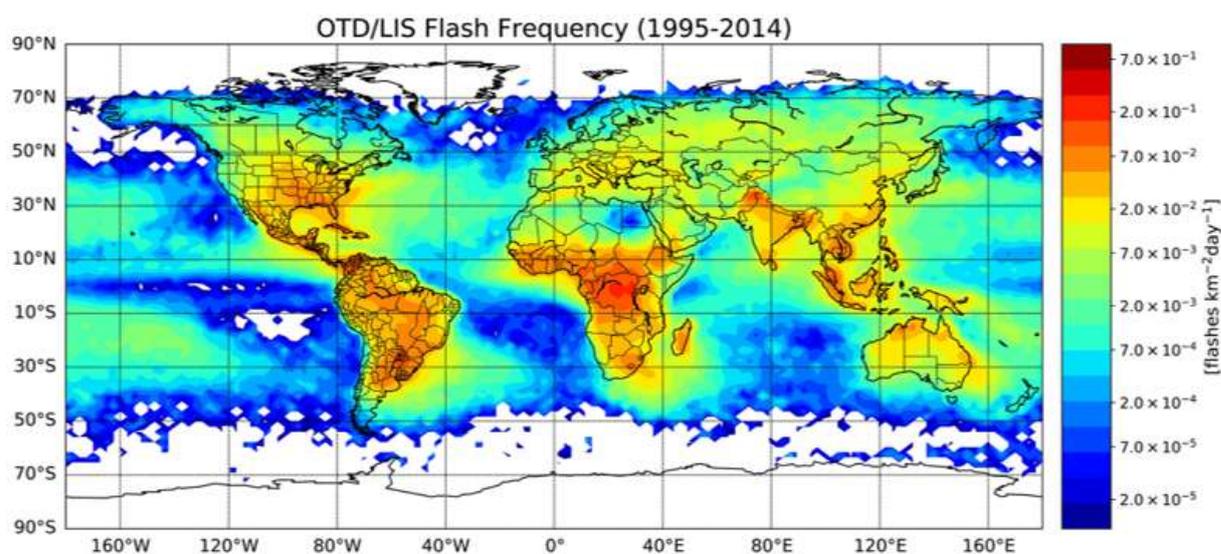
de manière similaire aux émissions de CO présentées précédemment. Il y a aussi des émissions de  $\text{NO}_x$  par les feux de biomasse ( $4\text{-}24 \text{ TgNyr}^{-1}$ ) et l'activité biologique des sols ( $4\text{-}16 \text{ TgNyr}^{-1}$ ), associées à de plus fortes incertitudes (IPCC, 2013).

La durée de vie des  $\text{NO}_x$  est très courte dans la couche limite atmosphérique (moins de 6 h), et leur concentration diminue très vite dès lors que l'on s'éloigne de la surface. Même si la convection peut conduire à une augmentation locale des niveaux de  $\text{NO}_x$  dans la haute troposphère, leur répartition à cette altitude dépend plus des sources locales que sont l'aviation et les éclairs, ainsi que des interactions avec leurs espèces réservoir.

L'aviation est en fait une partie des émissions anthropiques, responsables de l'injection d'environ 1 Tg de N. Si la quantité totale émise est faible par rapport à d'autres secteurs

## 1.2. L'OZONE DANS L'ATMOSPHERE

d'émissions, elles ont toutefois un effet important en altitude puisqu'elles se font, en grande majorité, directement dans la haute troposphère. Ces émissions ont un impact non négligeable sur les concentrations de  $\text{NO}_x$  (40-70 ppt) et donc la production d'ozone (3-6 ppb), entre 10 et 12 km d'altitude (Olsen et al., 2013).

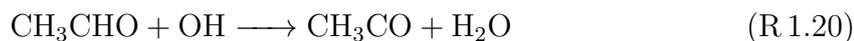


**Figure 1.12** – Distribution spatiale de fréquence des éclairs de 1995 à 2014 (en  $\text{flashes km}^{-2}\text{day}^{-1}$ ) telle que mesurée par les instruments satellitaires LIS (*Lightning Imaging Sensor*) et OTD (*Optical Transient Detector*). D'après Gordillo-Vázquez et al. (2019).

Deuxième source locale de  $\text{NO}_x$  dans la haute troposphère, les éclairs qui ont lieu lors des orages amènent une partie du dioxygène et du diazote de l'air à former du NO à cause des très hautes températures atteintes à leur proximité. La répartition spatiale et temporelle des éclairs est assez bien estimée, notamment grâce aux observations satellitaires. On peut en voir une estimation récente de leur fréquence moyenne annuelle sur la figure 1.12. Les principaux foyers d'éclairs sont quasi identiques à ceux de la convection, avec une fréquence maximale au-dessus des zones continentales et majoritairement sous les tropiques. A l'échelle globale, la fréquence moyenne des éclairs suit un cycle saisonnier maximal en été boréal (Cecil et al., 2014). Néanmoins, l'estimation de la production de  $\text{NO}_x$  par lesdits éclairs ( $\text{LiNO}_x$ , pour *Lightning NO<sub>x</sub>*) est beaucoup plus incertaine. Le consensus depuis quelques années tend vers une production annuelle moyenne de  $5 \pm 3 \text{ TgNyr}^{-1}$ , (Murray, 2016; Schumann and Huntrieser, 2007). Malgré tout, une étude plus récente de Nault et al. (2017) donne une production globale de  $9 \text{ TgNyr}^{-1}$ , réévaluant à la hausse les résultats

d'études précédentes. Ces incertitudes sur les  $\text{LiNO}_x$  se traduisent par des différences de l'ordre de 15% sur la modélisation de l'ozone troposphérique (Labrador et al., 2005), et jusqu'à 60% dans la haute troposphère tropicale, ainsi qu'un facteur trois du bilan radiatif net à la tropopause (Liaskos et al., 2015).

Pour finir sur les  $\text{NO}_x$ , il est important de comprendre leurs interactions avec ses espèces réservoir, notées  $\text{NO}_z$  (et  $\text{NO}_y = \text{NO}_x + \text{NO}_z$ , la somme des composés azotés). On retrouve parmi ces espèces le  $\text{HNO}_3$ , le HONO, le  $\text{N}_2\text{O}_5$  ou encore le PAN (Peroxy-Acetyl Nitrate). Le PAN, de formule  $\text{CH}_3\text{COO}_2\text{NO}_2$ , est la principale espèce réservoir de  $\text{NO}_x$  dans la haute troposphère. Il est formé dans la troposphère à partir de  $\text{NO}_2$  et d'acétaldéhyde ( $\text{CH}_3\text{CHO}$ ), selon la chaîne de réactions suivante :



Sa durée de vie dans l'atmosphère est fortement contrôlée par la température, allant d'environ une heure à 25°C jusqu'à plusieurs mois à -20°C (Delmas et al., 2005). Il s'accumule alors particulièrement aux moyennes et hautes latitudes de l'hémisphère nord en hiver, et dans la haute troposphère (Fischer et al., 2014). Toujours dans la haute troposphère, il est principalement décomposé par photolyse, régénérant ainsi les  $\text{NO}_x$ .

### 1.3 Les émissions de feux de biomasse

Bien que la partie précédente présentait l'ozone et ses précurseurs ainsi que la manière dont ils étaient émis dans l'atmosphère, les émissions des feux de biomasse n'ont été que peu abordées. Elles sont pourtant une source importante pour beaucoup d'espèces réactives dont les précurseurs d'ozone, et leur dynamique particulière favorise leur transport

dans toute la troposphère. On va donc voir dans cette partie leur principales caractéristiques, puis les différentes manières de construire des inventaires d'émissions permettant de les inclure dans les modèles de chimie atmosphérique. Enfin, les dernières avancées sur la représentation des panaches de feux de biomasse seront présentées.

#### 1.3.1 Les feux de biomasse et leurs émissions

Les feux de biomasse sont une source importante d'espèces gazeuses réactives et de particules dans l'atmosphère. Ils correspondent à de la combustion de végétation, qu'elle soit d'origine anthropique ou naturelle (initiation par les éclairs). Les feux de biomasse ont lieu majoritairement aux latitudes tropicales, principalement sur le continent Africain (environ 58 % des émissions totales), mais aussi en Amérique du Sud et en Asie du Sud-Est. Ils y sont alors le plus souvent d'origine humaine, servant à l'agriculture, au défrichage ou à la déforestation, ainsi qu'à la production de charbon. Dans les forêts tempérées et boréales, les émissions sont principalement liées à des feux de forêts, le plus souvent déclenchés par la foudre (Veraverbeke et al., 2017). Tous ces feux de biomasse suivent un cycle saisonnier important, maximal pendant la saison sèche de la région concernée.

Historiquement, les premiers travaux d'estimation des quantités de divers composés chimiques par les feux de biomasse et leur impact sur la composition atmosphérique débutent avec Crutzen et al. (1979). Les conclusions de ces travaux étant que ces émissions sont comparables aux émissions anthropiques pour certains gaz réactifs, et tout particulièrement pour le CO, mais aussi de certains composés azotés. Ces travaux sont à l'origine de plusieurs axes de recherche sur l'estimation plus précise des émissions des feux de biomasses, et de leur impact sur les cycles biogéochimiques à l'échelle mondiale.

Au total, on considère les feux de biomasse sont responsables d'émissions de composés carbonés (1800-2300 TgCyr<sup>-1</sup>), en grande majorité sous forme de CO<sub>2</sub>, mais aussi de CO (15% de ce total, soit environ 350 Tg de CO), ainsi que de méthane et autres COV à hauteur de quelques % de ce total (van Marle et al., 2017). Comme indiqué au-dessus, ils sont aussi une source non négligeable de NO<sub>x</sub> avec des estimations de 4-24 TgNyr<sup>-1</sup>

(IPCC, 2013). Ces estimations des émissions globales des feux de biomasse sont associées à des incertitudes importantes, liées à la détermination de leur localisation, de leur intensité, ainsi que du type de combustible. On note aussi une forte variabilité interannuelle des feux de biomasse par rapport aux émissions anthropiques ou biogéniques, notamment à l'échelle régionale. Les émissions de feux de biomasse sont d'ailleurs presque entièrement responsables de la variabilité interannuelle observée pour le CO, et tout aussi importantes pour certaines espèces réactives comme OH (Voulgarakis et al., 2015).

On peut aussi faire le lien avec des événements assez récents et importants de feux de forêts, comme par exemple ceux qui ont eu lieu en Australie lors de l'été austral 2019/2020, ainsi qu'en Californie et en Sibérie durant l'été boréal 2020. Les émissions de ces "super-événements" ont alors un impact dur la composition atmosphérique à l'échelle de l'hémisphère, et de la surface à la stratosphère (Khaykin et al., 2020; Lin and Zhang, 2021).

Concernant l'évolution temporelle des émissions des feux de biomasse, l'étude de van Marle et al. (2017) montre une augmentation légère des quantités émises jusque dans les années 1990, puis une diminution graduelle depuis. Ces variations au long terme sont principalement dues au changement de pratiques dans les régions tropicales. Le changement climatique aussi impacte les feux de biomasse, avec une augmentation attendue de leur fréquence d'ici 2050 (Huang et al., 2015). Cela serait principalement dû à des conditions météorologiques plus favorables aux feux, les saisons sèches et chaudes devenant plus longues dans beaucoup de régions du globe, et dans une moindre mesure l'augmentation de la fréquence des éclairs favorisant leur départ (Huang et al., 2015; Krause et al., 2014). Cela pourrait conduire à une prédominance des conditions climatiques sur l'évolution mondiale des feux de biomasse, surpassant l'actuelle influence anthropique (Pechony and Shindell, 2010).

### 1.3.2 Détection et inventaires d'émissions : état de l'art

#### 1.3.2.1 Localisation et facteurs d'émissions

Afin d'étudier les émissions de feux de biomasse et leur impact sur la composition chimique de l'atmosphère, il est nécessaire de les représenter de la manière la plus fiable possible, ce qui se fait au moyen d'inventaires d'émissions. Pour construire ces derniers, on cherche donc à connaître différents paramètres :

- La localisation des feux.
- La quantité et le type de biomasse brûlée.
- La quantité de chaque espèce chimique émise par unité de biomasse brûlée, que l'on appelle aussi facteur d'émission.

Pour ce qui est de la localisation des feux, la nature relativement imprévisible du phénomène rend des approches déclaratives ou climatologiques assez inefficaces. L'utilisation d'observations satellitaires est alors quasi systématique. L'estimation de la quantité de combustible brûlé peut se faire selon deux approches distinctes. La première approche, dite *bottom-up*, se base sur le calcul de la superficie brûlée, et est utilisée dans les inventaires globaux GFED (*Global Fire Emissions Database*, van der Werf et al., 2017), FINN (*Fire INventory from NCAR*, Wiedinmyer et al., 2011) et APIFLAME (*Analysis and Prediction of the Impact of Fires on Air quality ModEling*, Turquety et al., 2014). L'approche *top-down* se base sur l'observation de la puissance radiative des feux (ou FRP pour *Fire Radiative Power*), et est utilisée dans les inventaires GFAS (*Global Fire Assimilation System*, Kaiser et al., 2012), QFED (*Quick Fire Emissions Dataset*, Koster et al., 2015) et FEER (*Fire Energetics and Emissions Research*, Ichoku and Ellison, 2014). Quelle que soit l'approche, ces données sont issues de produits satellitaires, le plus souvent de l'instrument MODIS (*MOderate Resolution Imaging Spectrometer*) à bord des satellites Aqua et Terra. La mesure du FRP se fait à partir de canaux infrarouges tandis que la superficie brûlée s'estime à partir de variations de la réflectance des surfaces continentales. Cela permet d'estimer la quantité et le type de biomasse en connaissant le type de biome (i.e.

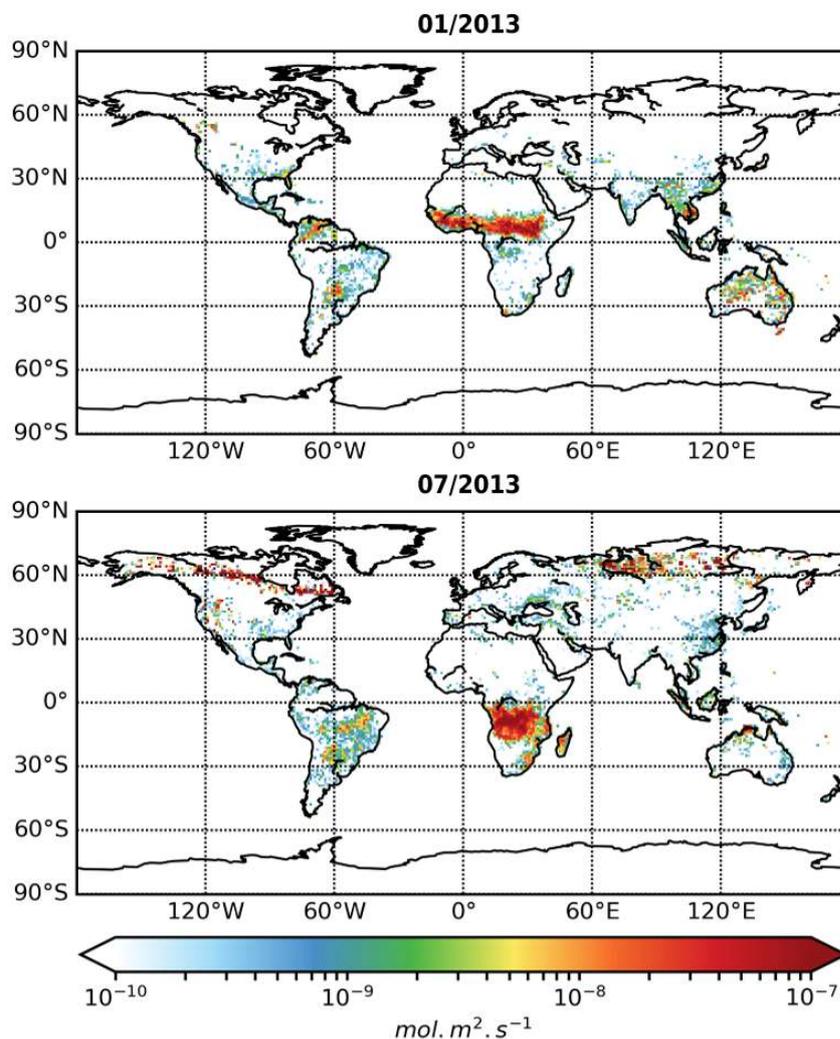
savane, prairies, forêts...) à l'endroit du feu. Les facteurs d'émissions sont calculés à partir de mesures in-situ ou en laboratoire sur les concentrations d'espèces présentes dans la fumée émise lors de la combustion de différents types de biomasse. Ces facteurs d'émissions sont compilés dans des études (Andreae and Merlet, 2001; Akagi et al., 2011) qui sont ensuite utilisées dans les différents inventaires pour calculer les flux d'émissions pour chaque espèce, permettant la construction d'un inventaire d'émission global.

En prenant pour exemple le CO qui nous intéresse particulièrement dans cette thèse, on peut voir sur la figure 1.13 les émissions mensuelles par les feux de biomasse pour les mois de janvier et de juillet 2013. Au total depuis le début des années 2000, GFAS estime les émissions annuelles de CO à environ  $360 \text{ TgCOyr}^{-1}$ , sachant que les autres estimations sont dans l'intervalle  $350\text{-}600 \text{ TgCOyr}^{-1}$  (van der Werf et al., 2006). Ces écarts dans les estimations sont encore plus grands pour d'autres espèces (par exemple les  $\text{NO}_x$  cités précédemment avec  $4\text{-}24 \text{ TgNyr}^{-1}$ ). Deux sources d'incertitudes sont principalement pointées du doigt : la prise en compte des plus petits feux difficilement détectables à partir d'observations satellitaires (van der Werf et al., 2017), et l'estimation des facteurs d'émission et de leur relation avec les conditions météorologiques environnantes (Andreae, 2019).

### 1.3.2.2 Dynamique d'émission : hauteur de panache

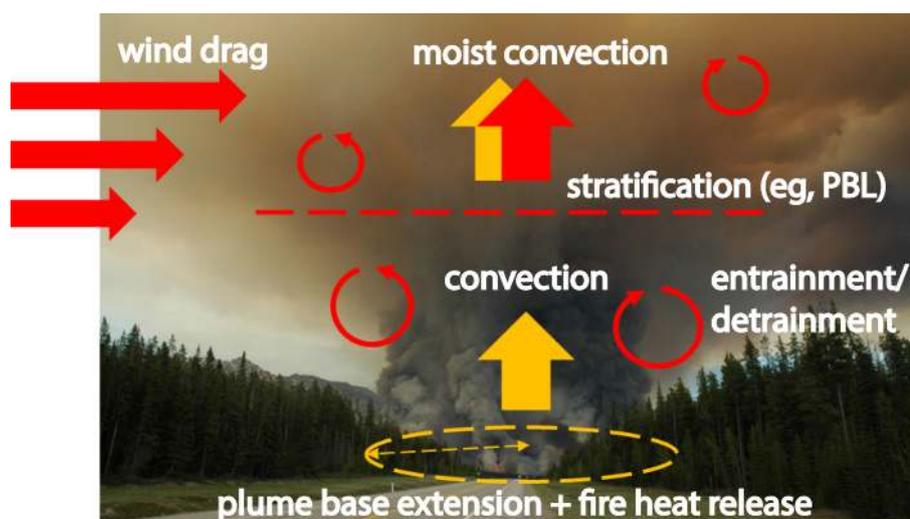
Une dernière particularité à prendre en compte lors de l'étude des émissions de feux de biomasse est leur dynamique. La chaleur intense dégagée lors de la combustion devient une source importante de flottabilité au-dessus du foyer, et de manière analogue à la convection atmosphérique amorce alors un panache ascendant, qui va interagir avec la dynamique locale (voir figure 1.14). Les émissions des feux sont alors en grande majorité prises dans ce panache, et sont entraînées en altitude plutôt que d'être injectées juste à surface. Le plus souvent, la stabilité rencontrée au niveau du sommet de la couche limite atmosphérique met fin à l'ascension du panache (Labonne et al., 2007). Cependant, dans certains cas de feux et avec des conditions atmosphériques favorables, la condensation de la vapeur

### 1.3. LES ÉMISSIONS DE FEUX DE BIOMASSE



**Figure 1.13** – Flux d’émission de CO par les feux de biomasse issu de l’inventaire d’émission GFAS pour les mois de janvier (à gauche) et de juillet (à droite) de l’année 2013, à une résolution globale de  $1^\circ$  par  $1^\circ$ .

d’eau dans le panache renforce son ascendance et il se forme un pyrocumulus (PyroCu), ce qui peut amener le panache dans la troposphère libre. Pour les cas les plus extrêmes, il peut même se former des pyrocumulonimbus (PyroCb), qui peuvent atteindre la haute troposphère, voire même la basse stratosphère (Fromm et al., 2010). Les panaches de feux de biomasse peuvent atteindre des altitudes relativement élevées dans toutes les régions du globe, mais c’est dans les forêts boréales que ce processus devient plus important, car les feux y sont les plus intenses. Val Martin et al. (2018) estiment que dans ces régions l’injection se fait de 15 à 50 % au-dessus de la couche limite atmosphérique.



**Figure 1.14** – Représentation schématique des processus impliqués dans l’ascension des panaches de feux de biomasse, avec en rouge les processus atmosphériques et en jaune ceux induits par le feu. D’après Paugam et al. (2016).

Cette dynamique d’émission particulière conditionne fortement la répartition verticale de beaucoup d’espèces réactives dans la troposphère, et donc du transport intercontinental des émissions de ces espèces par les feux de biomasse. Le besoin d’une représentation réaliste de cette variabilité de hauteur d’injection est donc fort au sein de la communauté scientifique autour de la modélisation de la composition chimique de l’atmosphère. La récente étude de Paugam et al. (2016) passe en revue les différentes approches d’estimation de l’injection des émissions de feux de biomasse. Les premières paramétrisations développées sont principalement statistiques et/ou empiriques, se basant sur des diagnostics de hauteur de couche limite sans prendre en compte les caractéristiques intrinsèques de chaque incendie. Plus récemment, des modèles 1D déterministes ont été mis au point pour résoudre la dynamique d’un panache sur la verticale en fonction des conditions météorologiques environnantes. Les principales méthodes développées sont celles de Freitas et al. (2010) et de Sofiev et al. (2012), qui ont été respectivement utilisées pour apporter des nouveaux produits sur la hauteur d’injection dans les inventaires d’émissions IS4FIRES (*Integrated Monitoring and Modelling System for wildland Fires*) et GFAS. Ces deux méthodes se basent aussi sur l’observation du FRP par MODIS. Dans l’inventaire GFAS, qui sera utilisé dans ces travaux, on dispose de deux paramètres différents : la

### 1.3. LES ÉMISSIONS DE FEUX DE BIOMASSE

---

hauteur moyenne d'injection maximale et la hauteur maximale du panache qui permet de contraindre facilement les émissions dans un modèle atmosphérique. Depuis peu, ils sont d'ailleurs implémentés dans le modèle C-IFS (Rémy et al., 2017), et leur introduction a permis l'amélioration du transport de panaches d'aérosols émis par des feux de biomasse sur le continent Africain.



# Chapitre 2

## Outils et méthode

Ce travail de thèse se base sur deux outils principaux :

- une base de données d’observations in-situ de la composition de l’atmosphère issue de l’Infrastructure de Recherche Européenne IAGOS.
- un modèle numérique tri-dimensionnel de chimie-transport permettant la modélisation globale de la composition de l’atmosphère : MOCAGE.

Les principales caractéristiques de ces deux outils sont présentées successivement dans ce chapitre, ainsi que les traitements ou développements effectués pour l’obtention des résultats.

### 2.1 La base de données IAGOS

#### 2.1.1 Objectifs et origine de l’Infrastructure de Recherche IAGOS

IAGOS (In service Aircraft for a Global Observating System) est une infrastructure de recherche européenne, qui a pour objectif de fournir la plus dense base de données in-situ à haute résolution spatiale et temporelle sur plusieurs décennies pour surveiller l’évolution de la composition atmosphérique impliquée dans le changement climatique et la qualité de l’air. Le but est d’établir, d’opérer et d’exploiter un réseau global d’observation à long

terme des gaz trace réactifs (ozone, monoxyde de carbone, oxydes d'azote), des gaz à effet de serre (vapeur d'eau, dioxyde de carbone, méthane, ozone), des aérosols et particules nuageuses (gouttes d'eau et cristaux de glace). Comparé aux autres types de mesures locales (ballons sondes, campagnes scientifiques...) et aux estimations par satellite de composition de l'air, IAGOS est le seul jeu de données à même de fournir une vaste couverture géographique avec une résolution verticale très fine dans l'UTLS.

L'infrastructure de recherche IAGOS trouve son origine dans le programme de recherche MOZAIC (Measurements of water vapor and OZone by Airbus In-service aircraft). Ce programme est né du besoin de la communauté scientifique d'obtenir des mesures précises de la composition chimique de l'UTLS pour améliorer la validation des modèles de chimie atmosphérique; et d'une demande des constructeurs aéronautiques comme AIRBUS, soucieux d'évaluer l'impact des rejets d'oxydes d'azote et de vapeur d'eau dans l'UTLS. Débutent alors en août 1994 les premiers vols instrumentés d'Airbus A-340 qui mesurent les concentrations en ozone et en vapeur d'eau des masses d'air traversées (Marenco et al., 1998). Au delà de ce premier objectif, ce programme a évolué rapidement vers une mission scientifique de plus grande envergure. Ses objectifs se sont alors élargis pour devenir l'étude sur le long terme de la répartition spatio-temporelle de l'ozone et de ses précurseurs dans la troposphère et la basse stratosphère. C'est à cette fin qu'à partir de 2001, un capteur destiné à la mesure des concentrations en CO rejoint l'instrumentation embarquée à bord des avions. Ces mesures seront opérées de manière continue jusqu'en 2014. À partir de 2008, MOZAIC entre en phase de préparation de l'infrastructure de recherche IAGOS, s'associant au passage avec le programme de recherche CARIBIC (Civil Aircraft for the Regular Investigation of the Atmosphere Based on an Instrument Container). Le programme CARIBIC a un objectif scientifique complémentaire à celui de MOZAIC, en embarquant depuis 1997 un cargo scientifique pour la mesure d'un assez large panel d'espèces chimiques à bord d'un avion de ligne, pour environ 4 vols long-courriers par mois. IAGOS poursuit donc ses objectifs initiaux, avec pour ambitions à la fois d'agrandir la flotte d'appareils instrumentés, ainsi que d'augmenter le nombre

## 2.1. LA BASE DE DONNÉES IAGOS

---

d'espèces mesurées. Début 2020, ce sont 7 avions équipés qui réalisent chaque jour des vols inter-continentaux et enregistrent la concentration en  $O_3$ ,  $CO$ , ainsi que la vapeur d'eau et le nombre de particules nuageuses. A noter que dans la suite de ce manuscrit, les mesures IAGOS-CARIBIC sont référencées en tant que CARIBIC, et les mesures historiques d' $O_3$  et de  $CO$  "historiques" IAGOS-CORE en tant que mesures IAGOS.

### 2.1.2 Instrumentation et description de la base de données

Les instruments de mesure sont regroupés dans un seul et même "package" permettant de limiter leur incidence sur le fonctionnement de l'avion. Des modifications sont tout de même apportées à la carlingue de l'avion pour placer trois entrées d'air pour les sondes d' $O_3$ , de  $CO$  et d'humidité (Fig. 2.1). D'autres packages ont été développés pour des mesures additionnelles d'aérosols ou de gaz à effet de serre ( $CO_2$  et  $CH_4$ ), mais dont les spécificités ne seront pas détaillées ici, aucune mesure n'ayant été réalisées par ces instrument en 2013. Sur le même principe, mais embarquant un cargo entier d'instrument scientifiques, les vols CARIBIC mesurent en plus des espèces évoquées précédemment, le  $NO$  et les oxydes d'azotes( $NO_y$ ) qui seront aussi utilisés pour valider MOCAGE.



**Figure 2.1** – Illustration d'un Airbus A340 équipé des instruments de mesures IAGOS. On voit sur le zoom les modifications apportées à la carlingue pour y installer les prises d'air connectées aux instruments.

La concentration de l'air en  $O_3$  est obtenue grâce à un capteur UV à double colonne

mesurant l'absorption à 253.7 nm de l'air échantillonné, et en le comparant à de l'air sans O<sub>3</sub> (Thouret et al., 1998; Nédélec et al., 2015). Des calibrations sont opérées avant le décollage ainsi que pendant le vol, toutes les 2 heures. L'instrument permettant de mesurer le rapport de mélange de CO, quant à lui, est un capteur infrarouge mesurant l'absorption de l'air échantillonné à 4.67 μm (Nédélec et al., 2003, 2015). Cet appareil nécessite une "mise à zéro" en cours de vol toutes les 20 minutes en mesurant l'absorption d'un air exempt de CO. Pour ce qui est de l'instrument embarqué lors des vols CARIBIC pour mesurer les concentrations en NO et en NO<sub>y</sub>, c'est un détecteur à chimiluminescence qui se base sur l'émission de lumière lors de la réaction entre NO et O<sub>3</sub>. Une description plus complète des mesures de ces composés par les vols CARIBIC est donnée dans l'étude de Stratmann et al. (2016). Des capteurs mesurent aussi la température et la pression de l'air afin de pouvoir calculer les rapports de mélange de chacune des espèces. Les caractéristiques principales des instruments de mesures sont présentées dans le tableau 2.1.

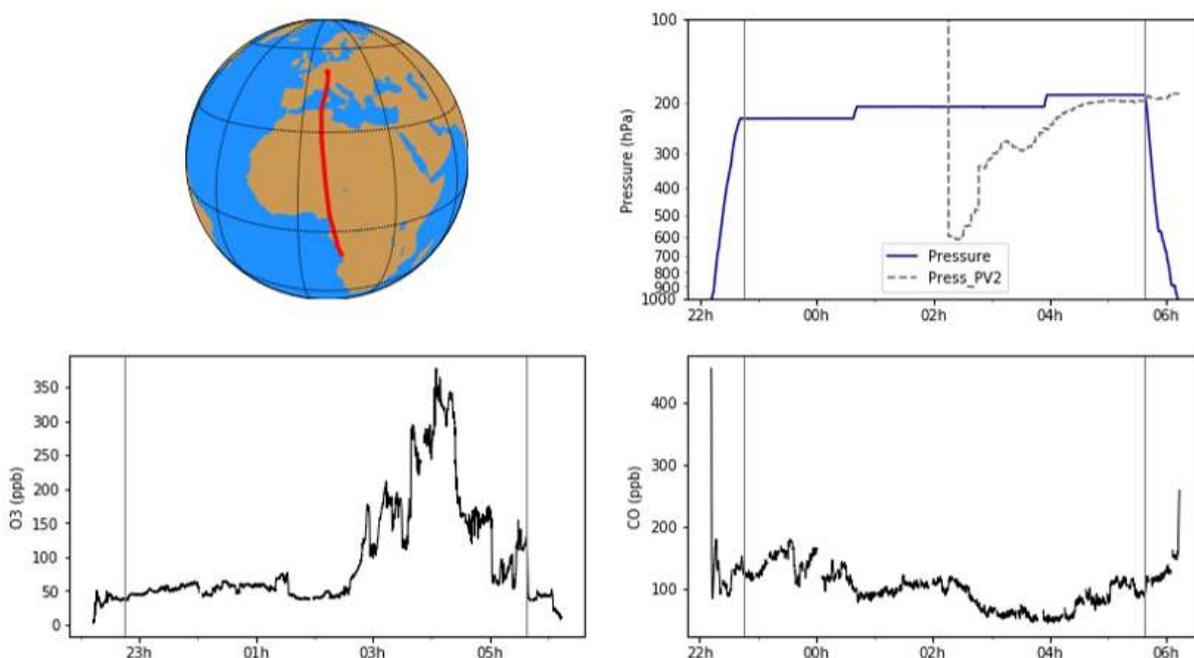
	IAGOS		CARIBIC	
	O <sub>3</sub>	CO	NO	NO <sub>y</sub>
Temps de réponse	4 s	30 s	120 s	120 s
Erreur bruit instrumental	±2 %	±5 %	±5 %	±5 %
Erreur calibration	±2 ppb	±5 ppb	±25 ppt	±70 ppt
Limite de détection	2 pbb	10 ppb	7 ppt	8 ppt

**Tableau 2.1** – Principales caractéristiques des instruments IAGOS mesurant l'O<sub>3</sub> et le CO, et CARIBIC pour le NO et les NO<sub>y</sub>.

Les données sont acquises de manière simultanée pour tous les instruments IAGOS toutes les 4 secondes, soit environ tous les 1 km pour un avion de ligne à une vitesse de croisière de 250 m s<sup>-1</sup>. Lors des phases ascendante et descendante, la résolution verticale approximative est alors de 50 m. Pour les vols CARIBIC, l'acquisition des mesures se fait toutes les 10 secondes. La totalité des données acquises lors du vol est transférée après l'atterrissage, pour validation puis correction après calibration des appareils tous les 6 mois. Les données validées sont disponibles dans les trois jours, mais ce sont les données

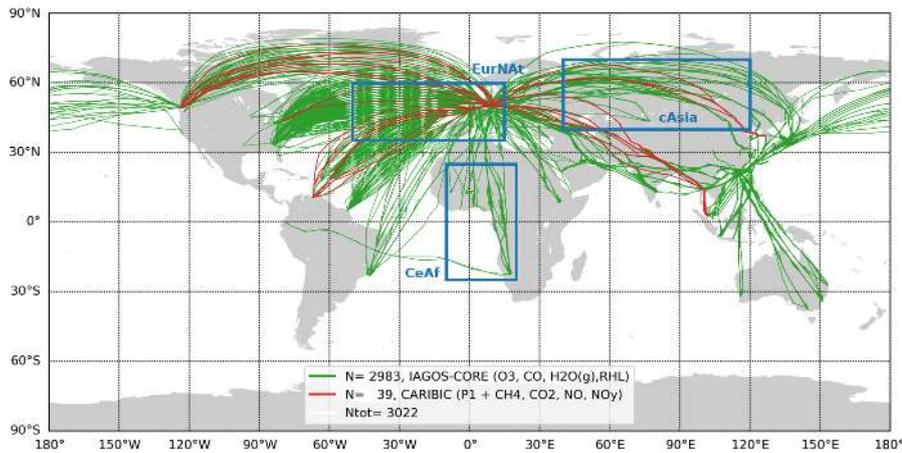
## 2.1. LA BASE DE DONNÉES IAGOS

finales après calibration qui sont utilisées dans cette étude. Ces données sont complétées avec des champs météorologiques issus des analyses opérationnelles de l'ECMWF (European Center for Mesoscale Weather Forecast), telle que les différents champs de vent, le géopotential ou encore la pression de certains niveaux de géopotential permettant de situer l'avion par rapport à la tropopause dynamique. Toutes ces données sont disponibles sur le portail des données IAGOS en ligne (doi:10.25326/20, <http://www.iagos-data.fr/>). Un exemple des mesures et données rendues disponibles lors d'un vol IAGOS est visible sur la figure 2.2, avec des mesures à la fois d'O<sub>3</sub> et de CO.



**Figure 2.2** – Exemple de données acquises lors du vol instrumenté IAGOS du 04/01/2013 de Luanda (Angola) à Francfort (Allemagne). En haut à gauche, la trajectoire de l'avion. En haut à droite, l'évolution de la pression le long du vol, accompagnée de l'estimation de la pression de l'iso-ligne de 2PVU. En bas, l'évolution des rapports de mélange d'O<sub>3</sub> (à gauche) et de CO (à droite), en ppb. Les lignes verticales grises marquent les phases d'ascension et de descente de l'avion.

Au début de ces travaux de thèse, l'année la plus récente comportant un maximum de vols disponibles validés après calibration était 2013, et c'est donc cette année qui a été choisie comme année de référence pour les analyses à suivre. Au total ce sont 3022 vols instrumentés IAGOS qui ont eu lieu en 2013 (2247 avec des mesures de CO et 1618 avec des mesures d'O<sub>3</sub>), dont on peut voir les trajectoires sur la figure 2.3.



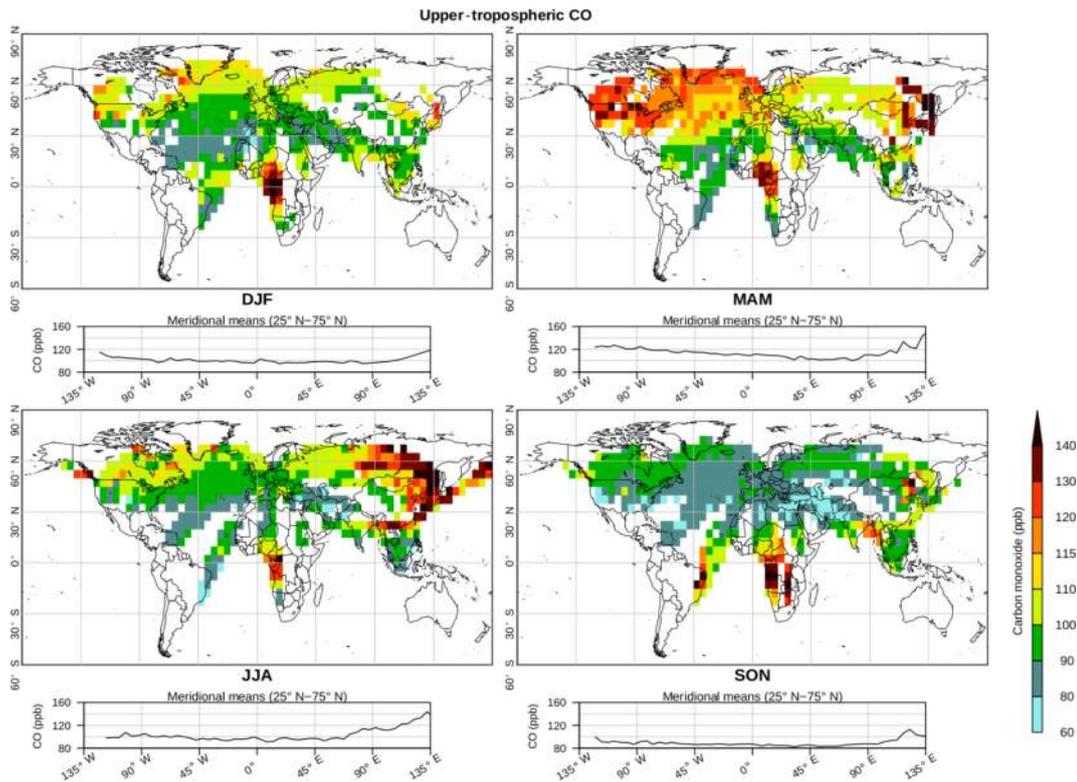
**Figure 2.3** – Carte des trajectoires de l’intégralité des vols instrumentés IAGOS sur l’année 2013. Les zones géographiques délimitées en bleu sont présentées ici car utilisées dans la suite de la thèse.

### 2.1.3 L’utilisation des données IAGOS dans les sciences de l’atmosphère

La base de données IAGOS est un outil très polyvalent pour la recherche dans les sciences de l’atmosphère, étant pertinent pour différent types d’études. Tout d’abord, l’objectif primaire du programme à sa création : l’établissement de climatologie et tendances dans l’UTLS. Les premiers travaux sur l’ozone ayant été détaillés dans l’étude de Thouret et al. (2006), mettant en avant pour la première fois avec des mesures in-situ une tendance positive des rapports de mélange d’ozone à la fois dans l’UT et la LS aux moyennes latitudes de l’hémisphère nord. Ces travaux ont été complétés récemment dans l’étude de Cohen et al. (2018), qui a appliqué la même méthode pour l’ozone mais aussi le monoxyde de carbone en disposant d’une plus longue série temporelle et d’une couverture géographique plus importante. Il y est montré une tendance négative du CO d’environ  $-1 \text{ ppb yr}^{-1}$  dans l’UTLS et une tendance positive d’ozone de  $0.35 \text{ ppb yr}^{-1}$  dans l’UT uniquement. La climatologie de CO dans la haute troposphère réalisée lors de ces travaux est présentée dans la figure 2.4. Des études similaires ont aussi été réalisées sur la vapeur d’eau (Petzold et al., 2017) et la température de l’air (Berkes et al., 2017) dans l’UTLS.

Une deuxième utilisation des données IAGOS est la validation à la fois de simulations

## 2.1. LA BASE DE DONNÉES IAGOS



**Figure 2.4** – Climatologies saisonnières du CO dans la haute troposphère d’après la base de donnée IAGOS de 2001 à 2013. D’après Cohen et al. (2018).

de modèles numériques ou bien d’observations satellites de la composition chimique de la troposphère et/ou de l’UTLS. C’est le cas par exemple de CAMS\* (Copernicus Atmosphere Monitoring Service) qui utilise les profils verticaux issus des phases ascendante et descendante des vols IAGOS pour évaluer ses prévisions opérationnelles. D’autres validations ont été réalisées dans l’UTLS, comme celles de Inness et al. (2013) puis Gaudel et al. (2015) qui utilisent les mesures IAGOS pour valider la capacité de la réanalyse MACC (Monitoring Atmospheric Composition and Climate) à reproduire les concentrations en CO et en  $O_3$  à cette altitude. D’autres études ont aussi utilisé la base de données pour valider un modèle mis en œuvre pour une étude de processus. C’est le cas de l’étude de Duncan et al. (2007), qui valide les concentrations dans l’UTLS de CO du CTM Combo avant d’étudier le transport de pollution de feux de biomasse jusqu’à la tropopause par la convection profonde, montrant l’impact de l’ENSO sur la variabilité inter-annuelle de leur impact.

\*. <https://atmosphere.copernicus.eu/>

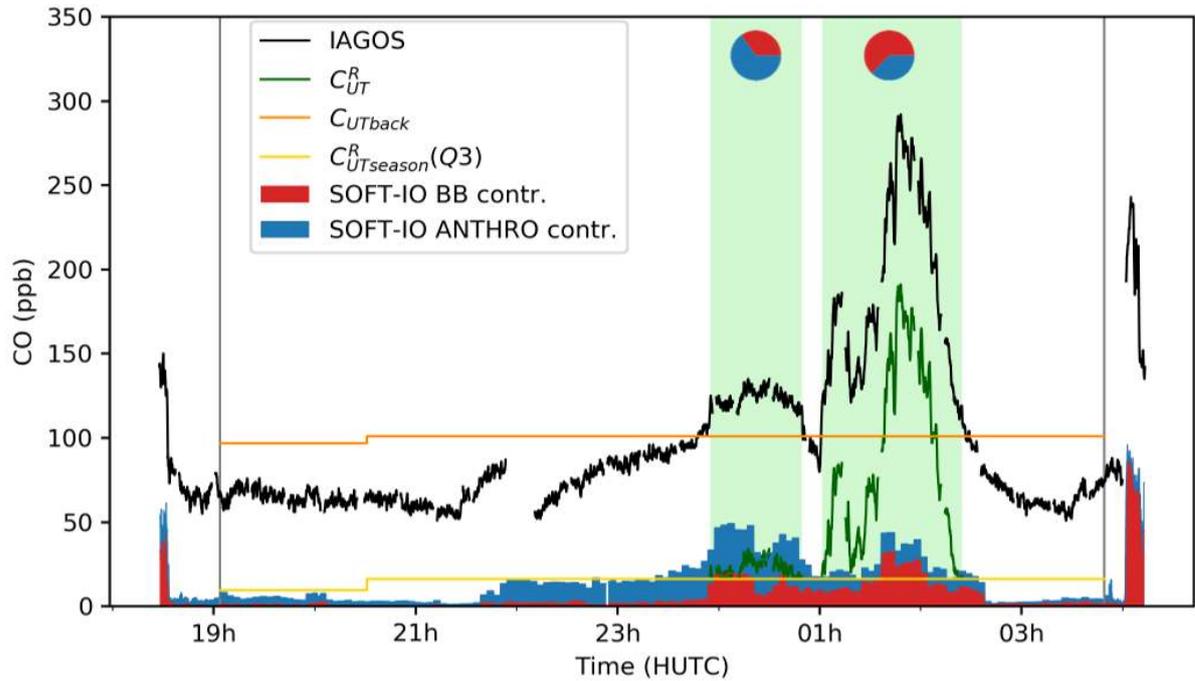
Enfin, les données IAGOS sont aussi utiles pour des études de processus impactant la composition de l'UTLS. Par exemple, les principaux processus impactant la concentration en vapeur d'eau dans l'UTLS ont été mis en avant dans l'étude de Zahn et al. (2014). Les mesures de  $\text{NO}_y$  ont permis d'étudier l'impact des émissions de  $\text{NO}_x$  par les éclairs sur la formation de panaches de  $\text{NO}_y$  et sur la production d'ozone dans l'UT (Gressent et al., 2014). En relation avec les présents travaux de thèse, l'étude de Ding et al. (2015) a pu montrer l'importance de la convection profonde dans le transport du CO émis par des feux de biomasse ou des sources anthropiques au dessus de l'Asie de l'Est.

Dans ces travaux de thèse les données IAGOS sont utilisées pour valider le modèle MOCAGE de manière générale dans l'UTLS, mais aussi en ciblant des vols IAGOS dans lesquels des panaches issu de feux de biomasse sont traversés.

#### 2.1.4 Identification de sources : l'apport des données SOFT-IO

Si les avantages d'une base de données d'observation telle que IAGOS sont sa densité ainsi que son étendue temporelle, un inconvénient est l'échantillonnage "à l'aveugle" fait par les avions de ligne, là où une campagne de mesures aéroportée peut cibler des masses d'air spécifiques en fonction des processus à l'étude. Afin de pouvoir améliorer les études de processus tout en essayant d'utiliser au mieux la base de donnée IAGOS, la nécessité de connaître l'origine des masses d'air échantillonnées est apparue. C'est pour répondre à ce besoin que l'outil SOFT-IO (Sauvage et al., 2017) a été développé, afin de mettre à disposition des utilisateurs des produits à valeur ajoutée permettant l'identification des sources pour les anomalies de CO mesurées lors de vols IAGOS dans la haute troposphère (en dessous de l'iso-surface 2 pvu). La méthode générale (résumée sur la figure 2.5) est la suivante :

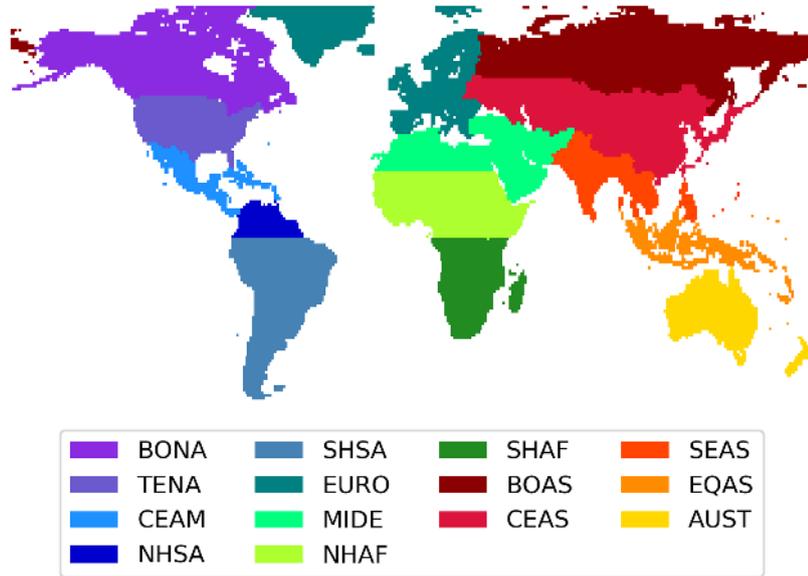
- Des rétro-trajectoires sont calculées grâce au modèle lagrangien de transport et de diffusion FLEXPART (FLEXible PARTicle dispersion model, Stohl et al., 2005) à partir de la trajectoire des vols IAGOS. Ces rétro-trajectoires sont calculées sur 20 jours, en utilisant les champs météorologiques issus des analyses opérationnelles de



**Figure 2.5** – Exemple de la méthode de d’identification de sources pour des panaches de CO avec SOFT-IO sur un vol IAGOS du 22/08/2013 de Frankfort à Windhoek. L’avion traverse ici deux panaches de CO, le premier étant attribué à des sources anthropiques, et le deuxième à des feux de biomasse.

l’ECMWF, en prennent en compte en plus de la circulation de grande échelle, les phénomènes de convection et de mélange turbulent. Elles permettent ainsi d’estimer l’origine des masses d’air échantillonnées.

- En couplant ces rétro-trajectoires à des inventaires d’émissions anthropiques et de feux de biomasse, une contribution des émissions récentes sur les concentrations de CO est calculée. Cette contribution est décomposée en différentes composantes en fonction de l’origine anthropique ou de feux de biomasse du CO. Une décomposition additionnelle est effectuée en fonction de l’origine géographique des émissions (14 régions différentes, visibles sur la figure 2.6).
- Les anomalies de CO  $C_{UT}^A$  dans la base de données IAGOS sont calculées comme étant la différence entre le rapport de mélange de CO  $C_{UT}$  mesuré et la valeur médiane saisonnière dans la zone considérée (ou "background")  $C_{UTback}$ . Seules les anomalies supérieures à  $C_{UTseason}^R(Q3)$ , le troisième quartile des rapports de mélange



**Figure 2.6** – Cartes des 14 différentes zones géographiques de GFED utilisées dans SOFT-IO. Adaptée de <http://www.globalfiredata.org/data.html>

de CO dans l'UT, sont retenues.

$$C_{UT}^A = C_{UT} - C_{UTback} \iff C_{UT} > C_{UTseason}(Q3) \quad (2.1)$$

- Enfin, si pour une anomalie de CO donnée, la contribution calculée avec SOFT-IO est en moyenne supérieure à 5 ppb, on peut lui attribuer une source, soit anthropique, soit de feux de biomasse, et une zone géographique d'origine. La valeur en elle-même de la contribution est à interpréter avec précaution de par les nombreux biais pouvant être présents lors de la modélisation, comme par exemple le niveau de fond de CO, qui n'est pas calculé par SOFT-IO.

Les données SOFT-IO ont déjà été utilisées conjointement à la base de données IAGOS pour analyser le rôle des feux de biomasse sur le CO troposphérique en étudiant les profils verticaux à différents cluster d'aéroports (Petetin et al., 2018), c'est à dire sur de petites zones géographiques. Dans cette thèse, les produits SOFT-IO sont utilisés pour développer une méthode permettant d'évaluer à l'échelle globale la modélisation de panaches de feux de biomasse dans MOCAGE.

## 2.2 Le modèle de Chimie Transport MOCAGE

### 2.2.1 Présentation générale et géométrie du modèle

MOCAGE (MODélisation de Chimie Atmosphérique à Grande Échelle) est le Modèle de Chimie-Transport (CTM) tridimensionnel développé au CNRM (Centre National de Recherche Météorologiques). La version utilisée est celle décrite dans les travaux de Guth et al. (2016). MOCAGE permet de modéliser la composition chimique de l'atmosphère de l'échelle régionale à globale grâce à la représentation des différents processus physico-chimiques mis en jeux. De manière simplifiée, on peut résumer ces différents processus en 4 différentes catégories : les émissions, le transport, les transformations chimiques, et les processus de dépôt (représentés schématiquement sur la figure 2.7). Ces processus et la manière dont ils sont représentés dans le modèle sont détaillés dans les parties suivantes de ce chapitre.

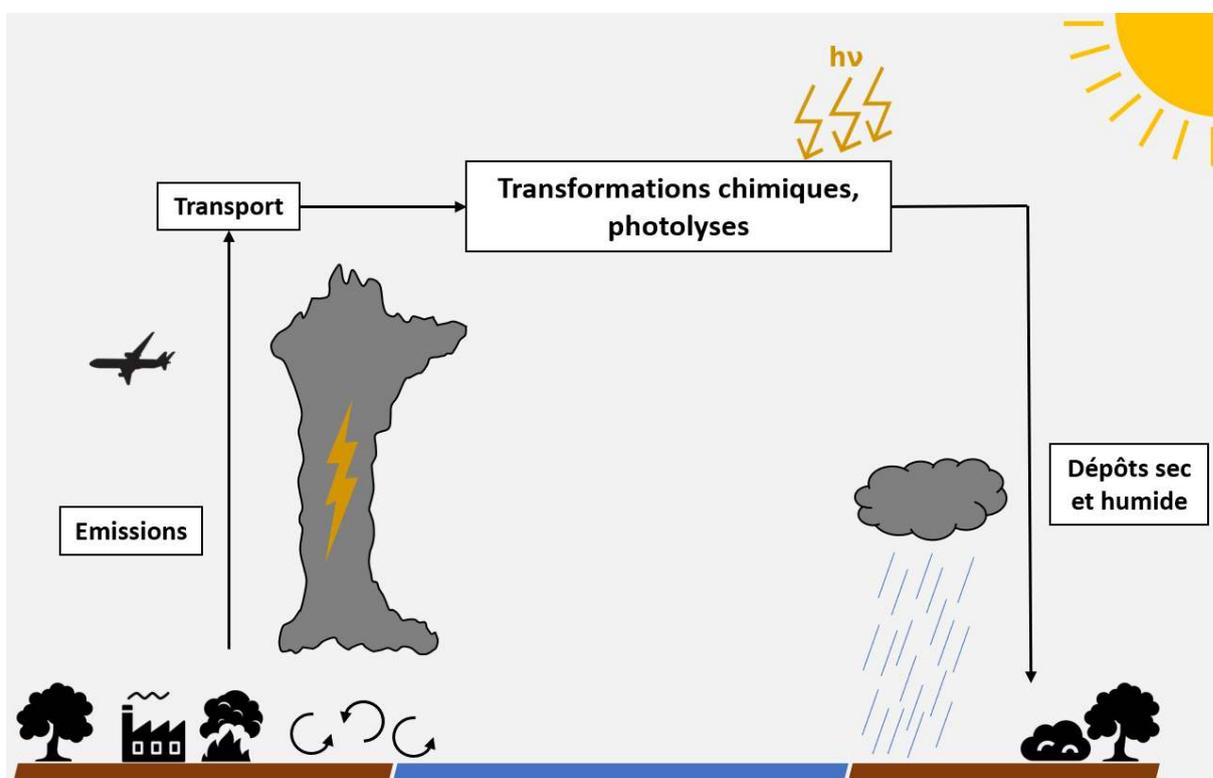


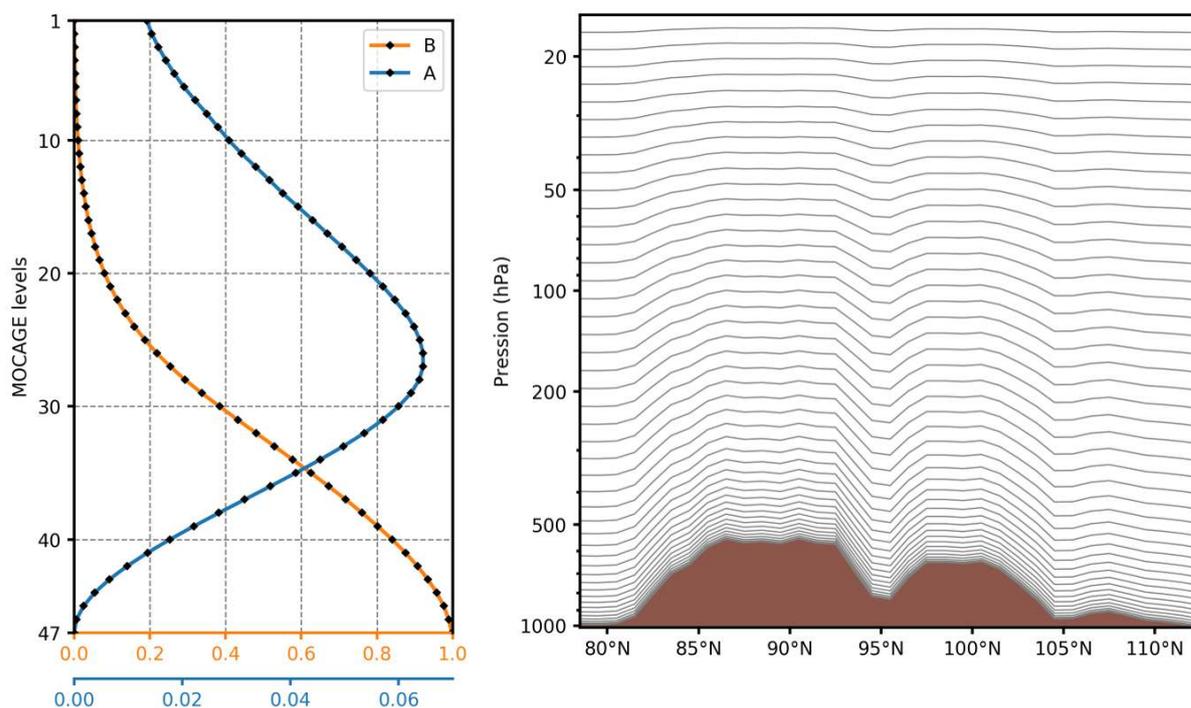
Figure 2.7 – Représentation schématique des différents processus représentés dans le modèle de chimie transport MOCAGE.

Dans ces travaux de thèse, le modèle MOCAGE est utilisé dans sa configuration globale, soit avec une grille régulière de  $1^\circ$  de longitude  $\times$   $1^\circ$  de latitude (soit environ  $110 \text{ km} \times 110 \text{ km}$  à l'équateur et  $80 \text{ km} \times 110 \text{ km}$  aux moyennes latitudes). Le modèle permet la mise en place de domaines imbriqués pour de la modélisation régionale, mais au regard des objectifs de cette thèse, cette fonctionnalité n'est pas utilisée. Concernant la dimension verticale, on utilise une version à 47 niveaux verticaux hybrides  $\sigma$ -pression, allant de la surface à 5 hPa (environ 35 km). Ce type de répartition des niveaux verticaux présente l'avantage de suivre le terrain pour les niveaux proches de la surface tout en retrouvant un comportement isobare à plus haute altitude. La pression de chaque niveau  $P_i$  est calculée de la manière suivante :

$$P_i = A_i P_{ref} + B_i P_s \quad (2.2)$$

Où  $P_s$  est la pression au niveau du sol,  $P_{ref}$  une pression de référence prise à 1013.25 hPa.  $A_i$  et  $B_i$  sont des coefficients présentés sur la figure 2.8, ainsi qu'un exemple de niveaux verticaux hybrides  $\sigma$ -pression. De manière générale sur le globe, cette configuration de niveaux verticaux donne une résolution d'environ 50 m dans la couche limite atmosphérique, 500 m dans la troposphère libre, et 750 m dans la haute troposphère et la stratosphère.

L'exploitation du modèle MOCAGE se fait aussi bien à des visées opérationnelles que pour de la recherche scientifique. En France par exemple, MOCAGE est l'un des deux modèles de la plateforme PREV'AIR en charge de la prévision de la qualité de l'air sur le territoire (Rouil et al., 2009). A l'échelle européenne, c'est CAMS (Copernicus Atmosphere Monitoring Service) qui coordonne les efforts de prévision opérationnelle de la composition de l'atmosphère, et dans lequel MOCAGE participe avec 8 autres modèles (Marécal et al., 2015). Parmi les études réalisées avec MOCAGE, on peut en citer quelques unes en rapport avec les présents travaux de thèse. En tant que modèle participant à l'exercice CCMI (Chemistry and Climate Modelling Initiative), MOCAGE a été utilisé dans des études détaillées sur l'impact du changement climatique sur la composition chimique de la troposphère et de la stratosphère (Morgenstern et al., 2017), mais aussi du transport dans la troposphère (Orbe et al., 2017). Concernant les précurseurs de l'ozone,



**Figure 2.8** – Profils verticaux des coefficients  $A_i$  et  $B_i$  utilisés dans l'équation 2.2 pour calculer la pression des niveaux verticaux de MOCAGE (à gauche). Exemple de coupe longitudinale des niveaux hybrides  $\sigma$ -pression de MOCAGE au dessus de l'Himalaya, à 29°N de latitude (à droite).

Bousserez et al. (2007) ont évalué leur transport intercontinental entre l'Amérique du Nord et l'Europe pendant l'été 2004. Dans l'étude de Brocchi et al. (2017), une simulation globale de MOCAGE a été utilisée pour reconstituer le transport d'un panache de feu de biomasse venant des forêts boréales d'Asie du nord, ayant été observés au dessus de la mer Méditerranée.

### 2.2.2 Schéma chimique et solveur

La chimie des espèces en phase gazeuse dans MOCAGE est traitée avec le schéma RACMOBUS, qui est en fait la résultante de la fusion d'un schéma de chimie troposphérique RACM (Regional Atmospheric Chemistry Mechanism, Stockwell et al., 1997) et d'un schéma de chimie stratosphérique REPROBUS (REactive Processes Ruling the Ozone BUdget in the Stratosphe, Lefèvre et al., 1994), dont les spécificités sont détaillées ci-dessous. MOCAGE permet aussi la modélisation des aérosols à la fois primaires et se-

conclaves, mais n'étant pas étudiés dans les présents travaux, leur représentation dans le modèle n'est pas discutée.

**Le schéma de chimie troposphérique RACM** : Décrit en détail dans l'étude de Stockwell et al. (1997), il est basé sur la version 2 du schéma RADM (Regional Acid Deposition Model, Stockwell et al., 1990), à laquelle est apportée une révision des constantes de réactions et l'amélioration de la chimie des espèces azotées, et notamment du PAN. RACM a été créé dans le but de pouvoir modéliser la composition de la troposphère, allant des régimes chimiques pollués dans la couche limite atmosphérique aux régimes chimiques de la haute troposphère. Au total, il inclut la représentation de 77 espèces chimiques, 237 réactions dont 23 réactions de photolyse. Pour des soucis d'économie de temps de calcul, certaines espèces du schéma sont en fait des regroupements de plusieurs composés chimiques d'une même famille d'espèces. C'est notamment le cas pour certaines familles de composés organiques qui présentent une grande diversité d'espèces.

**Le schéma de chimie stratosphérique REPROBUS** : Utilisé pour la première fois dans l'étude de Lefèvre et al. (1994), ce schéma a été conçu pour modéliser la composition chimique de la stratosphère à l'échelle globale. Les enjeux en sont la bonne représentation de la couche d'ozone, ainsi que sa destruction aux pôles en hiver. Les mécanismes clés représentés sont donc le cycle de production de Chapman, les différents cycle catalytiques de destruction de l'ozone, et les réactions hétérogènes à la surface des nuages stratosphériques polaires à l'origine de la destruction de l'ozone. Il comporte au total 41 espèces, 72 réactions en phase gazeuse, 23 réactions de photolyse, et 7 réactions hétérogènes.

La fusion de ces deux schémas résulte en un total de 112 espèces ou familles d'espèces représentées, ainsi que 434 réactions chimiques. Afin de compléter le cycle chimique de l'azote, deux réactions de photolyse ont été ajoutées dans RACMOBUS afin de prendre en compte la photolyse du PAN, portant le total de réactions de photolyse prises en compte dans MOCAGE à 57. Les constantes de réaction sont mises à jour suivant les

préconisations du JPL (Jet Propulsion Laboratory) et de l'IUPAC (International Union of Pure and Applied Chemistry). Le calcul des taux de photolyse est effectué hors-ligne avec le modèle TUV (Tropospheric Ultraviolet and Visible radiation model, Madronich, 1987) version 5.3.1. Ces taux de photolyse sont tabulés en fonction de l'albédo de surface, l'altitude considérée, l'angle zénithal et la colonne d'ozone au dessus du point considéré, et sont ensuite utilisés dans MOCAGE avec une correction apportée en ligne par rapport à la couverture nuageuse selon Brasseur et al. (1998).

Le schéma RACMOBUS permet donc de calculer les taux de production chimique  $Q_{prod}$  et de destruction chimique  $Q_{loss}$  associés à chaque espèce du modèle. L'équation de variation temporelle chimique du rapport de mélange  $C$  d'une espèce est alors :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = Q_{prod} - Q_{loss} \quad (2.3)$$

Un solveur semi-implicite est ensuite utilisé pour résoudre le système d'équations différentielles ainsi établi, permettant de calculer le rapport de mélange de chaque espèce à partir d'un instant  $t$ , avec un pas de temps  $\Delta t$  :

$$c^{t+\Delta t} = c^t + \Delta t(Q_{prod}^t - Q_{loss}^{t+\Delta t}) \quad (2.4)$$

Le pas de temps  $\Delta t$  du solveur évolue avec l'altitude, d'une vingtaine de secondes à la surface jusqu'à 15 minutes dans la stratosphère.

### 2.2.3 Schémas de transport et de dépôt

MOCAGE est un CTM *offline*, c'est à dire que l'évolution météorologique de l'atmosphère n'y est pas résolue, et donc que le modèle nécessite un forçage dynamique issu d'autres modèles numériques (modèles météorologique ou climatique). Le transport des espèces est alors calculé grâce à différents schémas numériques représentant les différents processus mis en jeu. Dans les 3 parties suivantes ces schémas sont explicités, d'abord concernant le transport de grande échelle par la circulation atmosphérique, puis les phé-

nomènes dits "sous-maille" que sont la convection et la diffusion.

### 2.2.3.1 Transport de grande échelle

Le transport dit de grande échelle par la circulation atmosphérique des masses d'air et donc des espèces chimiques qui les composent correspond à résoudre un problème d'advection. En considérant une espèce transportée comme un traceur passif  $\psi$ ; c'est à dire un scalaire conservé pendant le transport et qui ne modifie pas l'écoulement; l'équation de transport s'écrit alors :

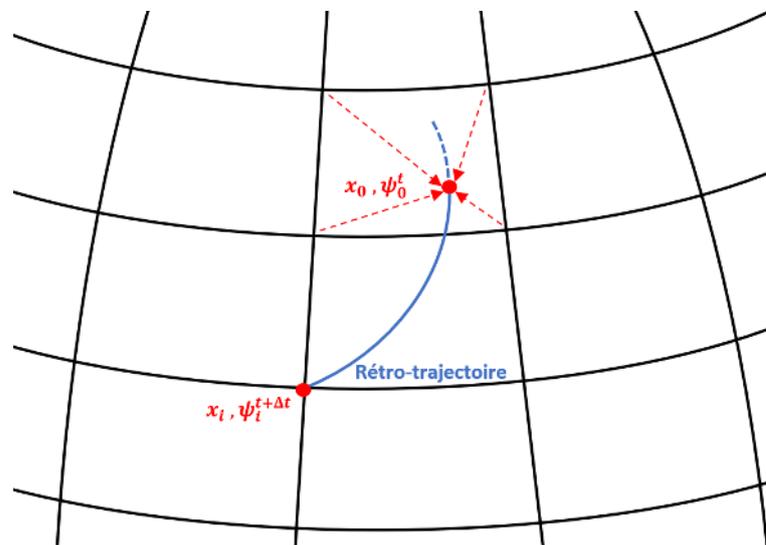
$$\frac{\partial \psi}{\partial t} + \underline{u} \nabla \psi = 0 \quad (2.5)$$

Il existe plusieurs manières de résoudre ce système d'équations, que l'on identifie en fonction de leur point de vue, qualifié de Lagrangien ou Eulérien :

- L'approche Eulérienne revient à discrétiser le domaine d'étude pour ensuite résoudre localement l'équation de variation de quantité du traceur passif en fonction des flux de ce dernier entre cellules voisines. Il existe une variété importante de méthodes permettant la résolution de ce type de problème (différences finies, volumes finis ou encore des méthodes spectrales) mais toutes présentent la limitation majeure du respect du critère CFL (Courant Friedrich Levy). Ce critère spécifie que la distance parcourue par le fluide entre deux pas de temps ne peut être supérieure à la taille caractéristique d'une cellule, impliquant une réduction de celui-ci si l'on affine la résolution du maillage pour éviter une divergence de la méthode.
- L'approche Lagrangienne en revanche revient à suivre l'évolution d'une particule fluide au cours de son déplacement. La résolution du problème revient alors juste aux calculs du déplacement d'une multitude de particules. Même si cette méthode présente l'avantage de ne pas être limitée par une condition de type CFL, elle est tout de même difficile à mettre en place pour des problèmes globaux de par la trop grande quantité de particules à représenter et la non-homogénéité spatiale des

résultats. Cette approche reste tout de même utile pour des modèles de dispersion (par exemple de panaches volcaniques) ou encore de l'identification de source pour des masses d'air spécifiques (voir fonctionnement de SOFT-IO, partie 2.1.4).

Le calcul de l'advection dans MOCAGE se fait en fait avec une méthode hybride dite semi-lagrangienne, basée sur celle de Williamson and Rasch (1989), permettant de cumuler les avantages des deux approches explicitées plus haut. Ce type de schéma revient à calculer le transport au travers de rétro-trajectoires (approche Lagrangienne) en partant de différents points de grilles uniformément répartis (approche Eulérienne). La méthode de calcul pour déterminer l'évolution d'un traceur passif  $\psi_i^t$  en différents points de grille  $x_i$  est la suivante. A un pas de temps  $t + \Delta t$ , la valeur de  $\psi_i^{t+\Delta t}$  est égale à la concentration de traceur  $\psi_0^t$  au point  $x_0$ , localisé sur la rétro-trajectoire partant de  $x_i$  et au temps  $t$ . Comme  $x_0$  n'est a priori pas un point de grille,  $\psi_0^t$  est alors calculé par interpolation du champs  $\psi_i^t$ . Cette méthode est illustrée sur la figure 2.9.



**Figure 2.9** – Schéma de principe de la méthode semi-lagrangienne, permettant d'évaluer  $\psi_i^{t+\Delta t}$  au travers d'un calcul de rétro-trajectoire pour trouver  $\psi_0^t$ .

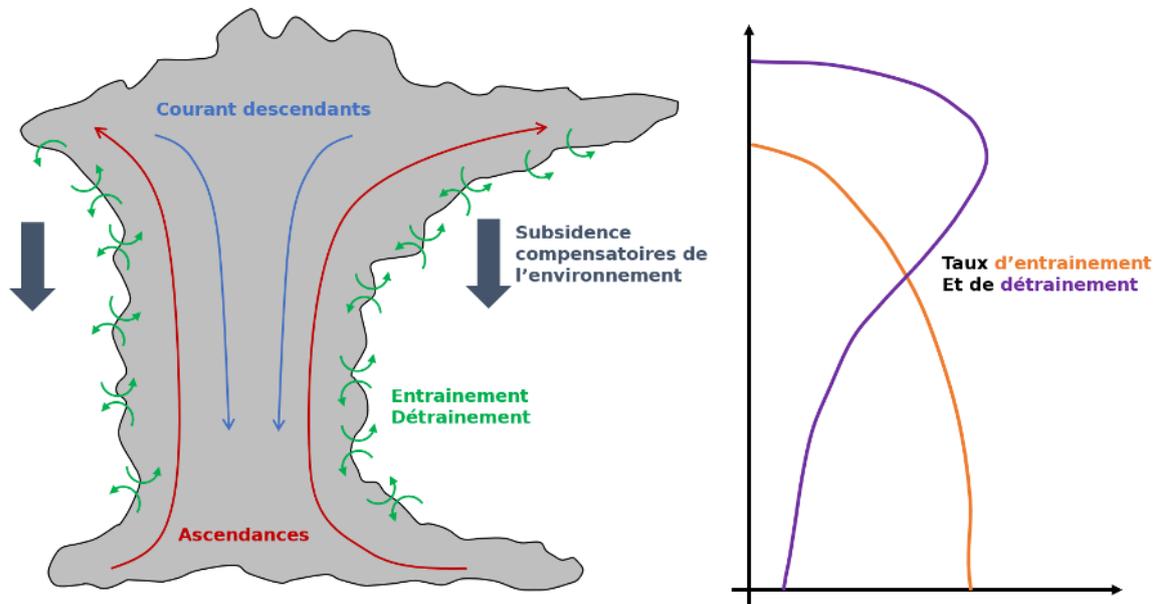
Ce schéma présente les avantages à la fois de l'approche Lagrangienne et de l'approche Eulérienne. Il ne nécessite pas le respect de la condition CFL, et permet d'adopter un pas de temps long indépendamment de la résolution choisie. Les résultats sont, comme pour

l'approche Eulérienne, répartis uniformément sur une grille choisie, facilitant leur analyse. De plus, le coût en calcul n'augmente pas proportionnellement avec le nombre d'espèces transportées, car les rétro-trajectoires calculées s'appliquent identiquement à toutes les espèces à la fois. Cet avantage se révèle d'une importance primordiale dans un CTM où le nombre d'espèces représentées dépasse la centaine. En revanche, ce type de méthode présente tout de même un inconvénient : elle est non-conservative. A cause de l'interpolation nécessaire à la connaissance des concentrations le long des rétro-trajectoires, la conservation stricte de chaque espèce sur le domaine ne peut être assurée sans une correction. L'erreur due à cette non-conservation est d'autant plus grande que l'interpolation réalisée est grossière (linéaire par exemple), et c'est pourquoi dans MOCAGE l'interpolation est tri-cubique, limitant au maximum ce type d'erreur. Une correction simple est néanmoins apportée pour garantir la conservation de la matière.

### 2.2.3.2 Transport par la convection

Le phénomène de convection est causé par des instabilités de l'atmosphère et dont la manifestation première sont les cumulonimbus et/ou orages. Le principe général de déclenchement de ce phénomène est le réchauffement des masses d'air par le rayonnement solaire, finissant à terme par augmenter leur flottabilité et entraîner une ascension verticale rapide associée à une descente d'air plus froid. On appelle communément un courant ascendant *updraft* et un courant descendant *downdraft*. A ces deux mouvements verticaux internes aux nuages convectifs, on associe aussi la subsidence de l'environnement du nuage, qui compense le mouvement globalement ascendant à l'intérieur du nuage, schématisés sur la figure 2.10. De plus, sur les bords du nuage, un mélange a lieu entre l'air du nuage et l'air extérieur, causant un apport d'air extérieur dans le nuage (phénomène d'entraînement) et une injection de l'air du nuage dans l'environnement extérieur (phénomène de déentraînement), représentés aussi sur la figure 2.10 ainsi que la variation de leur intensité avec l'altitude.

La convection est un des moyens de transport les plus efficaces sur la verticale, permet-



**Figure 2.10** – Illustration du phénomène de convection et des grandeurs représentées dans le schéma de MOCAGE (à gauche). Profil verticaux schématisés de l'évolution des taux d'entraînement et de déentraînement lors d'un événement convectif (à droite).

tant à des masses d'air à la surface de rejoindre la haute troposphère en quelques dizaines de minutes, participant ainsi au mélange dans la troposphère. Le transport par convection est donc un processus clé à représenter dans un CTM, mais sa taille caractéristique, plus proche du km ou de la dizaine de km, empêche une représentation explicite pour de la modélisation globale. Une paramétrisation sous-maille est donc utilisée, appelée KFB (pour Kain-Frischt-Beschtold) d'après le schéma de Bechtold et al. (2001), dans laquelle le calcul des taux d'entraînement et de déentraînement est fait selon la méthode de Kain and Fritsch (1989). Son implémentation dans MOCAGE et validation est détaillée dans l'étude de Josse et al. (2004). Ce schéma se base sur les profils verticaux de température lus par le modèle, et distingue les cas de convection profonde et peu profonde. Les facteurs de déclenchement de la convection sont la température potentielle de la parcelle d'air ainsi que sa capacité à former un nuage suffisamment épais (au moins 500 m pour de la convection peu profonde et au moins 3 km pour de la convection profonde). Le déclenchement de la convection est aussi favorisé par une vitesse verticale de grande échelle ascendante  $w > 0$ . Une fois déclenchée, la convection prend place sur la colonne verticale. La ferme-

ture du schéma se fait en supposant que la CAPE (Convective Available Potential Energy) est dissipée lors de l'évènement convectif. L'extension verticale du transport par convection se fera alors de la couche de départ instable jusqu'au niveau de pression où celle-ci est en équilibre avec son environnement. Les flux de transports verticaux ascendant et descendant sont alors donnés par une méthode de calcul des flux de masse, dépendant des vitesses verticales estimées précédemment pour l'*updraft*, le *downdraft*, ainsi que la subsidence compensatoire et les taux d'entraînement et de déentraînement.

### 2.2.3.3 Transport par la diffusion turbulente

La diffusion turbulente est aussi un processus de fine échelle responsable de mélange vertical, principalement dans les basses couches de l'atmosphère. De par sa taille caractéristique et sa complexité, c'est aussi un processus qui nécessite une paramétrisation. Dans MOCAGE, c'est la paramétrisation de Louis (1979) qui est utilisée. C'est un schéma de premier ordre qui se base sur un diagnostic de la stabilité de l'atmosphère pour estimer un coefficient de diffusion  $K$  et donc le transport vertical pour chaque espèce. Cette stabilité est évaluée à partir du nombre de Richardson  $R_i$ , défini de la manière suivante :

$$R_i = \frac{g}{\theta} \frac{\frac{\partial \theta}{\partial z}}{\left| \frac{\partial v}{\partial z} \right|} \quad (2.6)$$

où  $g$  est la constante de gravitation terrestre,  $\theta$  la température potentielle et  $v$  le vent horizontal. L'atmosphère est considérée instable si  $R_i < 0$  et stable sinon. Le transport par diffusion turbulente augmente donc avec l'instabilité de l'atmosphère, dans laquelle le gradient vertical de vent joue un rôle important.

### 2.2.3.4 Processus de dépôt

Le dépôt (ou plutôt les différentes formes qu'il prend) est le principal puits pour les différentes espèces chimiques présentes dans l'atmosphère. On distingue alors le dépôt sec du dépôt humide, le deuxième étant un effet des précipitations. Seul le cas du dépôt des espèces gazeuses est traité dans ce manuscrit, les aérosols n'étant pas étudiés dans les

présents travaux.

### 2.2.3.4.1 Le dépôt humide

Le dépôt humide, aussi appelé lessivage, est l'élimination de l'atmosphère de certains composés chimiques sous l'effet des précipitations. Il peut avoir lieu lors de la formation des gouttelettes à l'intérieur même des nuages et est alors appelé lessivage intra-nuage ou *rainout*, ou bien correspondre à la collecte du composé lors de la chute des gouttes de pluie, et est alors appelé lessivage sous le nuage ou *washout*. Pour ces deux processus, l'efficacité du dépôt humide augmente avec la solubilité de l'espèce chimique considérée. Dans MOCAGE, des paramétrisations sont utilisées pour représenter ces deux cas de dépôt humide. Le *washout* est calculé selon Liu et al. (2001), quel que soit la nature des précipitations. Pour le *rainout*, une distinction est faite en fonction de la nature stratiforme, prise en compte d'après Liu et al. (2001), ou convective des précipitations, pour laquelle la paramétrisation de Mari et al. (2000) est utilisée. On note que les champs de précipitations stratiformes sont issus du modèle forceur alors que les précipitations convectives sont estimées dans le schéma de convection KFB présenté dans la partie 2.2.3.2.

### 2.2.3.4.2 Le dépôt sec

Le dépôt sec, par opposition au dépôt humide, se fait en l'absence de précipitations, et correspond à la captation des espèces chimiques à la surface, que ce soit par de la végétation, le sol ou encore les différentes étendues d'eau. Sa représentation est souvent faite par une approche de flux, avec laquelle une analogie est souvent faite avec le courant électrique. La relation du flux de dépôt est la suivante :

$$F = -v_d C \quad (2.7)$$

$F$  est le flux de dépôt sec pour une espèce donnée, pouvant être comparé à un courant électrique.  $v_d$  est la vitesse de dépôt, assimilable à une conductance électrique, soit l'inverse

de la résistance électrique. Enfin,  $C$  est la concentration dans l'air de l'espèce chimique déposée, comparable au potentiel électrique. La résolution du flux de dépôt sec revient donc à l'estimation de  $v_d$ , qui, toujours dans l'idée de l'analogie avec le courant électrique, est faite par le calcul de l'inverse de la somme de différents termes de résistance. On distingue trois processus de résistance au dépôt sec que sont :

- La résistance aérodynamique ( $R_a$ ) qui est la résistance au transfert vertical dans la couche d'air proche de la surface, et dépend uniquement de grandeurs dynamiques. Elle est estimée selon Slinn and Slinn (1980).
- La résistance de la couche quasi-laminaire ( $R_b$ ), qui correspond à la capacité d'un composé à traverser la couche quasi-laminaire de la surface. Elle dépend aussi de la dynamique de la couche d'air de surface, mais aussi de la diffusion moléculaire liée à l'espèce déposée.
- La résistance de surface ( $R_c$ ) est la résistance d'absorption des différents éléments qui la composent, que ce soit le sol en lui même ou la végétation. Son calcul est fait d'après Wesely (1989). On note que cette résistance est la plus complexe à estimer, dépendant des propriétés du sol, du couvert végétal, mais aussi des conditions météorologiques qui influencent par exemple l'ouverture des stomates des végétaux.

Les vitesses de dépôt sec ne dépendant pas de la concentration des espèces déposées, elle sont pré-calculées en amont de la simulation en utilisant le même forçage météorologique que pour celle-ci, permettant une économie de temps de calcul lors de l'exécution de MOCAGE.

## 2.2.4 Gestion des émissions

Les émissions dans MOCAGE sont soit pré-calculées à partir de cadastres ou bien paramétrisées à l'intérieur du modèle lorsque celles-ci dépendent de la dynamique. Les différents types d'émissions prises en compte sont détaillées dans les prochains paragraphes, en commençant par les émissions de surface, puis celles qui ont lieu directement dans la

troposphère.

### 2.2.4.1 Les émissions de surface

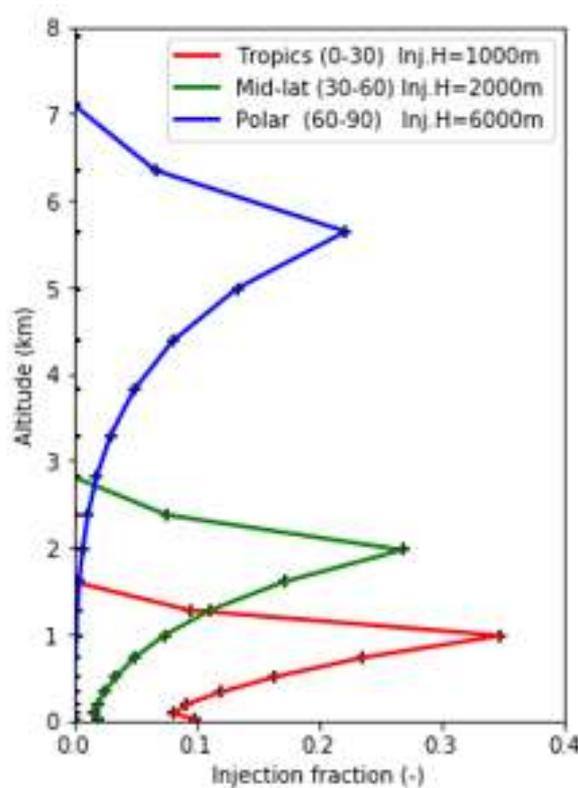
Les émissions de surface sont prises en compte dans MOCAGE principalement sur la base d'inventaires, agrégées par le préprocesseur SUMO (SURface MOdel). Ces inventaires étant assez variés, on ne présente ici que ceux choisis dans la présente étude, qui sont ceux utilisés de manière récurrente pour des études avec MOCAGE. Les émissions dues aux activités humaines, ou émissions anthropiques, sont prises en compte au moyen de l'inventaire d'émissions MACC-City (Lamarque et al., 2010), avec une résolution mensuelle. Un cycle journalier est appliqué aux émissions afin de reproduire la variation des activités humaines avec l'heure de la journée. Les émissions biogéniques, sont aussi préparées avec SUMO, à partir de l'inventaire MEGAN-MACC (Sindelarova et al., 2014), ainsi que l'inventaire GEIA (Yienger and Levy, 1995) pour les émissions de  $\text{NO}_x$ . Là aussi les émissions sont modulées par un cycle diurne car les plantes émettent des composés surtout la journée. Les émissions sont injectées à un pas de temps de 15 minutes, dans les 5 premières couches du modèle avec un profil vertical décroissant, afin de limiter des perturbations trop grandes de la composition à proximité de la surface. Les concentrations de méthane et des espèces détruisant la couche d'ozone (ODS pour *Ozone Depleting Substances*) telles que les CFC sont fixées à la surface.

### 2.2.4.2 Le cas particulier des feux de biomasse

Comme énoncé dans la partie 1.3, les émissions des feux de biomasse sont sujettes au phénomène de pyroconvection, qui peut entraîner rapidement les panaches de fumée dans la troposphère libre, potentiellement jusqu'à la haute troposphère. La complexité de ce phénomène le rendant difficile à représenter explicitement dans MOCAGE, et en l'absence d'estimations de hauteur d'injection, une méthode a été mise en place pour injecter ces émissions en altitude. Les quantités émises sont issues de l'inventaire GFAS (Kaiser et al., 2012), et sont ensuite réparties sur la verticale selon les profils verticaux présentés sur la

figure 2.11. Ces profils sont construits à partir de hauteurs d'injections représentatives de certaines bandes de latitudes, issues de l'étude de Lavoué et al. (2000). Ces hauteurs sont les suivantes :

- 1 km dans les tropiques (30 °S - 30 °N)
- 2 km aux moyennes latitudes (30 °S - 60 °S et 30 °N - 60 °N)
- 6 km aux hautes latitudes (60 °S - 90 °S et 60 °N - 90 °N)



**Figure 2.11** – Profils verticaux d'injections des émissions de feux de biomasse dans MOCAGE selon leur latitude. L'altitude maximale du panache est fixée à 2 niveaux modèle au dessus de la hauteur d'injection.

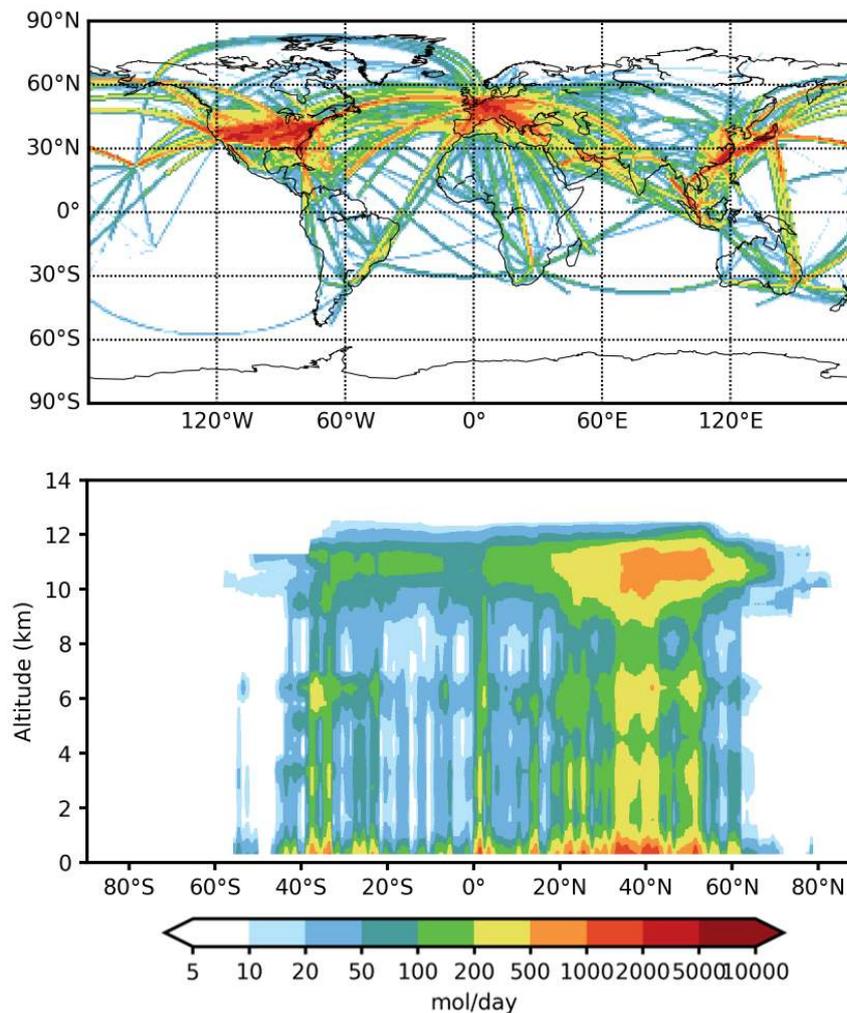
Une amélioration de cette méthode d'injection des émissions des feux de biomasse dans MOCAGE est présentée dans la partie 2.2.5.2, puis validée et discutée dans la partie 4.

### 2.2.4.3 Les émissions d'altitude

Certaines émissions se font directement dans la troposphère de par leur nature, c'est le cas des émissions par l'aviation, et de celles dues aux éclairs. Elles sont toutes les deux des sources importantes de  $\text{NO}_x$ , et donc indispensables à prendre en compte pour une

## 2.2. LE MODÈLE DE CHIMIE TRANSPORT MOCAGE

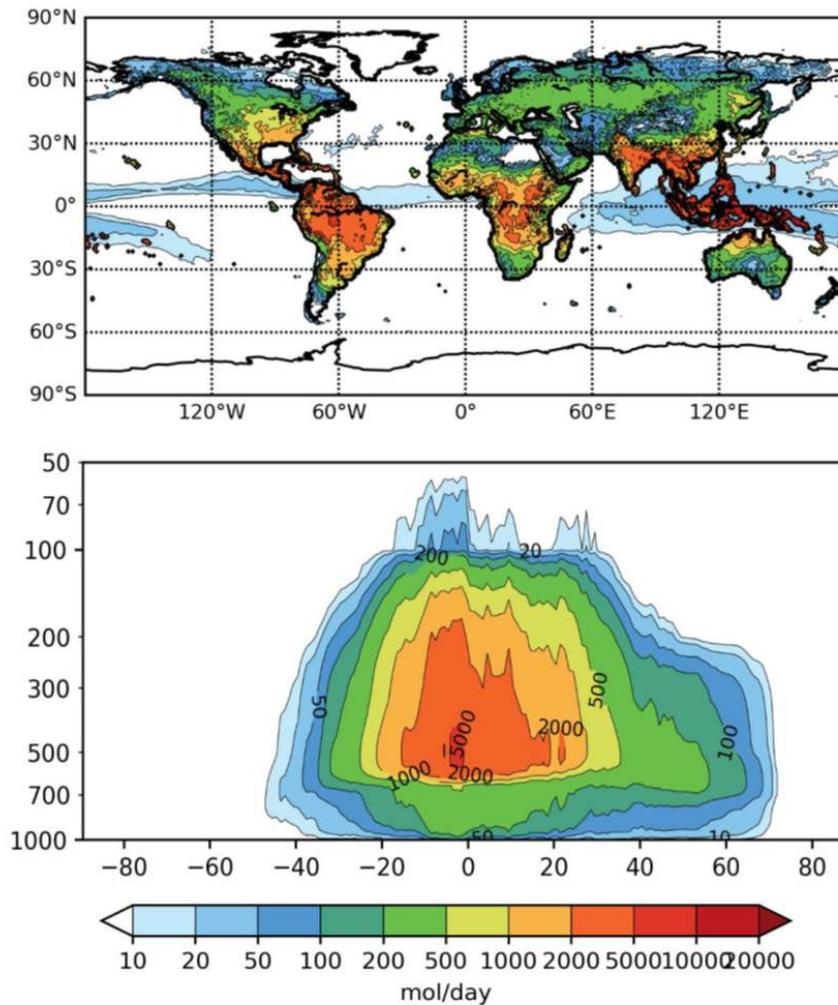
étude sur la composition chimique de la haute troposphère. Pour les avions, les émissions préconisées lors de l'exercice d'ACCMIP (Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project) sont utilisées (Lamarque et al., 2010). L'aviation civile est en effet responsable de l'émission de 1 Tg d'azote environ, dont 60% au dessus de 7 km d'altitude, principalement sous la forme de NO, et dont la répartition globale est présentée sur la figure 2.12.



**Figure 2.12** – Répartition globale (en haut) et moyenne zonale (en bas) des émissions annuelles de NO<sub>x</sub> par le secteur de l'aviation en 2013 selon l'inventaire d'ACCMIP.

La production de NO<sub>x</sub> par les éclairs est paramétrisée à l'intérieur du schéma de convection selon Price et al. (1997). Les émissions de NO<sub>x</sub> sont réparties uniformément sur la verticale, avec une fraction sous le nuage de convection et une fraction dans le

nuage. Comme cette paramétrisation est dépendante du schéma de convection et donc de paramètres comme le modèle forceur ou encore la résolution, une calibration est faite a priori afin de fixer la production totale annuelle de  $\text{NO}_x$  par les éclairs à environ 5 Tg d'azote. La répartition globale ainsi que zonale de cette production est présentée sur la figure 2.13.



**Figure 2.13** – Répartition globale (en haut) et zonale (en bas) des émissions annuelles de  $\text{NO}_x$  par les éclairs en 2013 dans MOCAGE forcé par le modèle de PNT ARPEGE.

## 2.2.5 Développements

A partir de la version de MOCAGE décrite jusqu'ici, des développements ont été réalisés dans le but d'améliorer les performances de ce dernier. Un première série de dé-

veloppements a été effectuée pour aboutir à une meilleure représentation du transport vertical dans la haute troposphère, car il est un facteur déterminant de sa composition, ainsi que des flux entre la troposphère et la stratosphère. Des modifications ont aussi été apportées dans le schéma d'injection des émissions de feux de biomasse, pour amener MOCAGE à l'état de l'art en utilisant les derniers produits rendus disponibles dans certains inventaires d'émissions. Ces deux développements apportés par moi-même dans le code de MOCAGE, sont présentés dans les sections qui suivent.

### 2.2.5.1 Modification des schémas de transport vertical

Afin d'améliorer le comportement de MOCAGE dans la haute troposphère, les schémas de convection et de diffusion turbulente présentés respectivement dans les parties 2.2.3.2 et 2.2.3.3 ont été évalués et ajustés. Le but est de rendre leur impact plus réaliste sur la composition de la haute troposphère. Ces modifications sont présentées dans les deux paragraphes suivants.

**2.2.5.1.1 Convection profonde :** Dans le schéma de convection KFB, au moment de la fermeture, une limite basse est fixée pour la pression que peut atteindre le nuage formé. Cela a pour but de limiter les cas où la convection modélisée pourrait dépasser largement la tropopause de manière trop fréquente et perturber la dynamique de la basse stratosphère. Cette limite (aussi appelée "toit" de la convection) avait été choisie à 120 hPa pour permettre à la convection profonde d'atteindre la tropopause même aux latitudes tropicales. Aux moyennes latitudes en revanche, la convection profonde n'attend a priori jamais une pression de 120 hPa, même en cas d'*overshoot*. Pour rendre cette limite plus réaliste quelle que soit la latitude, une méthode de diagnostic en ligne du "toit" supérieur de la convection a été mise en place. Il s'agit en effet en chaque point de grille du modèle de calculer la hauteur de la tropopause, que l'on considère alors comme la limite haute que peut potentiellement atteindre la convection profonde. D'après les travaux de Pan and Munchak (2011), la tropopause thermique est en fait une bonne approximation de

l'altitude maximale atteinte par les nuages de convection, particulièrement aux moyennes latitudes où les *overshoot* sont assez rares. Suivant les recommandations de Maddox and Mullendore (2018), la définition de la tropopause choisie est celle du gradient thermique, ou *lapse rate tropopause*, telle que définie par l'OMM (Organisation Mondiale de la Météorologie) comme l'altitude la plus basse pour laquelle le gradient thermique vertical  $\Gamma$  devient supérieur à  $-2 \text{ K km}^{-1}$  (World Meteorological Organization, 1957), soit :

$$\Gamma = \frac{\partial T}{\partial z} > -2 \text{ K.km}^{-1} \quad (2.8)$$

Durant la simulation MOCAGE, l'altitude de la tropopause est ainsi calculée avant l'appel au schéma de convection afin de pouvoir limiter l'extension verticale d'un potentiel évènement convectif par rapport à celle-ci. Afin de toujours autoriser de légers *overshoot*, la pression de la tropopause est arrondie à celle du plus proche niveau supérieur de MOCAGE.

**2.2.5.1.2 Diffusion turbulente :** Pour une raison similaire à celle évoquée dans le paragraphe précédent, le schéma de diffusion n'est utilisé dans MOCAGE que pour des pressions supérieures à 100 hPa. Il existe effectivement des phénomènes sources de diffusion turbulente dans l'UTLS (Shapiro, 1980; Sharman et al., 2012), tel que les foliations de tropopause ou encore des interactions dues aux courants jets. Cependant, le modèle de diffusion turbulente de Louis (1979) utilisé dans MOCAGE n'a pas été testé en particulier à cette altitude et pour la résolution de ce type de phénomène, et est suspecté d'induire un mélange trop important dépendant de la résolution choisie. Afin de prendre en compte les phénomènes de diffusion dans l'UTLS, un schéma de turbulence d'un ordre plus important, par exemple de type  $k - \varepsilon$  (Ueda et al., 2011), devrait être mis en place dans MOCAGE. L'implémentation d'un tel schéma dans un modèle de chimie-transport étant encore très peu testée, il a été décidé de simplement limiter l'activation du schéma déjà existant à la couche limite atmosphérique et du bas de la troposphère libre, jusqu'à 600 hPa.

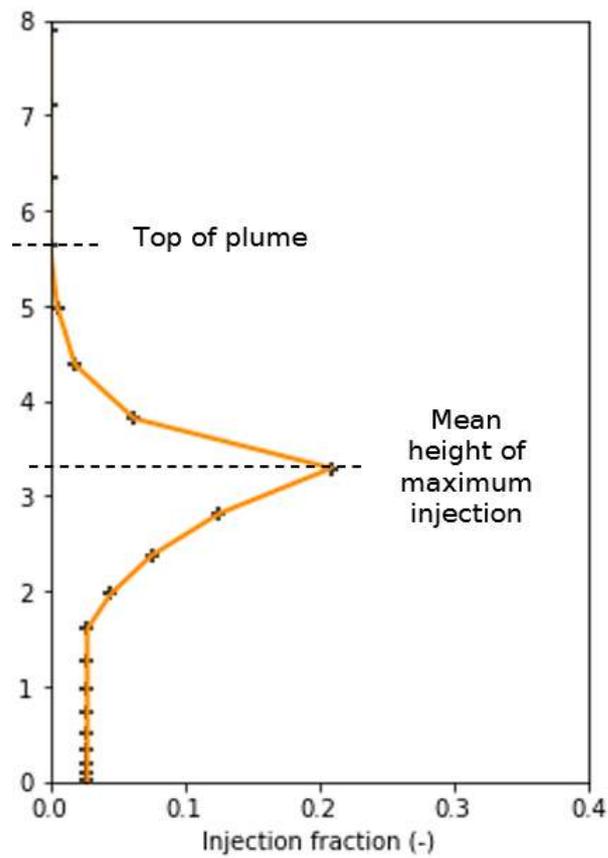
L'influence de ces modifications apportées aux schémas de transports verticaux de MOCAGE dans l'UTLS est testée et discutée dans la partie 3.

### 2.2.5.2 Modification de l'injection des émissions de feux de biomasse.

L'enjeu d'une bonne représentation des émissions de feux de biomasse n'est pas seulement l'estimation des quantités émises de chaque espèce, mais aussi l'extension verticale sur laquelle se font ces émissions. Comme expliqué dans la partie 1.3, des méthodes ont récemment été développées pour estimer les caractéristiques de panaches de feux de biomasse à partir d'observations satellites (Paugam et al., 2016; Val Martin et al., 2018). Ces méthodes ont déjà été testées dans divers modèles de chimie atmosphérique tels que GEOS-Chem (Zhu et al., 2018) ou C-IFS (Rémy et al., 2017). Le schéma d'injection a donc été modifié dans MOCAGE afin de pouvoir prendre en compte deux nouveaux paramètres issus de l'inventaire d'émission GFAS v1.2 :

- L'altitude moyenne du maximum d'injection.
- L'altitude maximale atteinte par le panache.

Ces deux paramètres sont disponibles à la même résolution que les flux d'émissions de chaque espèce, soit  $0.1^\circ \times 0.1^\circ$ . Ils sont alors utilisés pour contraindre le profil vertical d'injection du modèle pour chaque pixel présentant des feux. Comme présenté sur la figure 2.14, on utilise l'altitude moyenne du maximum d'injection à la place de la hauteur climatologique fixée dans le schéma d'injection de base. L'altitude maximale du panache est elle utilisée pour contraindre la partie supérieure du profil d'injection, renseignant sur la forme plus ou moins aplatie de celui-ci. La forme générale du profil de type "parapluie" est conservée par rapport au schéma de base (voir figure 2.11). Ce nouveau développement est validé en détail dans le chapitre 4, puis utilisé à posteriori dans toutes les simulations réalisées pour l'analyse de la composition chimique de la haute troposphère.



**Figure 2.14** – Nouvelle méthode d’injection des émissions de feux de biomasse dans MOCAGE en utilisant les paramètres de panaches de GFAS pour contraindre le profil vertical d’injection.

## Chapitre 3

# Sensibilité de la composition de l'UTLS à la représentation des processus de transports verticaux

En premier lieu dans cette thèse, il est nécessaire de développer une méthode permettant de comparer les résultats de simulations MOCAGE aux mesures avions IAGOS en conservant le maximum d'informations disponibles dans les données. À partir de cette méthode on évalue les simulations MOCAGE et leur représentation de la composition chimique de l'UTLS. L'évaluation portera aussi sur l'impact des modifications apportés aux schémas de transport par diffusion et convection atmosphériques, qui sont déterminants pour la composition de l'UTLS.

### 3.1 Méthode de comparaison entre MOCAGE et IAGOS

On dispose donc d'une base de données de mesures avions à haute résolution spatiale et temporelle que l'on veut comparer à des sorties de simulations numériques. L'enjeu est de former un jeu de données permettant la comparaison entre les observations et le

modèle. Deux approches sont souvent considérées :

- Transformer la base de données d’observation pour la rapprocher de sorties numériques sur une grille prédéfinie. Cette approche est pertinente pour des bases de données denses, et/ou proche de la surface. Cette méthode est aussi efficace pour l’évaluation de simulation longues, et a déjà été testée avec les données IAGOS dans la thèse de Y. Cohen (Cohen, 2018) sur des simulations climatiques.
- Interpoler les sorties du modèle suivant la localisation spatio-temporelle des observations. Cela requiert une résolution assez fine des sorties du modèle, mais permet une évaluation beaucoup plus en détail du modèle par rapport à des processus spécifiques. C’est cette approche qui est couramment utilisée dans la littérature, en particulier lors de campagnes de mesures.

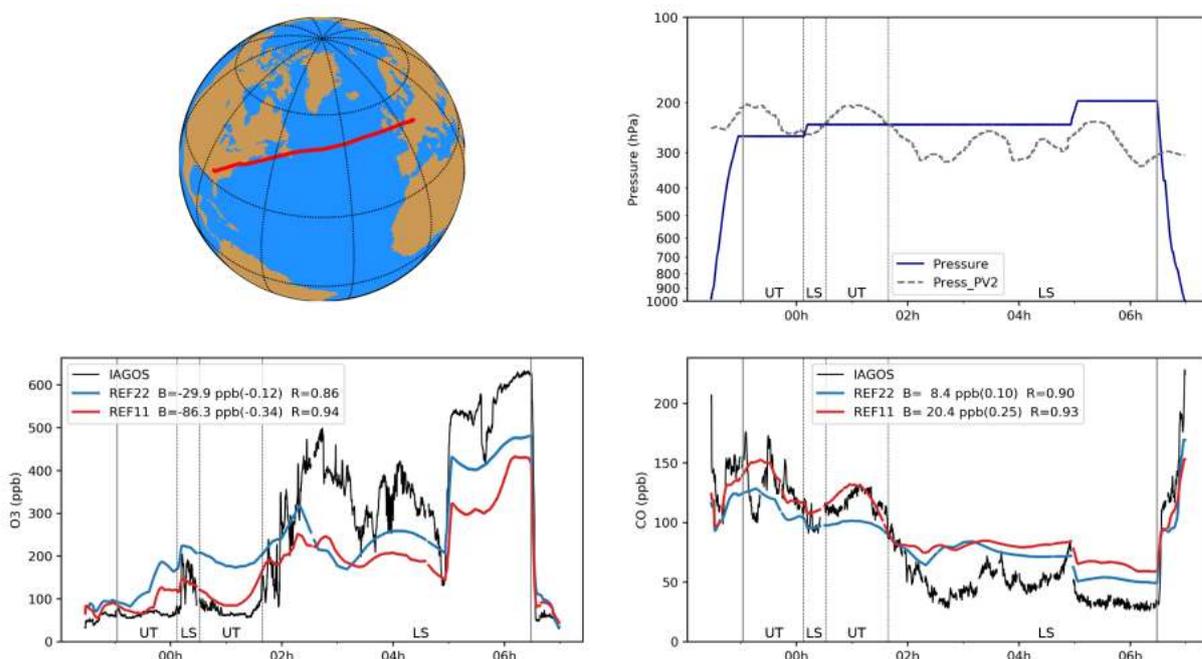
C’est la deuxième option que l’on retient ici, car on veut évaluer la capacité de MOCAGE à représenter une transition de l’UT vers la LS réaliste, mais aussi étudier des panaches de feux de biomasse qui sont d’assez fine échelle. Pour obtenir une interpolation suffisamment précise, on utilise des sorties horaires (la fréquence maximale pour les sorties de MOCAGE), et une version globale du modèle à résolution de  $1^\circ$ . L’interpolation réalisée est bicubique dans l’espace et linéaire dans le temps. On peut alors comparer une ou plusieurs simulations aux mesures IAGOS, que ce soit pour certains vols particuliers, ou alors sur des blocs de données plus gros en sélectionnant les données correspondant à une certaine région du globe, une certaine saison, etc. . .

## 3.2 Évaluation de MOCAGE dans sa version originale

On veut dans notre étude utiliser une résolution horizontale globale relativement fine de  $1^\circ$ . L’utilisation courante de cette configuration de MOCAGE était encore relativement récente au début de la thèse et n’avait jamais été validée dans l’UTLS, à la différence de sa configuration à  $2^\circ$ . Il s’agit donc d’évaluer MOCAGE à  $1^\circ$ , et de comparer ses

### 3.2. ÉVALUATION DE MOCAGE DANS SA VERSION ORIGINALE

résultats à la configuration à  $2^\circ$ , en s’attendant à des résultats au moins aussi bons, une résolution plus fine devant permettre une meilleure représentation des processus. Pour cela, on compare deux simulations, identiques hormis leur résolution, issues du modèle MOCAGE tel que décrit dans le chapitre 2 (sans les autres modifications apportées dans les présents travaux). Le forçage dynamique est fait à partir des sorties du modèle de prévision numérique du temps ARPEGE, et les simulations s’étendent sur l’année 2013, avec 3 mois de *spin-up*. Elles sont référencées par la suite comme les simulations REF22 ( $2^\circ \times 2^\circ$ ) et REF11 ( $1^\circ \times 1^\circ$ ) en rapport à leur résolution respective.



**Figure 3.1** – Exemple de comparaison entre les simulations REF22 et REF11 par rapport au vol IAGOS du 01/04/2013 d’Atlanta (USA) à Francfort (Allemagne). L’organisation des graphiques est identique à la figure 2.2. Les lignes verticales pleines marquent la démarcation entre les phases ascendante et descendante du reste du vol. Les lignes pointillées marquent le passage de la tropopause dynamique par l’avion. Les statistiques sont calculées sur la phase de croisière du vol uniquement.

Pour commencer, le vol IAGOS du 01/04/2013 est utilisé comme exemple pour illustrer la comparaison entre les simulations REF22 et REF11. On peut voir sur la figure 3.1 l’évolution des concentrations en O<sub>3</sub> et en CO telles que mesurées et vues par le modèle le long de la trajectoire de l’avion. Pour les deux espèces, on observe en raffinant la résolution une augmentation de la valeur absolue du biais moyen entre MOCAGE et IAGOS, négatif

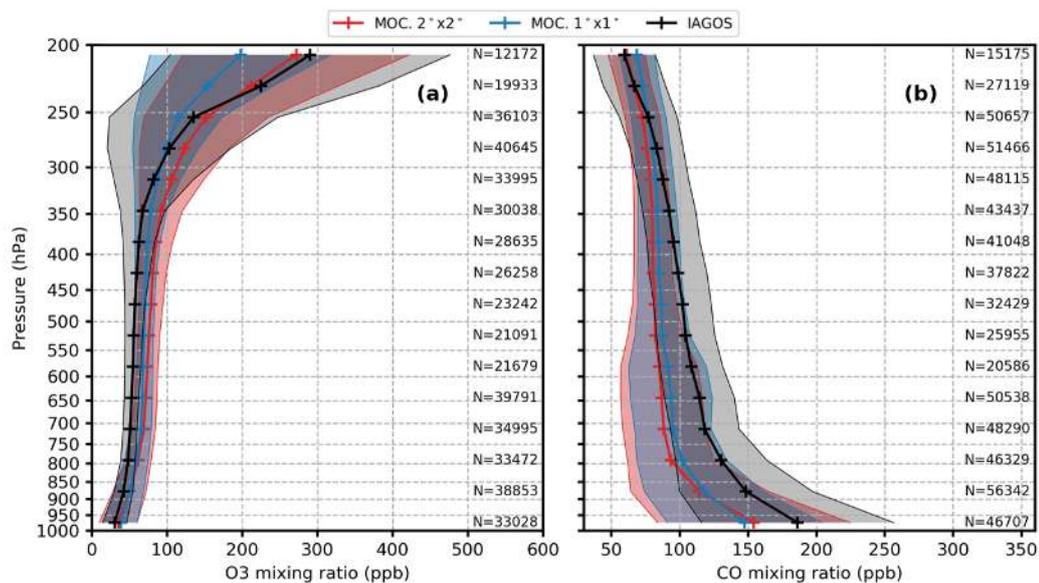
pour l'O<sub>3</sub> et positif pour le CO. Néanmoins, pour la simulation REF11, la corrélation est, elle, améliorée, ce qui semble indiquer un effet positif d'une meilleure résolution sur la représentation de la variabilité de l'UTLS. A noter que les valeurs de corrélation déjà élevées sont dues aux forts gradients verticaux d'O<sub>3</sub> et de CO entre la troposphère et la stratosphère, toujours représentés par MOCAGE.

Afin de préciser le comportement général de MOCAGE, on peut se servir des mesures IAGOS réalisées au décollage et à l'atterrissage d'un ou plusieurs aéroports proches. A partir de ce sous-jeu de données, on peut alors construire un pseudo profil vertical moyen, et le comparer au profil moyen établi avec MOCAGE. Cela permet de constater les performances de MOCAGE dans la troposphère en général, dans un rayon moyen de quelques centaines de kilomètres autour du ou des aéroports. Aux moyennes et hautes latitudes, on dispose aussi de quelques mesures dans l'UTLS quand celle-ci est traversée par les avions avant d'atteindre leur altitude de croisière. On réalise ce profil en agrégeant les mesures des avions de passage dans un des aéroports de Frankfort, Düsseldorf ou Munich, assez proches géographiquement, et qui sont les plus visités par les avions IAGOS avec un total de 1567 vols.

Les profils verticaux résultants d'O<sub>3</sub> et de CO sont présentés sur la figure 3.2. Tout d'abord, dans la couche limite atmosphérique et la troposphère libre, on ne remarque pas de changement de la capacité de MOCAGE à représenter les concentrations d'O<sub>3</sub> et de CO entre les deux simulations. On remarque même une diminution du biais positif d'ozone et négatif de CO dans la troposphère libre avec REF11. En revanche plus l'altitude augmente, plus l'écart entre les simulations REF11 et REF22 devient grand. A partir de 300 hPa, et donc dans l'UTLS, on observe un plus faible gradient vertical dans la simulation REF11. Cela se traduit par un biais négatif pour l'O<sub>3</sub> et positif pour le CO dans REF11, là où la simulation REF22 affiche un biais quasi-nul et une bonne représentation des gradients verticaux dans l'UTLS.

Cette évaluation est aussi réalisée par saison, et présentée sur la figure 3.3. On y retrouve les mêmes conclusions que précédemment, c'est-à-dire une dégradation des ré-

### 3.2. ÉVALUATION DE MOCAGE DANS SA VERSION ORIGINALE



**Figure 3.2** – Comparaison entre les profils verticaux moyens de CO et d'O<sub>3</sub> sur l'année 2013, entre différentes simulations MOCAGE, REF22(en rouge), REF11 (en bleu) et les données IAGOS (en noir). Les aires colorées représentent l'écart-type autour de la moyenne. Le nombre de points utilisé à chaque niveau de pression est indiqué sur la partie droite du profil.

sultats de simulation MOCAGE à 1° par rapport à la version à 2° dans l'UTLS. Cet impact est plus grand pour l'ozone, et en particulier aux saison MMA et DJF où l'écart avec les données IAGOS est entre 50 et 100 ppb. Les performances dans la troposphère libre en revanche sont identiques ou légèrement meilleures dans REF11 pour les deux espèces considérées, et ce, quelle que soit la saison.

Le fait que les performances de MOCAGE soient meilleures dans la troposphère libre mais se dégradent dans l'UTLS pointe vers un problème de transport des masses d'air, dans cette couche de l'atmosphère où le mélange est justement un des principaux facteurs contrôlant sa composition chimique. La diminution des niveaux d'O<sub>3</sub> et l'augmentation de ceux de CO indiquent alors un flux de la troposphère vers la stratosphère bien plus important dans la simulation REF11 que dans la simulation REF22. Parmi les processus de transports verticaux susceptibles de causer cela, il y a les processus de diffusion et convection atmosphérique. Ces deux processus de fine échelle sont représentés dans le modèle par des paramétrisations sous-maille, à partir des caractéristiques de la circulation

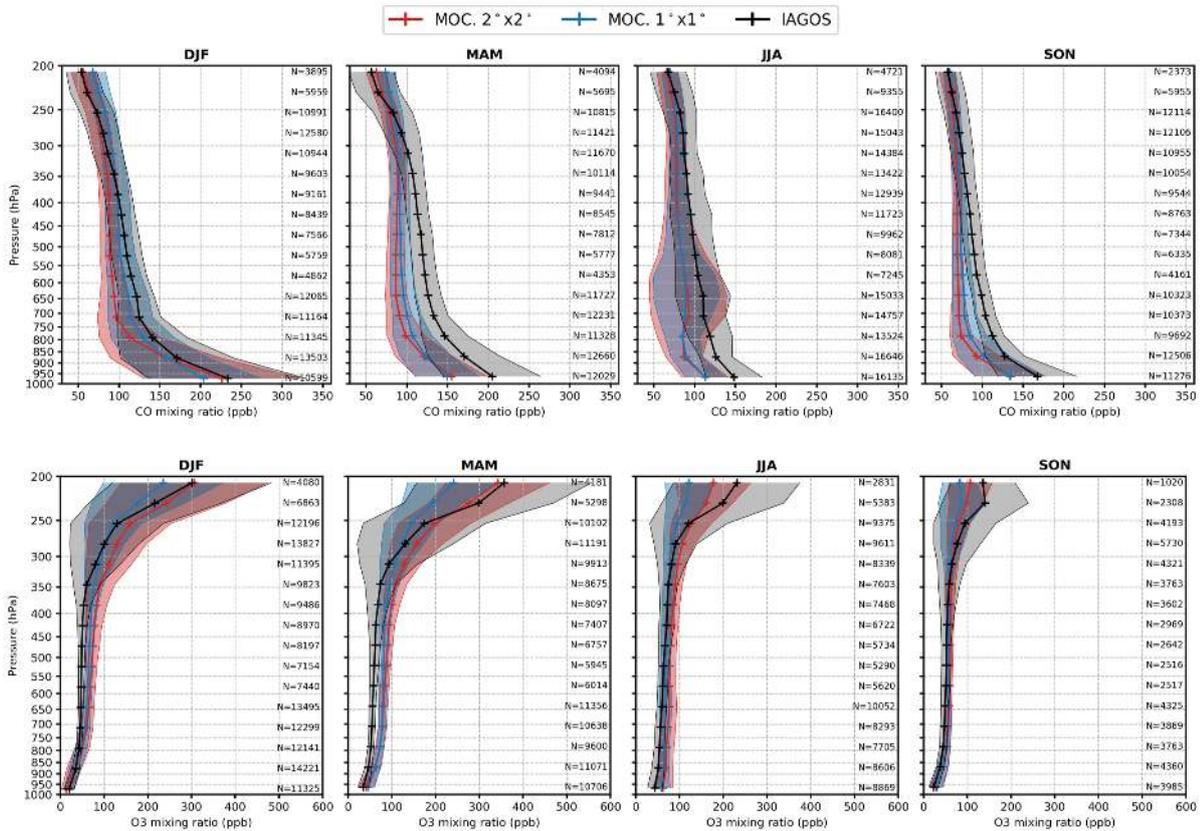


Figure 3.3 – Comme la figure 3.2, mais en moyenne saisonnière.

de grande échelle. Ces paramétrisations pouvant donc dépendre de la résolution du modèle, il est donc probable qu'avec une résolution horizontale plus fine, elles entraînent le trop fort transport vertical à l'origine de ce constat.

### 3.3 Évaluation des modifications des schémas de diffusion et convection

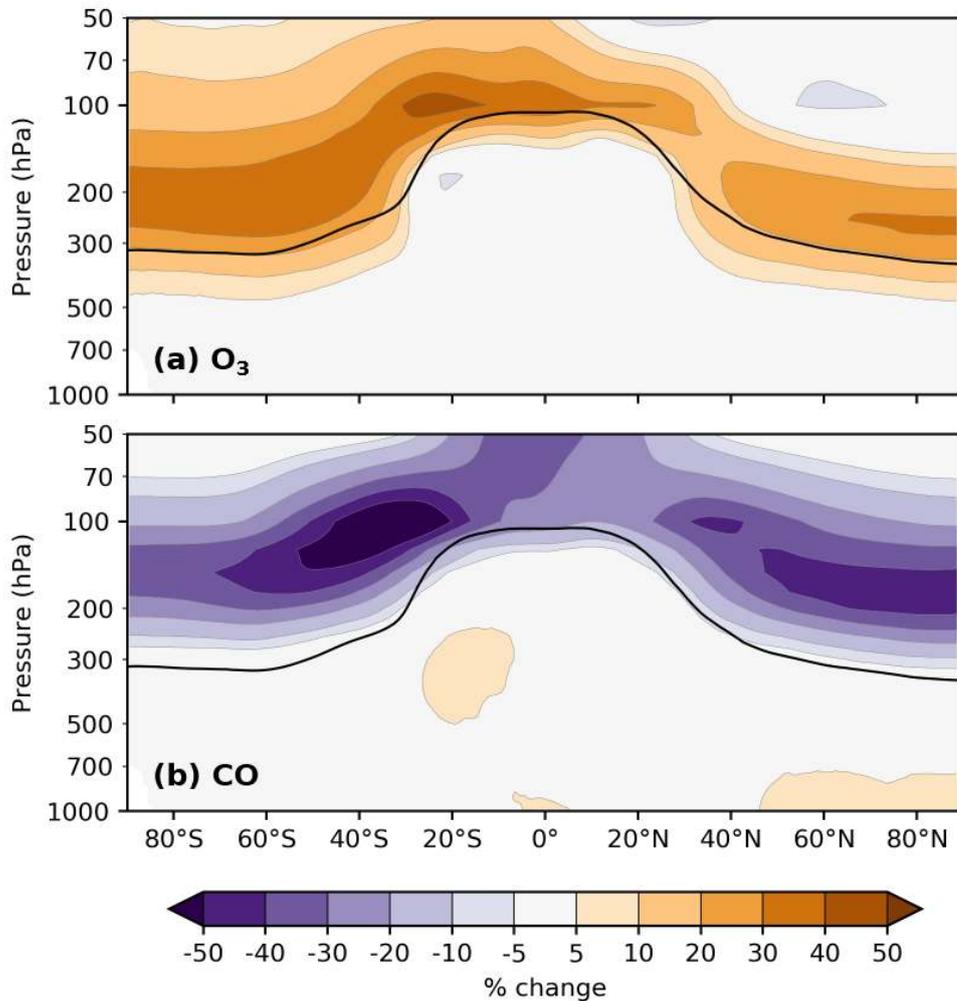
Il a donc été constaté qu'une résolution horizontale plus fine dans MOCAGE impactait fortement ses performances dans l'UTLS. Afin de remédier à ce problème, des modifications ont été apportées aux schémas de diffusion et de convection, et décrites dans la partie 2.2.5.1. On expose ici l'impact de chacune de ces modifications indépendamment sur les simulations MOCAGE. Puis, on réalise une évaluation extensive de MOCAGE dans l'UTLS, dans sa version comprenant les deux types de modifications.

#### 3.3.1 Impact des modifications du schéma de convection

Dans le but d'améliorer la représentation de la convection dans MOCAGE et son impact sur la composition chimique de l'UTLS, des modifications ont été apportées au schéma numérique existant. Ces modifications visent à rendre plus réaliste l'extension verticale de la convection atmosphérique en limitant sa hauteur à celle de la tropopause thermique (ces changements sont décrits en détail dans la partie 2.2.5.1). Pour évaluer l'impact de ces modifications, on compare deux simulations MOCAGE identiques en tout point excepté pour le schéma de convection atmosphérique. On a donc la simulation de base REF11 et une simulation où l'extension de la convection est limitée CONV11.

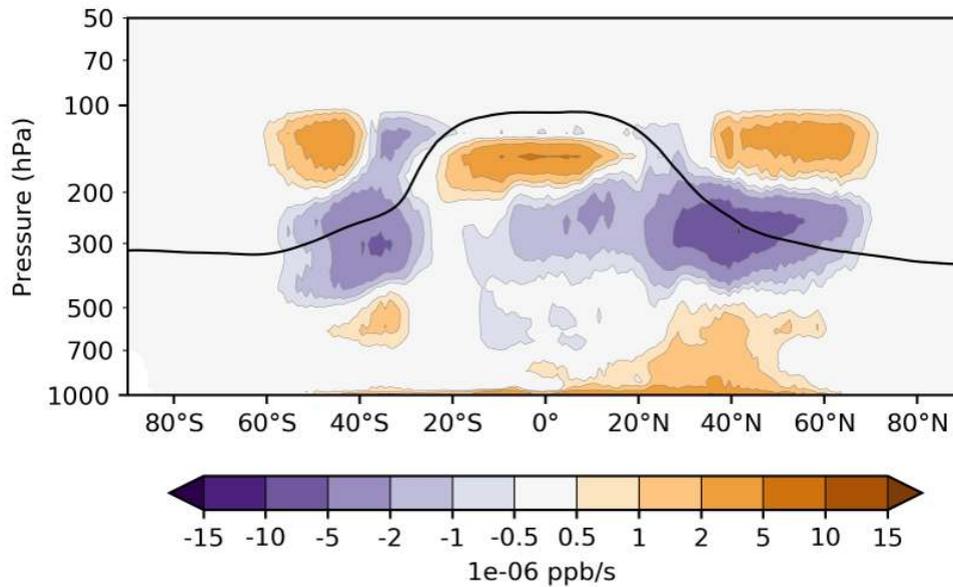
On peut voir sur la figure 3.4 le changement relatif attribué à la limitation verticale de la convection profonde sur les moyennes zonales de CO et d'O<sub>3</sub>. On y constate effectivement un fort impact dans l'UTLS. Le signe de ce changement relatif est positif pour l'O<sub>3</sub>, indiquant une augmentation de sa concentration dans l'UTLS. Il est négatif pour le CO, indiquant une diminution de sa concentration, principalement dans la LS. Pour les deux espèces, la différence relative est assez importante, allant jusqu'à 50%. L'impact en dehors de l'UTLS en revanche est assez faible, avec au maximum 5% de différence entre les deux simulations près de la surface ou dans la troposphère libre. Le fait que cette modification implique une diminution du CO et une augmentation de l'O<sub>3</sub> dans l'UTLS correspond à une diminution du mélange entre troposphère et stratosphère, qui était pointé dans l'évaluation préliminaire de la partie précédente.

Pour confirmer l'effet de cette modification du schéma de convection, on peut regarder son impact sur les tendances convectives de certaines espèces. La tendance convective représente le taux d'augmentation ou de diminution des concentrations d'une espèce dû aux processus de convection, et peut donc être positive ou négative. En prenant l'ozone, pour lequel on a vu que le biais dans la LS était maximal, on peut calculer la différence de tendance convective due aux modifications apportées dans le schéma de convection, qui est présentée sur la figure 3.5. On y constate un impact autour de la tropopause aux tropiques et aux moyennes latitudes. La convection étant plus rare après 60°S ou 60°N,



**Figure 3.4** – Moyenne zonale annuelle de la différence relative exprimée comme  $(\text{CONV11} - \text{REF11})/\text{CONV11}$ , due à la modification du schéma de convection atmosphérique dans MOCAGE pour (a) l' $\text{O}_3$ , (b), le CO. La courbe noire indique la position moyenne de la tropopause dynamique.

aucun impact n'est constaté au-delà de ces latitudes. Pour l'ozone, la tendance convective globale est négative dans la haute troposphère, et les quantités d'ozone diminuent sous l'effet des subsidences. Le changement de cette tendance convective semble s'organiser en "dipôle". Comme la convection n'atteint plus des pressions proches de 100 hPa en dehors des tropiques, la tendance négative est amoindrie, d'où la différence de tendance positive. Au niveau et en dessous de la tropopause, la convection continue d'atteindre ces pressions, mais les subsidences n'apportent plus d' $\text{O}_3$  de la LS, et la tendance convective négative y est renforcée. On retrouve un comportement similaire aux tropiques, mais

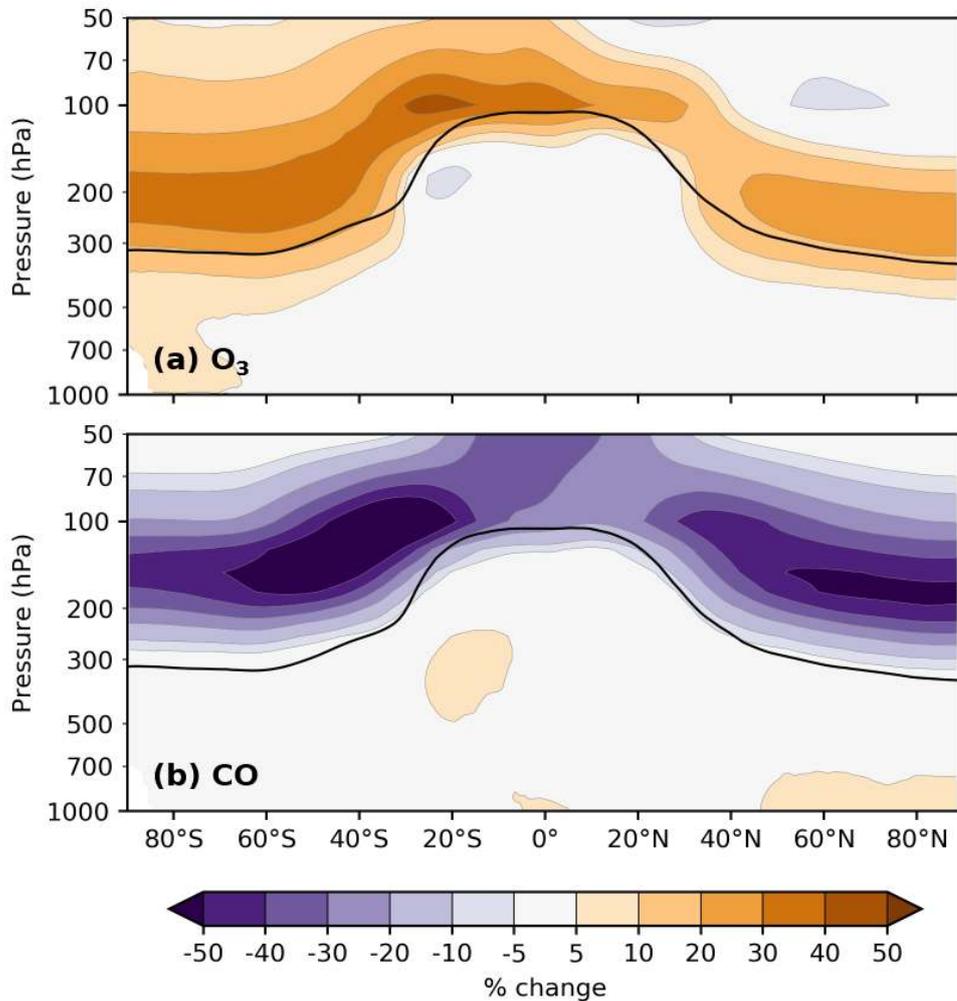


**Figure 3.5** – Moyenne zonale annuelle de la différence absolue (CONV11 - REF11) de tendance convective d'O<sub>3</sub> due aux modification du schéma de convection atmosphérique dans MOCAGE. La courbe noire indique la position moyenne de le tropopause dynamique.

cette fois-ci parce que la convection atteint des pressions inférieures à 120 hPa. Si en valeur absolue cette différence de tendance convective est similaire aux tropiques et aux moyennes latitudes, elle est à mettre en perspective d'une convection bien plus active aux tropiques, et donc une différence relative moindre. La tendance convective accompagne en effet le changement de concentration d'ozone observé figure 3.4. Le nouveaux "toit" de la convection limitant son impact en dessous de la tropopause, le mélange est effectivement réduit, ce qui explique bien l'augmentation des niveaux d'ozone.

#### 3.3.2 Impact des modifications du schéma de diffusion

Concernant la diffusion, on procède de la même manière que pour l'évaluation des modifications du schéma de convection. A noter que cette fois-ci, la modification du schéma de diffusion turbulente est encore plus simple, dans le sens où celui-ci est tout simplement désactivé à partir de 600 hPa, là où cette limite était fixée à 100 hPa dans la version originale de MOCAGE. La simulation où le schéma de diffusion est limité est appelé DIFF11 dans la suite de cette partie.



**Figure 3.6** – Moyenne zonale annuelle de la différence relative  $(DIFF11 - REF11)/DIFF11$  due aux modifications du schéma de diffusion atmosphérique dans MO-CAGE pour (a) l' $O_3$ , b, le CO. La courbe noire indique la position moyenne de la tropopause dynamique.

On calcule donc la différence relative entre une simulation où la diffusion turbulente est limitée à 600 hPa et la simulation REF11, pour l' $O_3$  et le CO. Elle est présentée sur la figure 3.6. Pour les deux espèces, l'impact est similaire à celui de la modification du schéma de convection. On retrouve l'augmentation des concentrations d' $O_3$  et la diminution de celles de CO. Les valeurs sont du même ordre de grandeur, soit entre 20 et 50%. L'impact se limite aussi à l'UTLS, montrant que le schéma de diffusion produisait bien un mélange important dans l'UTLS. On peut en tirer une conclusion similaire, c'est-à-dire que le schéma de diffusion, sensible à la résolution horizontale, cause un accroissement du mélange au

travers de la tropopause. Cette modification, ainsi que la précédente, permettent de diminuer un mélange "artificiel" entre la stratosphère et troposphère lorsque l'on augmente la résolution horizontale dans MOCAGE. Bien que l'impact de ces modifications semble faire diminuer les biais d'O<sub>3</sub> et de CO mis en avant lors de l'évaluation préliminaire de MOCAGE dans la partie 3.2, il est tout de même nécessaire d'évaluer plus en détail la version du modèle résultante avec les observations IAGOS.

#### 3.3.3 Évaluation générale

On a vu que la représentation de la convection et de la diffusion atmosphérique dans le modèle impactait fortement le mélange et donc la composition chimique de l'UTLS. Comme on a vu qu'une résolution plus fine avait plutôt tendance à diminuer les biais observés dans la troposphère libre dans les simulations MOCAGE, on cherche plutôt à les évaluer dans l'UTLS là où les résultats étaient dégradés. On peut alors utiliser l'autre partie des mesures IAGOS d'O<sub>3</sub> et de CO, acquises par les avions à altitude de croisière (soit entre 10 et 12 km) pour valider cette nouvelle version de MOCAGE en détail dans l'UTLS. On s'attend à ce que les performances de la simulation MOCAGE incluant les deux modifications (appelée MOD11) soient meilleures que celles des simulations REF11 et REF22.

Les données IAGOS sont réparties dans les trois régions géographiques définies sur la figure 2.3. Ces régions ont été choisies car elles recouvrent les principales voies aériennes empruntées par les avions IAGOS où les mesures sont les plus denses. Des statistiques sont calculées en séparant l'UT de la LS pour évaluer les performances de MOCAGE dans chacune de ces couches. Cette distinction entre UT et LS se base sur de précédents travaux à partir de mesures IAGOS (Thouret et al., 2006; Cohen et al., 2018). On utilise pour cela la définition dynamique de la tropopause comme la pression à laquelle le PV est égal à 2PVU, majorée dans les tropiques par la pression de l'iso surface 380 K. L'UT est considérée comme la couche comprise entre +15 et 75 hPa par rapport à la tropopause, et la LS entre -15 et -150 hPa. Les statistiques calculées sont le MNMB, la FGE et la

CHAPITRE 3. SENSIBILITÉ DE LA COMPOSITION DE L'UTLS À LA  
REPRÉSENTATION DES PROCESSUS DE TRANSPORTS VERTICAUX

---

corrélation linéaire. Le calcul de chacune de ces statistiques est présenté dans la partie 4.2.8. Le MNMB (*Modified Normalized Mean Bias*) et la FGE (*Fractional Gross Error*) sont respectivement des scores caractérisant le biais et l'erreur moyenne normalisés d'une série de données par rapport à une autre. Le MNMB varie entre -2 et 2, et la FGE entre 0 et 2. On considère généralement les performances bonnes si leur valeur absolue est inférieure à 0.3, et correctes si elle est inférieure à 0.5. Ces statistiques sont présentées séparément pour l'O<sub>3</sub> et le CO, respectivement dans les tableaux 3.1 et 3.2.

**Tableau 3.1** – Statistiques comparant les trois simulations MOCAGE REF22, REF11 et MOD11 aux données IAGOS pour l'O<sub>3</sub> dans les trois régions géographiques décrites sur la figure 2.3. Pour chaque région et chaque indicateur statistique dans l'UT et la LS, la simulation présentant le meilleur score est indiquée en gras.

Région		REF22			REF11			MOD11		
		MNMB	FGE	Corr.	MNMB	FGE	Corr.	MNMB	FGE	Corr.
EurNAt	LS	-0.22	0.35	0.77	-0.52	0.55	0.78	<b>-0.15</b>	<b>0.30</b>	<b>0.82</b>
	UT	0.41	0.44	0.39	0.19	<b>0.28</b>	0.47	<b>0.21</b>	0.29	<b>0.56</b>
cAsia	LS	-0.22	0.35	0.74	-0.55	0.57	0.77	<b>-0.16</b>	<b>0.29</b>	<b>0.81</b>
	UT	0.28	0.33	0.20	<b>0.04</b>	<b>0.23</b>	0.23	0.10	0.26	<b>0.30</b>
cAfr	UT	0.25	0.30	0.56	0.11	0.20	<b>0.60</b>	<b>0.09</b>	<b>0.20</b>	0.59

**Tableau 3.2** – Comme le tableau 3.1, mais pour le CO.

Région		REF22			REF11			MOD11		
		MNMB	FGE	Corr.	MNMB	FGE	Corr.	MNMB	FGE	Corr.
EurNAt	LS	0.14	0.24	0.58	0.16	0.32	0.48	<b>0.09</b>	<b>0.21</b>	<b>0.67</b>
	UT	0.17	0.20	0.60	0.14	0.16	<b>0.67</b>	<b>0.11</b>	<b>0.14</b>	0.66
cAsia	LS	0.20	0.26	0.62	0.33	0.35	0.61	<b>0.16</b>	<b>0.22</b>	<b>0.70</b>
	UT	-0.18	0.21	0.50	-0.13	0.16	<b>0.58</b>	<b>-0.09</b>	<b>0.16</b>	0.52
cAfr	UT	-0.10	0.18	0.68	-0.05	0.15	0.71	<b>-0.02</b>	<b>0.15</b>	<b>0.73</b>

A commencer par l'ozone, on voit que pour presque toutes les régions géographiques, les statistiques sont meilleures dans la simulation MOD11. Les quelques exceptions sont pour l'UT, où c'est parfois la simulation REF11 qui présente de meilleurs scores. La simulation REF22 ne présente jamais les meilleures statistiques, que ce soit dans la LS ou

### 3.3. ÉVALUATION DES MODIFICATIONS DES SCHEMAS DE DIFFUSION ET CONVECTION

---

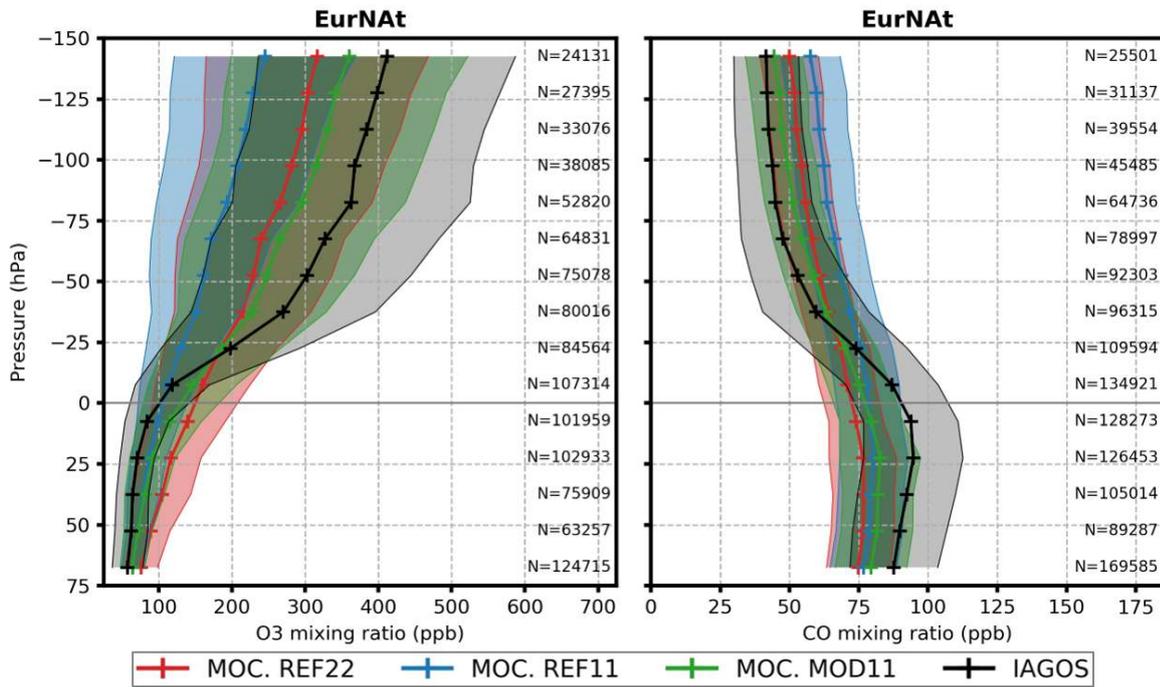
l'UT, mais elle est en revanche fréquemment plus performante que la simulation REF11, en particulier dans la LS. Dans la simulation MOD11, les scores de MNMB et de FGE sont très bons, leur valeur absolue étant toujours inférieure à 0.3. Les scores de corrélation sont supérieurs à 0.8 dans la LS, mais moins satisfaisants dans l'UT, où ils vont de 0.3 à 0.6.

Pour le CO on observe des caractéristiques similaires, et les scores sont encore une fois, dans leur grande majorité, meilleurs dans la simulation MOD11. Les seules exceptions concernent les coefficients de corrélation dans l'UT, légèrement meilleurs dans la simulation REF11. Encore une fois les scores de MNMB et FGE sont très bons avec des valeurs absolues inférieures à 0.25, et des coefficients de corrélation compris entre 0.5 et 0.7.

Pour compléter cette analyse, on peut tracer les profils verticaux moyens de chaque simulation MOCAGE et celui des mesures IAGOS dans l'UTLS. Afin de bien distinguer les deux couches de l'atmosphère (UT et LS), la coordonnée verticale utilisée est la pression relative à la tropopause. On utilise la même définition de la tropopause que celle utilisée pour le calcul des statistiques. Comme les avions n'échantillonnent que la haute troposphère aux latitudes tropicales (donc la zone CeAf), ces profils ne sont tracés que pour les deux zones EurNAt et cAsia, et présentés respectivement sur les figures 3.7 et 3.8.

Les profils verticaux IAGOS référencés par rapport à la tropopause sont très similaires dans les deux zones EurNAt et cAsia. On y observe la transition rapide de composition chimique entre la troposphère et la stratosphère. Les concentrations moyennes de CO sont divisées par deux rapidement au passage de la tropopause dynamique, avec des valeurs légèrement sous les 100 ppb jusqu'à des valeurs inférieures à 50 ppb. Pour l'ozone, cette transition se fait rapidement de 100 ppb à plus de 300 ppb.

Si l'on s'intéresse maintenant aux comportements des différentes simulations MOCAGE, on observe globalement un comportement similaire dans les deux régions pour l'O<sub>3</sub> et le CO. En moyenne, les performances sont meilleures dans la simulation MOD11,



**Figure 3.7** – Comparaison entre les profils verticaux moyens de CO et d'O<sub>3</sub> référencés par rapport à la tropopause dynamique, sur l'année 2013, entre différentes simulations MOCAGE (en vert, rouge et bleu) et les données IAGOS (en noir) sur la zone géographique EurNat définie sur la figure 2.3. Les aires colorées représentent l'écart-type autour de la moyenne. Le nombre de points utilisé à chaque niveau de pression est indiqué sur la partie droite du profil.

suivie de la simulation REF22, et enfin la simulation REF11. Cela confirme ce qui a été observé dans les parties précédentes, c'est-à-dire que la version originale de MOCAGE à une résolution de 1° donnait de moins bons résultats qu'à 2°. Ce défaut, lié à la représentation de certains processus de transports verticaux, a pu être corrigé, et la simulation MOCAGE résultante (MOD11) est la meilleure dans sa représentation de l'UTLS. A noter qu'une version modifiée de MOCAGE à 2° (MOD22) a aussi été testée. Ses performances dans l'UTLS sont bien légèrement meilleures que dans sa version de base (REF22), mais moins bonnes que celles de MOD11.

Néanmoins, malgré les améliorations apportées par la modification des schémas de convection et de diffusion dans la simulation REF11, on observe toujours de légers biais : positif pour l'O<sub>3</sub> et négatif pour le CO dans l'UT, et inversement dans la LS. Cela s'accompagne d'un gradient vertical un peu plus faible que celui observé. On arrive ainsi à

### 3.4. CONCLUSION

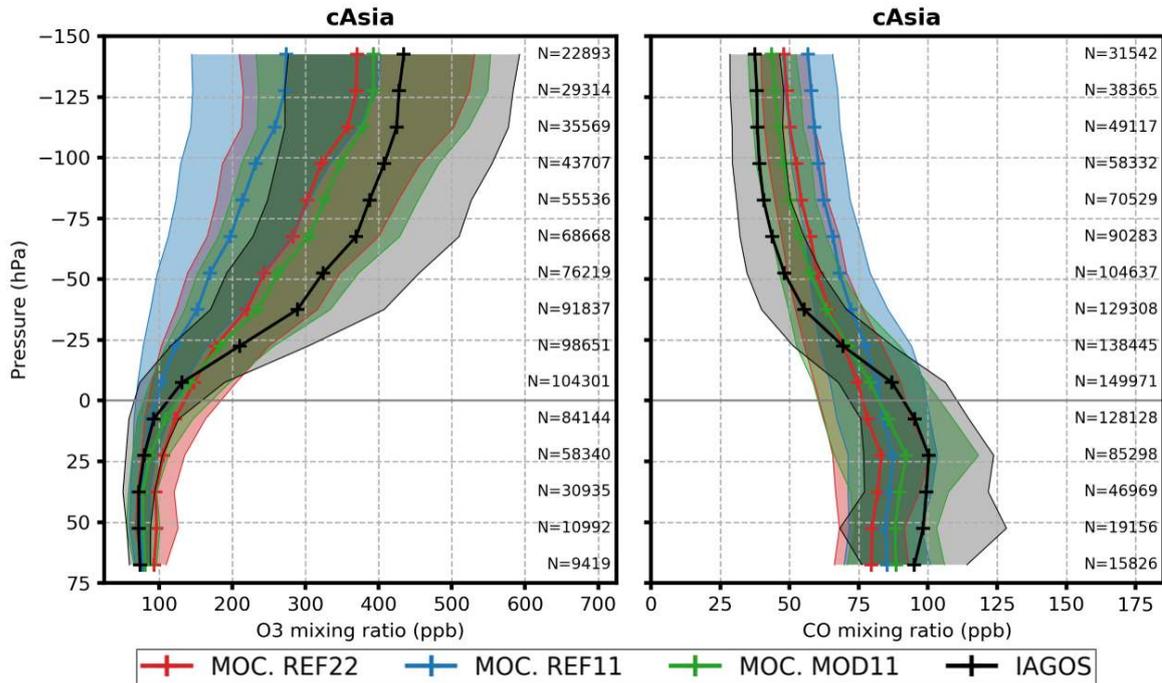


Figure 3.8 – Comme pour la figure 3.7, mais dans la zone cAsia.

une limite du modèle MOCAGE liée à sa résolution verticale (un problème commun à tous les modèles globaux). Cette fine couche de l'atmosphère est représentée par 5 à 6 niveaux dans le modèle MOCAGE, avec lesquels les forts gradients verticaux sont difficiles à simuler. Au regard de cette limitation, MOCAGE simule tout de même une composition chimique réaliste en terme d'ozone et de monoxyde de carbone.

## 3.4 Conclusion

Dans cette partie, on a établi une méthode permettant d'évaluer le CTM global MOCAGE à partir des données aéroportées IAGOS. L'évaluation peut se faire dans toute la troposphère à partir des mesures réalisées pendant les phases d'atterrissage et de décollage des avions, ou bien à partir des données acquises à altitude de croisière pour l'UTLS. Une comparaison préliminaire de deux simulations MOCAGE a permis de mettre en avant une diminution initiale des performances de MOCAGE dans l'UTLS à une résolution plus fine ( $1^\circ$ ).

Pour pallier ce problème, deux modifications ont été apportées à MOCAGE aux schémas de diffusion et de convection, menant à une limitation du mélange entre UT et LS. On a alors estimé l'impact de chacune de ces modifications sur la modélisation des concentrations d'O<sub>3</sub> et de CO dans MOCAGE. Chacune d'entre elles a un effet similaire, avec une augmentation des concentrations d'O<sub>3</sub> et une diminution de celles CO qui se limitent à l'UTLS.

Enfin, une évaluation en détail de trois simulations MOCAGE a été réalisée, avec une distinction faite entre l'UT et la LS. Il en est ressorti que les modifications apportées aux schémas de diffusion et de convection ont bien permis une amélioration des performances globales de MOCAGE dans l'UTLS à 1° de résolution. C'est donc cette version du modèle que sera utilisée comme base pour le reste de cette thèse. Ces résultats montrent qu'une attention très particulière doit donc être portée au processus potentiellement responsable de mélange vertical dans l'UTLS, car cela conditionne très fortement sa composition chimique.

## Chapitre 4

# Injection et redistribution du monoxyde de carbone dans la haute troposphère par les feux de biomasse.

Dans ce chapitre est présenté l'article publié dans la revue ACP (*Atmospheric Chemistry and Physics*) :

Cussac, M., Marécal, V., Thouret, V., Josse, B., and Sauvage, B. : The impact of biomass burning on upper tropospheric carbon monoxide : a study using MOCAGE global model and IAGOS airborne data, *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 9393–9417, 2020.

Après un résumé en français des tenants et aboutissants de cet article, le texte de l'article est présenté sous sa forme de preprint, l'article publié étant disponible à l'adresse suivante : <https://doi.org/10.5194/acp-20-9393-2020>

## 4.1 Résumé en français de l'article

Les émissions des feux de biomasse sont une source importante d'espèces réactives dans l'atmosphère, dont le monoxyde de carbone (CO). Le CO, qui à une durée de vie relativement longue (environ 2 mois), est le principal précurseur d'ozone dans la haute troposphère. L'objectif de l'étude est le suivant : analyser et quantifier l'impact des émissions des feux de biomasse sur le monoxyde de carbone dans la haute troposphère. Cette étude se découpe en deux parties, dont les principales conclusions sont présentées ci-dessous.

Dans la première partie, le travail porte sur l'amélioration de la représentation des émissions des feux de biomasse dans le modèle MOCAGE, en prenant en compte la variabilité de la hauteur à laquelle se fait l'injection de ces émissions. Pour cela, le schéma d'injection de ces émissions est modifié dans MOCAGE, afin de prendre en compte des produits issus de l'inventaire d'émissions GFAS sur les hauteurs de panaches (voir partie 2.2.5.2). Afin de valider ces développements, on utilise les mesures IAGOS de concentrations de CO dans les panaches de feux de biomasse. Cette identification est réalisée à partir des produits issus de l'outil SOFT-IO, qui fournit une contribution des émissions des feux de biomasse récentes aux concentrations de CO à partir du calcul de rétrotrajectoires couplé à des inventaires d'émissions. Grâce à SOFT-IO, on dispose donc de mesures de CO effectuées dans 220 panaches différents, ainsi qu'une estimation de leur région d'origine. On compare alors deux simulations MOCAGE couvrant l'année 2013 :

- Une première (BASE), où les profils d'injection des émissions des feux de biomasse sont prescrits en fonction de la latitude d'occurrence du feu, ce qui correspond à la version originale de MOCAGE.
- Une deuxième (INJH), où on utilise les hauteurs d'injection pour chaque feu de l'inventaire d'émissions GFAS, et qui est la version de MOCAGE modifiée dans le cadre de cette thèse.

Ces deux simulations ont des performances sensiblement équivalentes pour les panaches issus de la plupart des régions du globe. Pour les panaches boréaux en revanche, la prise en compte des hauteurs d'injection de GFAS permet une amélioration significative

#### 4.1. RÉSUMÉ EN FRANÇAIS DE L'ARTICLE

---

des performances de MOCAGE. En comparant géographiquement les deux simulations entre elles, on observe effectivement un impact maximal au-dessus de l'Asie boréale, avec jusqu'à  $\pm 10$  ppb de CO dans l'UT en août 2013. La simulation INJH ainsi validée est utilisée pour la suite de l'étude.

Dans la deuxième partie, on analyse l'impact global des émissions des feux de biomasse sur le monoxyde de carbone au delà des panaches, dans toute la haute troposphère. On commence par une validation de MOCAGE à plus grande échelle. On utilise les mesures de CO IAGOS à la fois proches des aéroports pour établir des profils verticaux moyens dans la troposphère, et en altitude de croisière pour pouvoir évaluer MOCAGE en détail dans l'UTLS. On trouve un bon accord entre la simulation MOCAGE INJH et les mesures IAGOS, avec des indicateurs statistiques comme le MNMB et la FGE inférieurs à 0.25 en moyenne, et une bonne représentation de la transition entre troposphère et stratosphère. On se sert alors de cette simulation, et d'une deuxième où les émissions par les feux de biomasse sont nulles (NOBB) pour estimer la contribution de ces derniers aux concentrations de CO comme étant la différence entre les deux simulations. On trouve alors une contribution globale moyenne de 11% ou 8 ppb des feux de biomasse dans l'UT. Ces derniers contribuent non seulement au niveau de fond de CO dans l'UT, mais on observe aussi une forte variabilité spatiotemporelle due à la saisonnalité des émissions. En août 2013 par exemple, l'impact des feux boréaux est maximal et compte pour plus de 50% ou 60 ppb de CO en moyenne mensuelle sur le CO de la haute troposphère au-dessus des zones sources. Cela s'explique par l'impact du transport vertical rapide, notamment par pyroconvection qui est caractéristique de ces latitudes, mais aussi par la convection atmosphérique que l'on retrouve en été.

Enfin, des tests de sensibilité ont été effectués afin d'estimer l'impact individuel de chacune des grosses régions émettrices. Il y est confirmé l'importance des feux d'Afrique centrale, qui sont les plus gros contributeurs à l'échelle globale au CO dans la haute troposphère. Les deuxièmes contributeurs sont les feux boréaux, qui eux, ont un impact à l'échelle de tout l'hémisphère nord. Pour conclure, on remarque une forte influence des

feux de biomasse sur la répartition du CO dans la haute troposphère, et on peut donc s'attendre à un impact sur l'ozone aussi.

## 4.2 Article

### 4.2.1 Abstract

In this paper the fate of biomass burning emissions of carbon monoxide is studied with the global chemistry transport model MOCAGE and IAGOS airborne measurements for the year of 2013. The objectives are firstly to improve their representation within the model and secondly to analyse their contribution to carbon monoxide concentrations in the upper troposphere. At first, a new implementation of biomass burning injection is developed for MOCAGE, using the latest products available in GFAS biomass burning inventory on plume altitude and injection height. This method is validated against IAGOS observations of CO made in fire plumes, identified thanks to the SOFT-IO source attribution data. The use of these GFAS products leads to improved MOCAGE skill to simulate fire plumes originating from boreal forest wildfires. It is also shown that this new biomass burning injection method modifies the distribution of carbon monoxide in the free and upper troposphere, mostly at northern boreal latitudes. Then, MOCAGE performances are evaluated in general in the upper troposphere and lower stratosphere in comparison to the IAGOS observations, and are shown to be very good, with very low bias and good correlations between the model and the observations. Finally, we analyse the contribution of biomass burning to upper tropospheric carbon monoxide concentrations. This is done by comparing simulations where biomass are toggled on and off in different source regions of the world to assess their individual influence. The two regions contributing the most to upper tropospheric CO are found to be the boreal forests and equatorial Africa, in accordance with the quantities of CO they emit each year and the fact that they undergo fast vertical transport : deep convection in the tropics and pyroconvection at high latitudes. It is also found that biomass burning contributes for more than 11 % on average on the

CO concentrations in the upper troposphere, and up to 50 % at high latitudes during the wildfire season.

### 4.2.2 Introduction

The upper troposphere-lower stratosphere (UTLS) is an important layer of the atmosphere subject to strong gradients in both its dynamics and its chemical composition. Understanding upper tropospheric air composition is necessary to better quantify exchanges of air masses between the troposphere and the stratosphere (Gettelman et al., 2011). Ozone ( $O_3$ ), mostly abundant in the stratosphere, plays a large role on Earth radiative balance (Xia et al., 2018). Its impact on surface temperature for instance, has been shown to be maximum for ozone in the UTLS (Riese et al., 2012). At this altitude, ozone can originate from stratospheric intrusion, but also be produced from tropospheric precursors such as nitrogen oxides ( $NO_x$ ) and carbon monoxide (CO). Even though processes influencing UT air composition are numerous, here we focus on CO, for the reasons detailed below.

Carbon monoxide is one of the primary species emitted during incomplete combustion. It is emitted from both anthropogenic and natural sources. In the atmosphere it is also a product of methane ( $CH_4$ ) and volatile organic compounds (VOCs) oxidation. Since CO is the main sink of tropospheric hydroxyl radicals (OH), it influences the oxidizing capability of the atmosphere (Lelieveld et al., 2016). CO is also a precursor to a few greenhouse gases, such as carbon dioxide ( $CO_2$ ) and ozone. In the upper troposphere, CO is the main precursor of ozone compared other VOCs to other as their lifetime is generally shorter (often a few hours to a few days). Moreover, because ozone radiative impact relies mostly on its distribution in the UTLS (Riese et al., 2012), it makes CO indirectly influencing the global radiative budget of the Earth.

Given its variety of sources, CO can be transported into the upper troposphere by two different mechanisms : (1) When emission occurs in the PBL (Planetary Boundary Layer), usually from anthropogenic origin or from the least intense fires, CO can be

transported in the free troposphere and up to the tropopause due to deep convection and to a lesser extent to long range transport, given its 2 months lifetime. (2) For the most active biomass fires, pyroconvection can result in injecting smoke directly above the PBL, and up to 8-9 km for the most extreme cases (Labonne et al., 2007; Kahn et al., 2008). Unlike long range transport, the time scale of these injections is much shorter, and leads to the largest anomalies of CO detected in the free troposphere (Petetin et al., 2018). Since the occurrence of this phenomenon relies heavily on the fire activity, as well as the atmospheric state above the fire, the computational cost to represent this process explicitly in a global chemistry model is high. Biomass burning sources contribute to an important part of CO emitted in the troposphere, and are estimated to range between 350-600 TgCOyr<sup>-1</sup> (van der Werf et al., 2006), which is comparable to CO emissions from anthropogenic sources, estimated between 450-600 TgCOyr<sup>-1</sup> (Lamarque et al., 2010). For comparison purposes, the global in-situ productions of CO from VOCs and CH<sub>4</sub> oxidations are respectively estimated to range between 450-1200 TgCOyr<sup>-1</sup> and 600-1000 TgCOyr<sup>-1</sup> (Stein et al., 2014). As biomass burning emissions can reach rapidly the upper troposphere in the form of plume transported through convection or pyroconvection, they have been studied for their potential to contribute to ozone production at this altitude. Enhancements of ozone amounts have been observed and modelled in biomass burning plumes (Thomas et al., 2013), with production increasing while the plume ages. It can lead to export of ozone as the plume are transported by the general circulation on a hemispheric scale (e.g. Brocchi et al., 2017).

Satellite observations have greatly improved our understanding of biomass burning fluxes, resulting in the development of many fire emissions database such as GFAS (Global Fire Emissions Database, Kaiser et al., 2012), GFED (Global Fire Emissions Database, Giglio et al., 2013) or IS4FIRES (Integrated Monitoring and Modelling System for wildland fires, Sofiev et al., 2009). However, biomass burning emissions are still linked to uncertainties compared to other sources of trace gases such as anthropogenic emissions, for three reasons : (1) Their location and time of occurrence, though tied to seasons,

is unpredictable. Their detection relies heavily on the frequency and coverage of satellite observations used to make estimates of fire emissions. (2) The nature and amounts of compounds emitted during a fire depend on the nature of the fuel, which can be inferred from a land cover classification map (Friedl et al., 2002). (3) Depending on the intensity of the fire as well as the atmospheric conditions above the fire, pyroconvection can occur (Damoah et al., 2006; Cunningham and Reeder, 2009). This phenomenon can cause the plume to rise above the PBL, and therefore have an important impact on vertical distribution of emissions and therefore plume transport. In this study, we investigate biomass burning emissions and their impacts on CO distribution in the upper troposphere, through global modelling and in-situ measurements.

Different types of measurements are available to study upper tropospheric carbon monoxide. Satellites (MOPPIT for example) provide global measurements, but have been shown to lack vertical resolution, especially in the UTLS, where gradients of CO concentrations are strong (Deeter et al., 2013). Vertical soundings can provide vertically well-resolved data, but concern mostly O<sub>3</sub> and lack global coverage. Lastly, aircraft can also be equipped for air composition measurements. Airborne campaigns have helped understanding processes tied to biomass burning thanks to targeted high quality measurements on a regional scale. During the AMMA (African Monsoon Multidisciplinary Analysis) campaign for example, airborne measurements have been used to correctly trace biomass burning plumes over the Gulf of Guinea (Mari et al., 2008) and more generally to study their interaction with the African Monsoon (Haywood et al., 2008). As a complement, the IAGOS infrastructure ([www.iagos.org](http://www.iagos.org), Petzold et al. 2015) equips commercial airplanes with air composition sensors, in order to provide regular sampling over several decades. This dataset has been chosen for this study since it offers a large number of UTLS multi-species measurements (including CO and O<sub>3</sub>), on an almost global scale since 1994 for O<sub>3</sub> and 2001 for CO.

A challenge to tackle when using the IAGOS dataset is to be able to discriminate the most probable sources of the sampled air masses. As explained earlier, CO sources are

multiple, and transport pathways through the troposphere can be various. This is why the analysis of large datasets require other kinds of additional information, like source apportionment, usually obtainable through a Lagrangian backward transport calculation (Seibert and Frank, 2004). SOFT-IO (Sauvage et al., 2017) is a recently developed tool coupling backward transport calculation and emission inventories to estimate the contribution of recent emissions to CO anomalies identified in the aircraft measurements. Results from this model are available as added value products for the whole IAGOS dataset. As this study focuses primarily on biomass burning and CO, data from SOFT-IO are used for source attribution and identification of biomass burning plumes. Identified fire plumes in the IAGOS database are then used to assess the ability of global numerical simulations performed by the MOCAGE (*MOdélisation de Chimie Atmosphérique à Grande Échelle*, Josse et al., 2004; Guth et al., 2016) Chemistry-Transport Model (CTM) to model these plumes.

Regarding the representation of biomass burning within a CTM, previous studies have shown the importance of taking into account the variability in the altitude at which emissions are injected (Turquety et al., 2007; Leung et al., 2007). It was found that not only the vertical distribution of emitted trace gases was impacted, but also their long range transport as injection can occur directly in the upper troposphere. Moreover, Fromm et al. (2019) recently carried out a reinterpretation of existing literature on the pathway of wildfires emissions to the UTLS, stating that on multiple occasion studies have wrongly attributed plumes observed in the upper troposphere to transport from traditional cumulonimbus (Cb) instead of pyrocumulonimbus (pyCb). They concluded that the phenomenon of pyroconvection has probably been overlooked and its impact underestimated in past studies, encouraging the use of reliable information on its occurrence to accurately quantify vertical transport of emissions. Recent developments have been made in fire emissions inventories such as the Global Fire Emissions Database (GFAS). They now include plume rise parameters, like the injection height or the top of observed plumes (Rémy et al., 2017). These plume rise parameters are obtained through satellite measu-

rement of the Fire Radiative Power (FRP) and a plume rise model. These parameters have very recently been used in two different global chemistry models. In the C-IFS model, plume rise parameters from the GFAS inventories have been implemented on a daily resolution and validated against aerosol extinction coefficient measurements during two different airborne campaigns (Rémy et al., 2017). They also found that these products improved in particular the forecast of high altitude biomass burning plumes (above 4 km of altitude). Another approach was tested in the GEOS-CHEM model (Zhu et al., 2018). Monthly vertical profiles of emissions were computed using a plume rise model as well as satellite data, and used for biomass burning emissions over the United States of America. The results were validated for various trace gases, including CO and PAN. These two studies show an improvement of modelled atmospheric concentrations of trace gases emitted by fires, and encourage efforts to develop the use of such derived fire products for biomass burning emissions, in particular information on vertical distribution. In this paper is presented an implementation recently released GFAS daily products regarding plume rise in the MOCAGE CTM. A systematic global validation of biomass burning induced plumes is performed over the year of 2013 thanks to IAGOS airborne data, and SOFT-IO information to select CO anomalies originating from biomass burning. A reference year had to be chosen for computational efficiency when comparing IAGOS measurements to model outputs. 2013 was selected as the most recent year with the most validated IAGOS measurements at the beginning of this study. Since we aim to analyse impact on a global scale over a full year, we do not focus on single fire events. Additionally, the results are used to better understand biomass burning impacts on upper tropospheric CO budget, and relevant process for CO injection at this altitude.

Our objective is to study the impact of biomass burning emissions on upper tropospheric air composition, with a focus on CO exclusively. This work is based on both the IAGOS database and MOCAGE global CTM, presented respectively in section 4.2.3.1.1 and section 4.2.3.2.1. In section 4.2.3.1.2 are presented the SOFT-IO products, and how they are used in this study to automatically identify biomass burning plumes within the

IAGOS dataset. The role of injection height during biomass burning events is investigated in section 4.2.4 based on the latest plume rise parameters (both plume top altitude and injection height), taken from the biomass burning inventories GFAS. In section 4.2.5, MOCAGE results are evaluated in the upper troposphere against IAGOS observations for the reference year. Finally, the impact of biomass burning at a global scale is analysed in section 4.2.6 through MOCAGE sensitivity experiments.

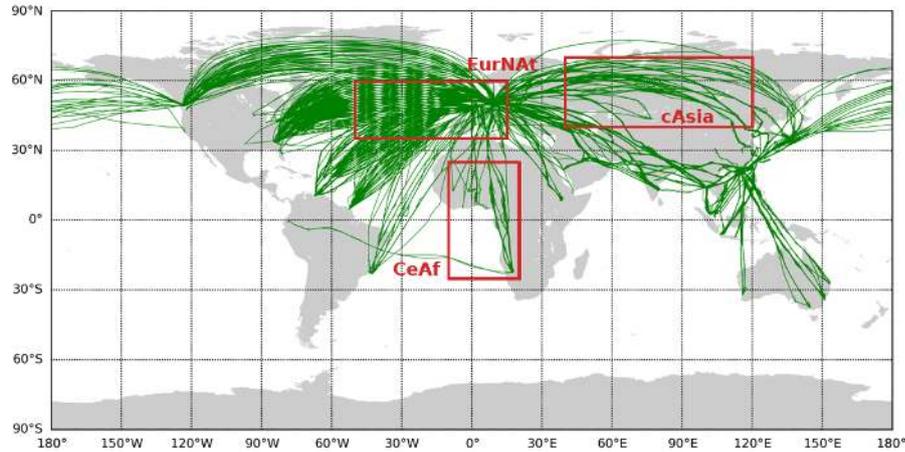
### 4.2.3 Methodology

#### 4.2.3.1 Data description

**4.2.3.1.1 In-situ measurements : the IAGOS database** IAGOS (In service Aircraft for a Global Observation System) is a European research infrastructure providing a dense database of in-situ air composition measurements, using medium to long-haul commercial flights. Initially called the MOZAIC program (Marenco et al., 1998), it started in 1994 with aircraft equipped for ozone (Thouret et al., 1998) and water vapour measurements (Helten et al., 1999). Carbon monoxide measurements were begun later in Dec. 2001 (Nédélec et al., 2003). These air composition measurements are complemented with meteorological measurements such as wind direction and speed, and air temperature.

The IAGOS program , ([www.iagos.org](http://www.iagos.org) Petzold et al., 2015) started in 2011 with the same objectives as the MOZAIC program, and the same measurements are performed automatically on board of the equipped aircraft, during the ascent, descent and at cruise altitude. The resulting joint IAGOS-MOZAIC database will be called hereafter the IAGOS database. To complement existing features, greenhouse gases (CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub>, Filges et al. (2018)) and aerosols measurements (Bundke et al., 2015) are to be instrumented as well in the next few years. On average, 7 to 15 aircraft have been instrumented at the same time to perform daily flights, and can result in more than 3000 instrumented IAGOS flights per year. Due to the density of the dataset and its timespan, it has been used for different kinds of studies : climatology and trends (e.g. Cohen et al., 2018; Gaudel et al., 2018), chemistry and physics processes (e.g. Ding et al., 2015; Zahn et al., 2014), as well

as model evaluation (e.g. Gaudel et al., 2015; Inness et al., 2013; Duncan et al., 2007).



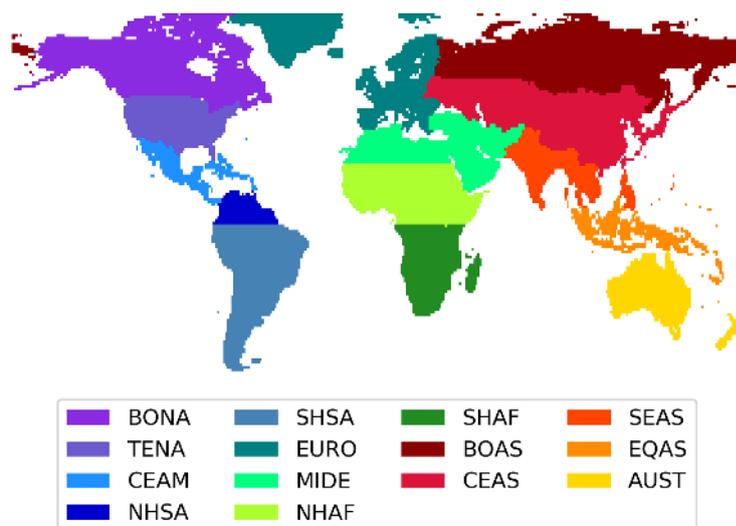
**Figure 4.1** – Trajectories of the 3022 IAGOS flights that occurred in 2013 (in green), and the delimitations of the three geographical areas used in the evaluation section (in red).

The data used in this study are the CO measurements. Their precision is estimated to be  $\pm 5\% \pm 5$  ppb, for an integration time of 30 s (Nédélec et al., 2003, 2015). Over the year of 2013, a total of 3022 IAGOS flights took place (shown in Fig. 4.1). It is noticeable that the northern mid-latitudes are the most sampled, with two main axes for IAGOS flights : from Europe to North America going over the Atlantic Ocean, and from Europe to Eastern Asia going over Boreal Asia. The tropics flights tracks mainly cover the African continent and the Maritime Continent. Three geographical areas are also defined for their density in IAGOS measurements, and will be used later in the manuscript for the evaluation of MOCAGE simulations in the UTLS.

**4.2.3.1.2 SOFT-IO products and biomass burning plume identification** SOFT-IO, a tool aiming to identify the most likely source of CO anomalies encountered by the IAGOS equipped aircraft has been recently developed. The complete description of the method can be found in Sauvage et al. (2017). Here is the summary of its main features.

The FLEXPART lagrangian transport and dispersion model is ran along each aircraft trajectory at measurement time and location, for a 20 days backward transport trajectories. Coupled to anthropogenic and biomass burning inventories, it results in an

estimation of the contribution of recent emissions (less than 20 days) to the observed CO mixing ratios, but not of the total CO concentrations as it does not simulate CO background. Meteorological fields are taken from the operational ECWMF analysis and forecasts. The calculated CO contribution is decomposed into the contribution from the 14 zones defined in GFED (see Fig. 4.2). The version of SOFT-IO used in this work is the 1.0.0, where outputs are available using the MACCcity anthropogenic inventory, and for both GFAS and GFED biomass burning inventories. For biomass burning, the contribution computed with GFAS emitted CO amounts and injection height are used in this study, out of consistency with MOCAGE set-up (see section 4.2.3.2.3). An example of the SOFT-IO contribution products can be seen in Fig. 4.3.



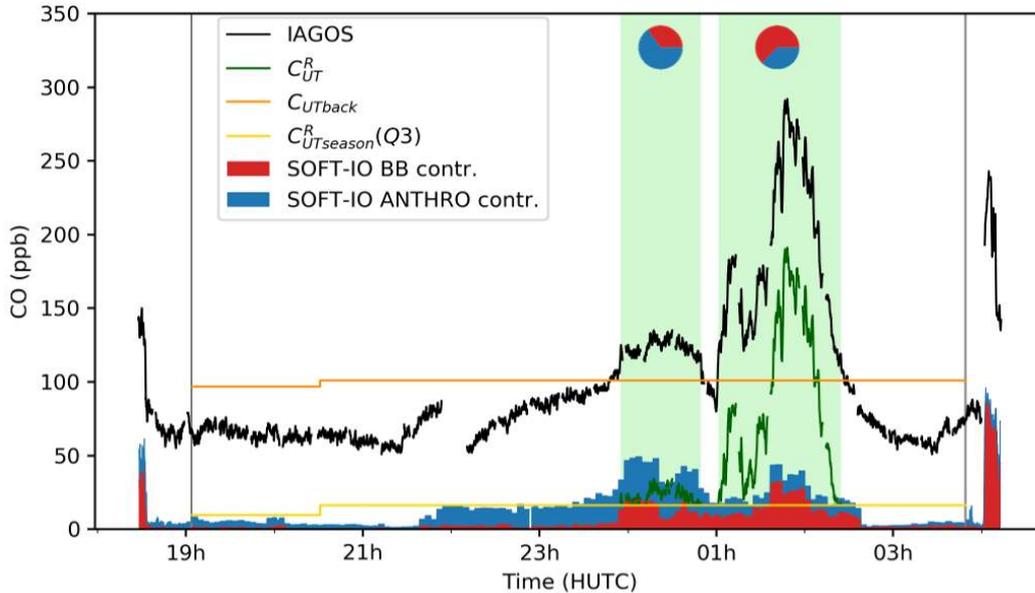
**Figure 4.2** – Geographical regions defined in the Global Fire Emission Database (GFED), adapted from <http://www.globalfiredata.org/data.html>

SOFT-IO data are used to attribute a source to anomalies encountered by the aircraft. The method used to calculate anomalies is the same as in Sauvage et al. (2017), but only the anomalies measured at cruise altitude are considered, since we focus only on the upper troposphere. CO anomalies  $C_{UT}^A$  are defined as the difference between the measured CO mixing ratio  $C_{UT}$  and the background CO mixing ratio,  $C_{UTback}$ .  $C_{UTback}$  is evaluated as the regional median seasonal value computed for the whole IAGOS database (see Sauvage et al. (2017) for more detail). Finally, only the anomalies superior to the seasonal value of

the third quartile of CO anomalies,  $C_{UT\text{season}}(Q3)$ , are considered. This can be summarized as :

$$C_{UT}^A = C_{UT} - C_{UT\text{back}} \quad \text{if} \quad C_{UT}^A > C_{UT\text{season}}^A(Q3) \quad (4.1)$$

This calculation is only performed when the plane is considered to be below the tropopause, defined here as the 2 PVU (potential vorticity unit) isosurface. In the tropics, where the definition of the potential vorticity diverges, the aircraft is always considered below the tropopause as the highest cruise altitude is under 12 km. The ascent and descent phases of the flight are not considered either. A detailed example of the process is presented in Fig. 4.3.



**Figure 4.3** – Example of SOFT-IO contributions as well as illustration of the method to calculate CO anomalies (see Eq. 4.1). The selected flight took off from Frankfurt (Germany) the 13<sup>th</sup> of January 2013 at 20h23 UTC, and landed the next day in Windhoek (Namibia) the next day at 6h14 UTC. The contribution is here at 74% from biomass burning, of which 97% are from NHAf (not shown). The two vertical grey lines represent the end of ascent and the beginning of the descent of the plane. The CO anomaly (in green) is displayed only when superior to the third quartile of anomalies.

Based on both the anomaly calculation and the contribution calculated by SOFT-IO, a method to automatically identify biomass burning related anomalies is used. For each CO anomaly detected during a flight, if the biomass burning contribution from SOFT-IO is on average higher than 5 ppb and is greater than the anthropogenic contribution from

SOFT-IO, the anomaly is selected as a biomass burning plume. This ensures that biomass burning provides a significant anomaly with respect to CO background and that this is the main contributor. In total, 220 plumes were sampled by IAGOS aircraft in 2013, with a majority of them originating from the African continent (either SHAF or NHAF) and boreal latitudes (either BOAS and BONA). A summary of the number of plumes by origin can be found in Table 4.1. The choice was made to merge together plumes origination from NHAF and SHAF, as well as plumes from BONA and BOAS, as their characteristics are expected to be similar.

**Tableau 4.1** – Number of biomass burning plumes sampled by IAGOS aircrafts in 2013, following SOFT-IO contribution calculations per geographical origin. Regions from which no plume was sampled are not shown. The MULTIPLE origin corresponds to plumes having more than one possible region of origin (other than AFR and BOREAL).

Origin	Number of plumes
AFR (NHAF/SHAF)	95 (33/62)
BOREAL (BOAS/BONA)	51 (21/30)
TENA	21
CEAM	14
SHSA	2
SEAS	8
MULTIPLE	29
TOTAL	220

#### 4.2.3.2 Global model

**4.2.3.2.1 MOCAGE global CTM : general description** MOCAGE is the off-line global CTM (Chemistry-Transport Model), developed at Météo-France (Josse et al., 2004; Guth et al., 2016). It is used for a wide variety of research subjects concerning atmospheric air composition, at global and regional scales. It is also operated daily as part of the European ensemble forecasting system in the in the Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS), with eight other chemistry models (Marécal et al., 2015).

MOCAGE chemistry is based on 2 different schemes. In the troposphere, the RACM (Regional Atmospheric Chemistry Mechanism) described in Stockwell et al. (1997) is used,

while the REPROBUS (REactive Process Ruling the Ozone BUdget in the Stratosphere) scheme is used in the stratosphere (Lefèvre et al., 1994). Merged together they allow for the representation of 112 gaseous species, 434 chemical reactions of which 57 are photolysis reactions. The solver used follows a fully implicit discretization method, described in detail in Cariolle et al. (2017). Aerosols, though described in MOCAGE (Guth et al., 2016, 2018), are not activated in this study and thus are not discussed in the present paper. Heterogenous chemistry is treated in the stratosphere but not in the troposphere.

MOCAGE has 47 sigma-hybrid vertical levels, from the surface up to 5 hPa. The vertical resolution ranges from 40 m near the surface, to 400 m in the free troposphere, and 700-800 m in the upper troposphere and lower stratosphere. The vertical resolution, though not ideal, can be considered medium and enable a representation of the main dynamical characteristics of the UTLS (Miyazaki et al., 2010; Geller et al., 2016).

Since MOCAGE is an off-line CTM, it needs external meteorological forcing (temperature, pressure, humidity, wind, cloudiness and precipitation) from a separate meteorological or climate model. Long-range transport through advection is calculated with a semi-lagrangian scheme (Williamson and Rasch, 1989). Tracers transport through convection and diffusion are computed inside the model, according respectively to Bechtold et al. (2001) and Louis (1979).

Anthropogenic, biogenic, and biomass burning emissions are taken into account using precomputed inventories (choice of inventory is detailed in Sect. 4.2.3.2.2). Both anthropogenic and biogenic emissions are injected into the 5 lowest levels of the model. The injection fraction of the mass emitted  $\delta r_e$  decays with levels  $L$  above the surface ( $L$  decreases with altitude) :  $\delta r_e(L) = 0.5\delta r_e(L + 1)$ , ensuring a majority of emissions are still injected in the surface layer. Biomass burning injection scheme is detailed in 4.2.3.2.3. Nitrogen oxides ( $\text{NO}_x$ ) emitted by lightning are computed according to Price et al. (1997).

The following processes concerning gaseous species are also represented in MOCAGE. Dry deposition is taken into account following Wesely (1989). Wet deposition is represented for both convective and stratiform precipitation, according to Mari et al. (2000)

for convection, and the works of Liu et al. (2001) and Giorgi and Chameides (1986) for stratiform precipitation. Wet deposition is split into two processes, in-cloud scavenging (also known as rainout), and below-cloud scavenging (also known as washout).

MOCAGE has already been used to study various aspects of the chemical composition of the atmosphere, including the structure of the UTLS, and biomass burning plume transport. As part of the Chemistry and Climate Modelling Initiative (CCMI), it is used to study the impact of present and future climate on tropospheric and stratospheric chemistry, as well as transport of trace gases through the troposphere (Morgenstern et al., 2017; Orbe et al., 2017). Several studies on the extra-tropical UTLS and stratospheric intrusion have also been performed in Barré et al. (2013). It was also used in the framework of the ChArMEx-GLAM airborne campaign, to study the origin of an observed CO anomaly in the upper troposphere sampled over the Mediterranean basin (Brocchi et al., 2017). Indeed, such CO enhancement was due to a biomass burning plume originating from both Siberian and North American forest fires. In order to correctly represent inter-continental transport of the plume in the previously mentioned study, the top of the fire emissions had to be set to an altitude of 10 km in MOCAGE to account for this extreme case of pyroconvection. Furthermore, Guth et al. (2018) highlighted the importance of the variability of biomass burning emissions of pollutants and their direct impact to the basin aerosol budget over the Mediterranean. They showed that in 2013, fires in North America were the main contributor to the budget of primary organic aerosols over the Mediterranean basin. Our study explores in further detail the UTLS composition and its link to biomass burning emissions.

**4.2.3.2.2 Simulation general set-up** MOCAGE dynamical forcing fields are taken from meteorological analysis performed by the ARPEGE model (Action de Recherche Petite Echelle Grande Echelle) operated at Météo-France (Courtier et al., 1991). They are available at a 3-hourly time-step, and linearly interpolated at a 1 h time-step, to be coherent with the dynamical time-step of MOCAGE.

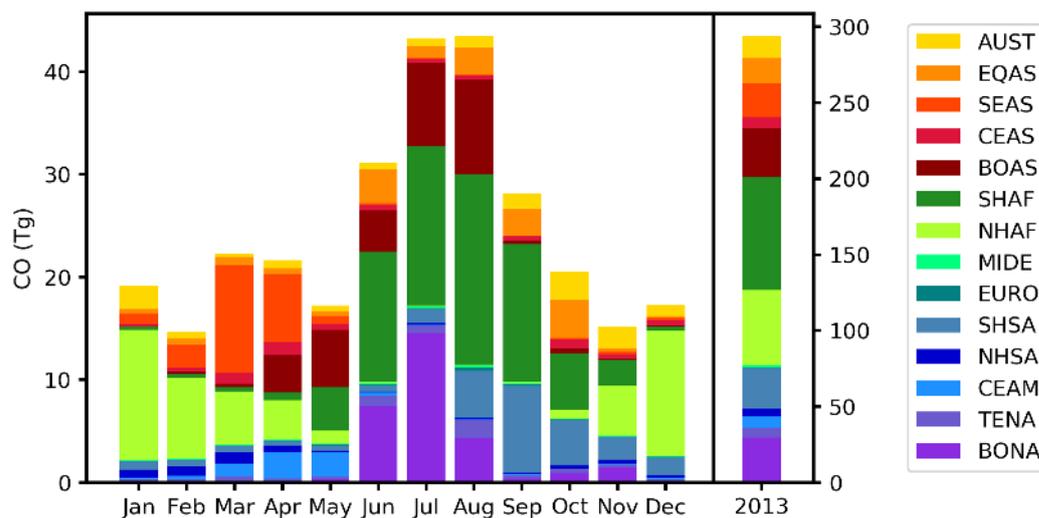
For anthropogenic emissions, MACCity inventory was used at a monthly resolution (Granier et al., 2011), complemented by the ACCMIP dataset for aircraft emissions (Lamarque et al., 2010). Concerning biogenic emissions, the MEGAN-MACC inventory is used (Sindelarova et al., 2014).

MOCAGE is used in its global configuration, with a resolution of  $1^\circ$ longitude  $\times$   $1^\circ$ latitude (approximately  $110 \text{ km} \times 110 \text{ km}$  at the equator and  $80 \text{ km} \times 110 \text{ km}$  at mid-latitudes).

The simulation covers the whole 2013 year, with an additional spin-up period of three months (starting the simulation on the 1<sup>st</sup> of October 2012). Hourly outputs from MOCAGE are used, as this is the minimum coherent time step of the model.

**4.2.3.2.3 Biomass burning emissions set-up** In MOCAGE, biomass burning emissions are constrained using daily GFAS products (Kaiser et al., 2012). GFAS is an inventory based on the observation of the Fire Radiative Power (FRP) made by the MODIS instrument, on board of the Aqua and Terra satellites (Justice et al., 2002; Giglio et al., 2006). Based on the link made between FRP and fuel consumption, emitted amounts of trace gases and aerosols are calculated taking into account the land cover classification at the location of the observation. Emitted CO amounts are presented in Fig. 4.4 for the year of 2013, where emissions have been split according to the geographical areas defined in Fig. 4.2. With a total of 294 Tg of CO being emitted, 2013 biomass burning yearly emissions are below GFAS multiyear average. In the work of Petetin et al. (2018), where GFAS CO emissions were assessed over the same continental areas from 2002 to 2017, 2013 appears to be an average year for all regions, except for SHSA being below average and BONA emissions above average.

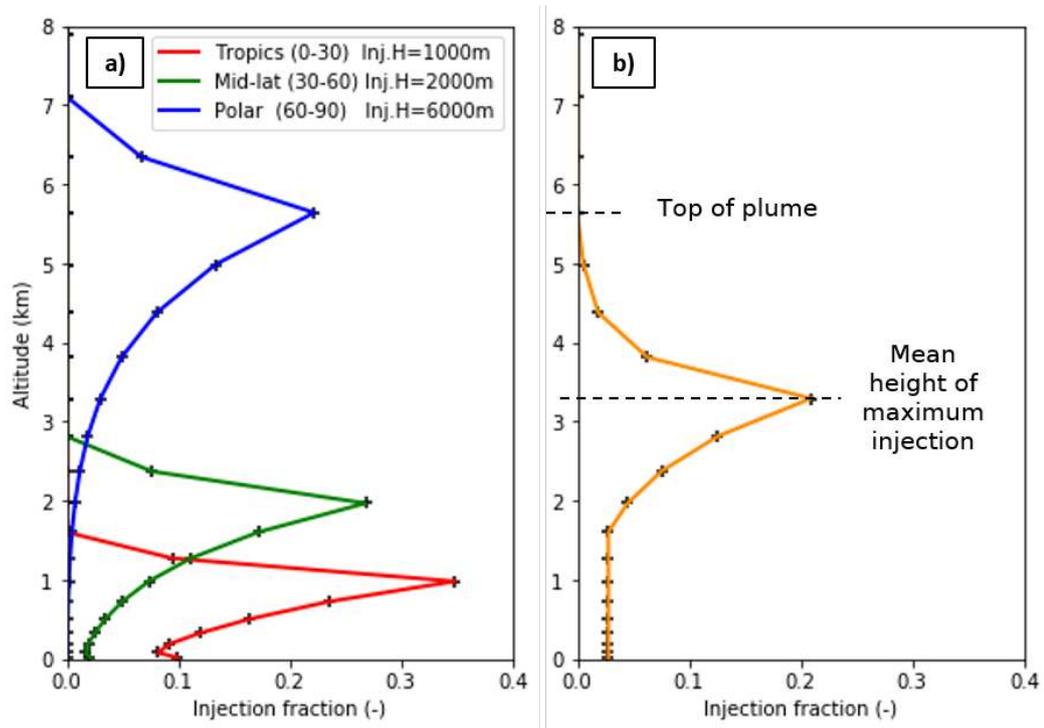
GFAS is averaged from its native resolution ( $0.1^\circ$ longitude  $\times$   $0.1^\circ$ latitude) at MOCAGE resolution ( $1^\circ$ longitude  $\times$   $1^\circ$ latitude) to set the location and amounts emitted for each day. But since no information on vertical repartitioning of the emissions of fires was available until v1.2 released in 2017, prescribed profiles of injection were used so far



**Figure 4.4** – GFAS 2013 monthly and yearly emitted amounts of CO (in Tg) for the 14 geographical areas defined in Fig. 4.2.

(see Fig. 4.5). In this approach the injection height was set depending on the latitude of the fire, even though it relies on other parameters like the type of fire. Injection fraction is then calculated above and below the injection height with an exponential decay. The top of the plume is set to 2 model levels above the maximum of injection fraction. The prescribed injection heights are 1 km, 2 km and 6 km, respectively applied for tropical latitudes, mid-latitudes and polar latitudes. These injection profiles were developed for the AMMA model inter comparison project (Williams et al., 2008, 2009) and are derived from the work of Lavoué et al. (2000). While it is a good approximation of the potential effect of pyroconvection on fire emissions, it does not take into account the difference between the active front of the fire and the smoldering areas, where pyroconvection rarely occurs. A first simulation using this representation of fire emissions is performed, reference throughout this paper as the BASE simulation.

As we want to investigate the role of the variability of injection height in the representation of biomass burning, a new way to set the injection profile in MOCAGE is developed. Instead of the prescribed injection height as a function of latitude, 2 products from GFAS v1.2 (Rémy et al., 2017) are used : the mean height of maximum injection (or injection height), and the plume top altitude. The injection height corresponds to the



**Figure 4.5** – Injection profile schemes : a) BASE injection profiles with latitude dependent injection height b) INJH injection profile using GFAS plume rise parameters.

altitude at which detrainment is at its maximum within the plume, and thus injection of smoke at its maximum. The plume top altitude is simply the highest altitude reached by the plume. These products are derived from the measured Fire Radiative Power (FRP) from the MODIS instrument, and a Plume Rise Model (PRM) that takes into account the atmospheric state above the fire. They are available daily for most of GFAS fire pixels. These two plume rise parameters are used in MOCAGE to constrain the injection profile, as presented in Fig. 4.5. The injection profile is still set at its maximum at the GFAS injection height, and the GFAS plume top altitude is used instead of the fixed two model levels above the injection height. A second simulation (referred to as INJH hereafter) using this new representation of biomass burning emissions is performed, identical in every other aspect to the BASE simulation. This new representation of fire injection will be compared to the one in the BASE simulation, using observations of biomass burning plumes from the IAGOS dataset, in section 4.2.4.

A third simulation (named NOBB) is performed where emissions from biomass burning

**Tableau 4.2** – Simulations description summary

Sim. name	BB emission inventory	Injection scheme
NOBB	None	None
BASE	GFAS	Prescribed profile with zonal injection height
INJH	GFAS	Prescribed profile with injection height and top of plume from GFAS

are simply turned off (not just for CO, but all concerned trace gases). It will be used to study biomass burning impact on CO budget in the UT, presented in section 4.2.6. A summary of the three simulations and their specificities can be found in Table 4.2.

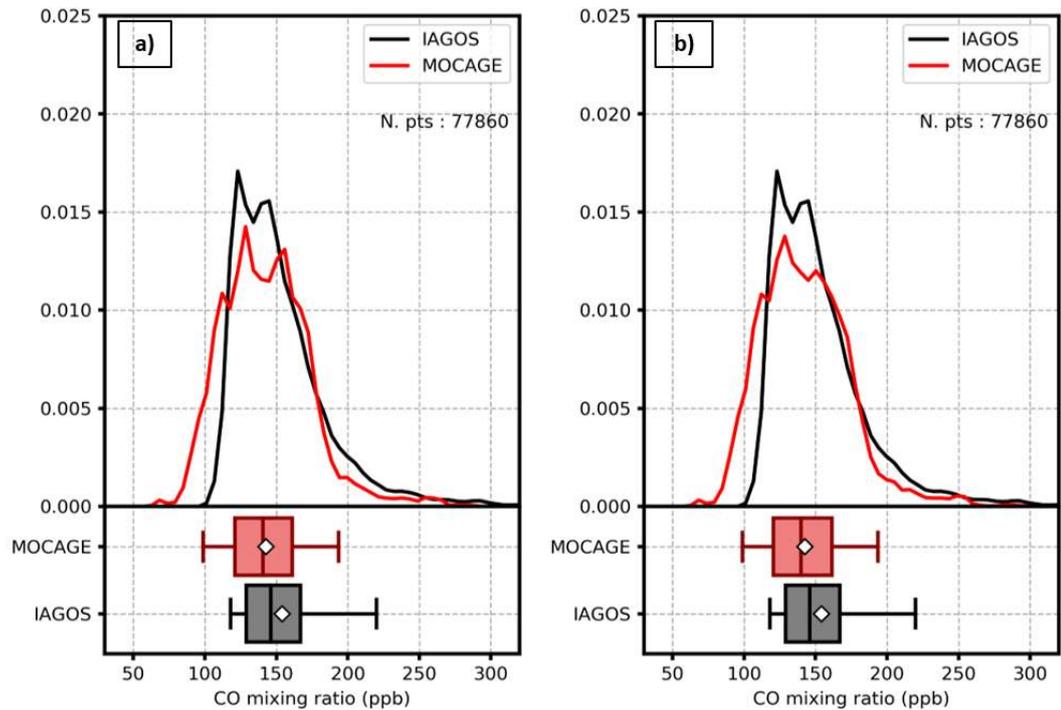
## 4.2.4 Improvement of biomass burning injection height in MOCAGE

### 4.2.4.1 Global evaluation of the plume representation

For the 220 plumes detected in the IAGOS database over 2013, CO mixing ratios measurements inside the plumes are compared with the MOCAGE model with the following methodology. Hourly results from the global model are interpolated on each plane trajectory at the measurement time and location to perform a collocated comparison. The interpolation is bi-cubic in space and linear over time. This results in a consistent dataset between the IAGOS CO measurements and each MOCAGE experiment, where each data value shares the same space and time coordinates.

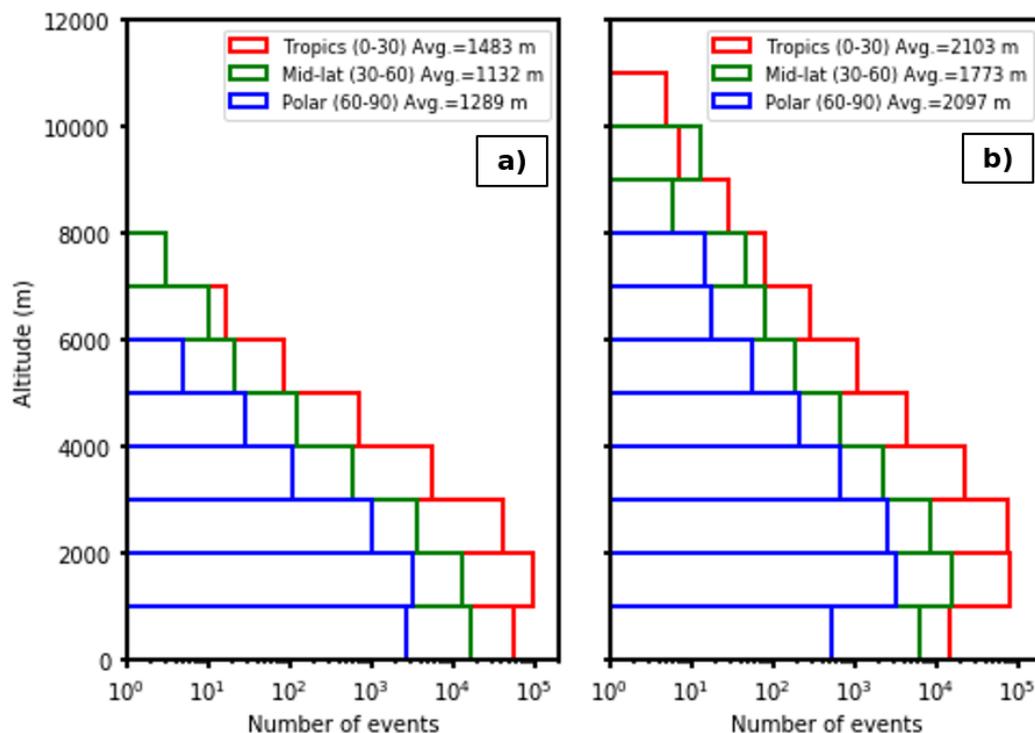
To perform the IAGOS-MOCAGE comparison, the probability density function (PDF) for each dataset is computed, as well as box-and-whiskers plots. The results are first investigated for the plumes originating from the African continent and boreal forests, as they are the most sampled by IAGOS aircraft in 2013, and the main contributors to biomass burning emissions.

Looking at plumes originating from the African continent (either from NHAf or SHAF, see 4.2), both the PDF and the box plots are similar between IAGOS and MOCAGE for the two simulations. Both MOCAGE simulations well reproduce the CO mixing ratios



**Figure 4.6** – Probability density functions and box plots comparing IAGOS CO mixing ratios (in black) inside identified African Biomass burning plumes and corresponding MOCAGE simulated CO mixing ratios (in red) from the **a)** BASE simulation **b)** INJH simulation. Whiskers on box plots represent the 5<sup>th</sup> and 95<sup>th</sup> quantiles and the white diamond is the arithmetical mean.

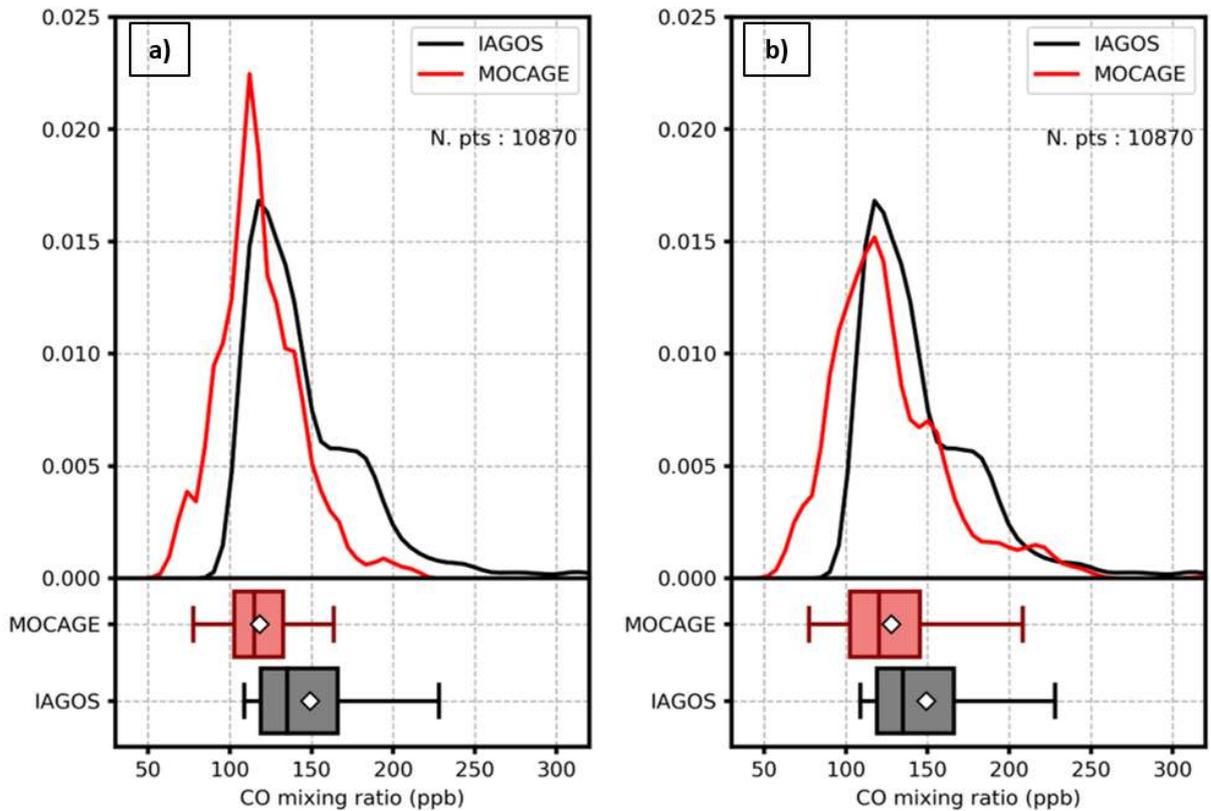
distribution when compared to the IAGOS measurements, with a slight negative bias of -11 ppb between the means. The 95<sup>th</sup> quantile in particular is 26 ppb lower in both MOCAGE simulations compared to the IAGOS measurements. Comparing both simulations against IAGOS observations, it appears that using plume rise parameters does not improve the representation of the biomass burning plumes, as no significant difference can be seen between the two datasets. Indeed, this could be expected, because pyroconvection rarely drives fire emissions above 3-4 km into the troposphere for African fires. Looking at the vertical repartition of GFAS plume rise parameters in the INJH simulation in Fig. 4.7, it appears that the bulk of fire emissions occurs in the BPL, with a mean altitude of injection on around 2 km. This value is not far from the injection height for tropical latitudes in the BASE method of 1 km injection height. This difference is not significant because most of emissions still occurs in the PBL and plumes that reach the cruise altitude of the aircrafts (10-11 km) in the tropical tropopause layer (TTL) are mostly transported



**Figure 4.7** – Vertical distribution of GFAS plume rise parameters over 2013 at a  $1^\circ$ longitude  $\times$   $1^\circ$ latitude resolution. **a)** Injection Height and **b)** Plume top altitudes

thought deep convection. Hence, the injection profile difference on CO emissions altitudes is not noticeable at this range of altitudes.

However, looking at Fig. 4.8, where the same statistical comparison is performed for boreal biomass burning plumes, the PDF of CO mixing ratios in the BASE simulations shows a strong underestimation when compared to the IAGOS one. In particular, the strongest enhancements are not represented at all in MOCAGE, with a difference of more than 60 ppb for the 95<sup>th</sup> quantile between the BASE simulation and IAGOS CO mixing ratios. Using injection heights from GFAS improves the simulation results. The INJH repartition of simulated CO mixing ratios is a lot more similar to the observed one when compared to the BASE simulation. There is a slight negative bias of around 20 ppb between the modelled plumes and the measurements, but the strongest anomalies above 200 ppb are now represented. Still, a significant part of the simulated CO mixing ratios fall in the 50-100 ppb range, the background level of CO concentrations in the UT. This can be partly explained as a background negative bias in MOCAGE of about 10



**Figure 4.8** – Same as Fig. 4.6, but for biomass burning plumes originated from boreal regions.

ppb. It is also at least partially due to the numerical diffusion, in addition to the vertical resolution of MOCAGE, which is 700-800 m at the considered range of altitude. This improvement of MOCAGE results to represent upper tropospheric plumes might appear counter-intuitive regarding the fact that injection height is now on average lower in the INJH than in the BASE simulation. It comes from the fact that the variability in injection height is now correctly represented. We believe that this leads to a better representation of the actual pathways, either through direct pyroconvection or advection in the lower layer of the atmosphere and convection, that biomass burning emissions can take towards the UTLS.

The statistical comparison between the BASE and INJH simulation has also been performed for plumes originating from other regions than AFR or BOREAL (category OTHERS in Table 4.3), but since it shows no significant difference between the two, it is not presented here. Lastly, considering the dataset regardless of the origin of the plume

(also not shown), African emissions contributes to more than half of the data points, hence conclusions are the same as for Fig. 4.6.

In order to complement the analysis, statistical scores have also been computed for each of dataset of plumes, for the two different MOCAGE simulations against the IAGOS biomass burning plume measurements. The chosen metrics are the Spearman’s correlation coefficient, the Modified Normalized Mean Bias (MNMB) and the Fractional Gross Error (FGE). Those three metrics have been chosen to better represent an atmospheric chemistry model performance against in-situ data and have been used in recent studies in a similar way (Elguindi et al., 2010; Wagner et al., 2015). Each metrics calculation is detailed in the Appendix 4.2.8. Spearman’s correlation coefficient ranges from -1 (perfect anti-correlation) to 1 (perfect correlation). MNMB ranges from -2 to 2, with 0 being the target for no bias. FGE ranges from 0 to 2 with 0 being the target as well. The statistical evaluation of the simulations is presented in Table 4.3.

**Tableau 4.3** – Comparison of scores between MOCAGE simulation and IAGOS measurements for plume identified thanks to SOFT-IO

Origin (N. plumes)		BASE	INJH
AFR (95)	Sp. Corr.	0.45	0.46
	MNMB	-0.07	-0.08
	FGE	0.17	0.17
BOREAL (51)	Sp. Corr.	0.60	0.67
	MNMB	-0.21	-0.15
	FGE	0.24	0.22
OTHERS (74)	Sp. Corr.	0.61	0.61
	MNMB	-0.14	-0.14
	FGE	0.23	0.23
ALL (220)	Sp. Corr.	0.54	0.55
	MNMB	-0.10	-0.10
	FGE	0.19	0.19

Looking at MNMB and FGE across the different origins, both scores are within acceptable range for each MOCAGE simulation. The MNMB is negative for all set of plumes, meaning that the model slightly under-represents CO enhancement inside biomass burning plumes. This can easily be explained as the model being diffusive, considering the

size of each grid cell, as well as a general small negative bias of MOCAGE in the UT. Spearman's correlation is acceptable across the different plumes origin, though not great either. This can be explained by the plumes being slightly offset spatially and/or temporally in the model, due to uncertainties in the dynamics as well as both the vertical and horizontal resolution.

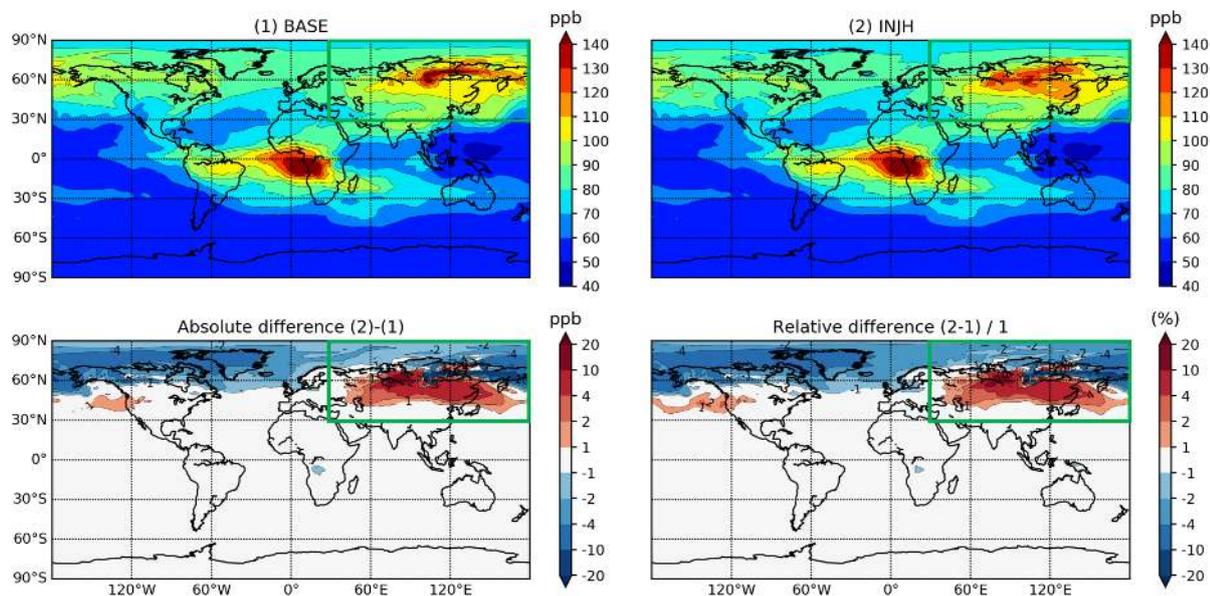
For all origins except the boreal regions, metrics are the same regardless of the method of injection of biomass burning emissions. This is consistent with the comparison presented earlier in this section. For plumes originating from boreal regions, both the correlation and the MNMB are significantly improved using the injection height and plume top estimation from GFAS. Again, this is consistent with comments made on Fig. 4.8. It also brings the MNMB closer to values considered for other plumes, making the representation of biomass burning plumes in the model more consistent overall. It has also been verified that the INJH method of injection does not degrade MOCAGE performances outside of biomass burning plumes. Statistics for both simulation on the IAGOS database excluding measurements in biomass burning plumes are identical and thus not presented here. This is why only the INJH simulation will be validated globally in Sect. 4.2.5.

Although the original representation of biomass burning injection height in MOCAGE was giving fairly good results, using GFAS improves largely the ability of MOCAGE to forecast biomass burning plumes in boreal regions. This is because GFAS provides an estimate of the actual height of pyroconvection for each fire in these regions, and therefore captures the variability of injection heights. Combined with vertical transport processes, mainly convection, it allows the model to capture well boreal plumes.

### 4.2.4.2 Global impact of the plume representation

In order to investigate the impact of the new injection scheme (using GFAS plume rise parameters) on carbon monoxide distribution in the upper troposphere, we perform a global comparison between the BASE and INJH MOCAGE simulation. We treat monthly averaged results, but only August 2013 is shown hereafter as it is the month when the

greatest difference between the two simulations can be seen.

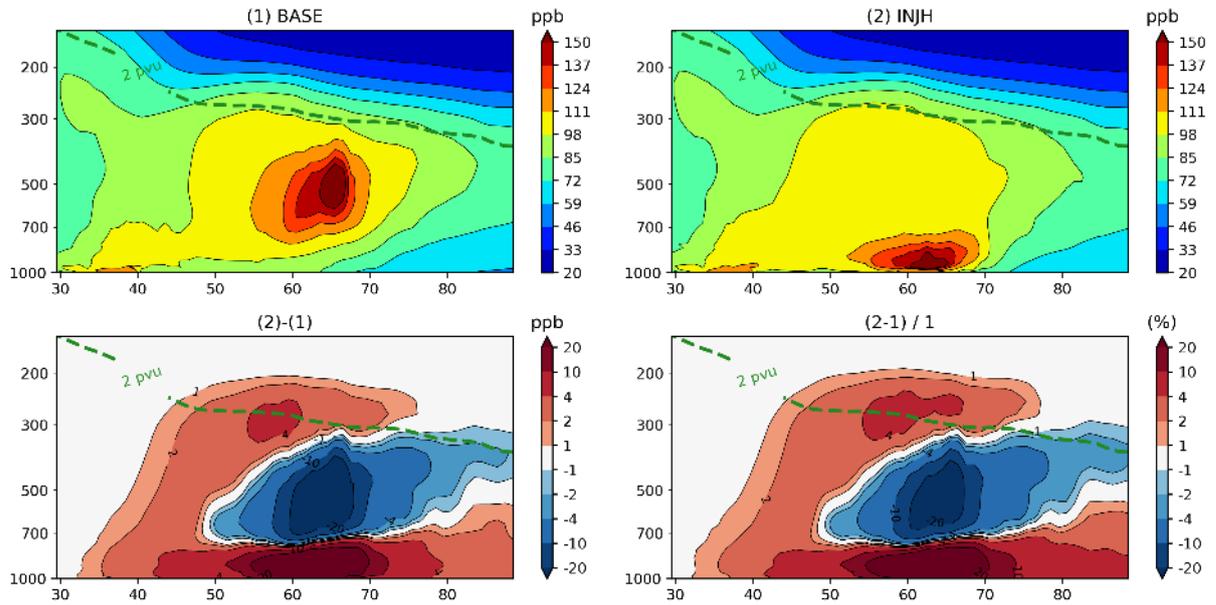


**Figure 4.9** – Monthly mean differences of CO mixing ratios between the BASE and IJNH MOCAGE simulations on 350 hPa iso-surface for the month of August 2013. The green box indicate the area used for the zonal mean.

In Fig. 4.9 is displayed the August 2013 CO vmr mean for both BASE and INJH MOCAGE simulations at 350 hPa, as well as absolute and relative differences between the two fields. At this pressure level (an altitude around 8 km), most of the difference between the two experiments is situated in the northern hemisphere, at mid to high latitudes, and especially above the Asian boreal forests. The 60°N latitude stands out as the demarcation line between different injection height (from mid-latitudes to high-latitudes) in the BASE simulation. It results in more CO being found at this altitude South of the 60°N parallel, up to 15 ppb, and less North, up to -25 ppb. It results in less CO being found for simulation INJH at this altitude than in the BASE simulation (up to -25 ppb) North of the 60°N parallel, and more CO (up to +15 ppb) South. This sharp discontinuity as been smoothed in the INJH simulation, as it had no physical source but was the result of an arbitrary demarcation in injection height.

It is also noticeable that no other area of the globe shows differences regarding the injection method used for biomass burning emissions. Despite finding injection heights and plume top altitudes reaching the upper troposphere all over the globe (see Fig 4.7),

only the events in the Asian boreal forests seem to have emissions reaching the top of the troposphere with sufficient amounts to influence the monthly concentration of CO.



**Figure 4.10** – Zonal mean of CO mixing ratios for the month of August 2013. The mean is calculated between 30N-90N and 30E-180E. Doted green line indicates the 2 pvu iso-surface

Knowing that most of the impact of the INJH method of injection is over the Asian boreal forests during the fire season (i.e. boreal summer), a zonal mean is created over the box defined in Fig. 4.9. This zonal mean is presented in Fig. 4.10, for the month of August 2013 as well. In the BASE simulation, the maximum of CO mixing ratios is well defined and located in the free troposphere, around 600 hPa and between 60°N and 70°N. This is certainly the result of the fixed injection profile used in this method. While it allows CO to be injected in the free troposphere, it probably misrepresents its vertical distribution, as the mean GFAS injection height at these latitudes is around 2000 m (around 800 hPa). The difference between the INJH and the BASE simulation further confirms this. In the INJH simulation, CO is much more abundant in the PBL than in the BASE simulation. The INJH also features an enhancement of CO mixing ratios above the dynamical tropopause identified as the 2 pvu iso-surface, probably due to the few events of extreme pyroconvection that are characteristic of high-latitude forest fires

(Nedelec et al., 2005).

As shown in section 4.2.4.1, the INJH simulation showed better results for the simulation of biomass burning plumes originating from boreal forests. This new method of injection of fire emissions also results in a more realistic repartitioning of CO over the Asian boreal region, but little to no impact elsewhere over the globe. The GFAS plume rise parameters have helped improving the representation of biomass burning emissions in MOCAGE, and this configuration of the model will now be used to assess the impact of biomass burning on the budget of CO in the upper troposphere.

#### 4.2.5 MOCAGE evaluation against IAGOS measurements

Before assessing the impact of biomass burning on upper tropospheric CO, the INJH MOCAGE simulation is compared against the IAGOS database for the year of 2013. The objective is to validate the ability of MOCAGE to represent realistic CO in UTLS altitude range. For this purpose we calculate statistical scores for the IAGOS measurements made during the cruise part of the flights to avoid sampling the free troposphere and the PBL happening during ascent or descent of the plane. Statistical scores used are the MNMB and FGE described in Appendix 4.2.8 for the same reasons given in Sect. 4.2.4.1. The results are presented in Table 4.4, where scores have been detailed for the three geographical regions defined in Fig. 4.1. Metrics are also being presented separately for the UT and the LS, the UT being considered between +15 and +75 hPa below the dynamical tropopause, and the LS between -15 and -150 hPa above it. In the CeAfr area, where the definition of the dynamical tropopause diverges, the 380 K iso-surface of potential temperature is used when the 2 PVU iso-surface becomes higher. In addition, the lower stratosphere is not sampled by the IAGOS planes in the tropics and thus scores are not presented for this area.

**Tableau 4.4** – Statistical scores comparing the INJH MOCAGE simulation against the IAGOS measurements in the three geographical regions defined in Fig 4.1. The annual mean of each score is written in bold, followed by the seasonal mean in brackets as follows (DJF | MAM | JJA | SON).

Region		MNMB	FGE	Correlation
NAtEur	LS	<b>0.07</b> ( 0.03   0.17   0.03   0.02)	<b>0.20</b> ( 0.16   0.24   0.22   0.14)	<b>0.67</b> ( 0.70   0.76   0.67   0.70)
	UT	<b>-0.12</b> (-0.04   -0.16   -0.13   -0.11)	<b>0.15</b> ( 0.12   0.17   0.16   0.12)	<b>0.66</b> ( 0.62   0.39   0.49   0.56)
cAsia	LS	<b>0.14</b> ( 0.07   0.18   0.19   0.08)	<b>0.21</b> ( 0.16   0.24   0.25   0.15)	<b>0.70</b> ( 0.78   0.78   0.65   0.78)
	UT	<b>-0.10</b> (-0.04   -0.20   -0.09   -0.11)	<b>0.16</b> ( 0.09   0.20   0.18   0.13)	<b>0.52</b> ( 0.71   0.55   0.40   0.67)
cAfr	UT	<b>-0.04</b> ( 0.06   0.20   -0.06   -0.11)	<b>0.15</b> ( 0.16   0.20   0.15   0.14)	<b>0.71</b> ( 0.70   0.89   0.58   0.89)

CHAPITRE 4. INJECTION ET REDISTRIBUTION DU MONOXYDE DE  
CARBONE DANS LA HAUTE TROPOSPHÈRE PAR LES FEUX DE BIOMASSE.

---

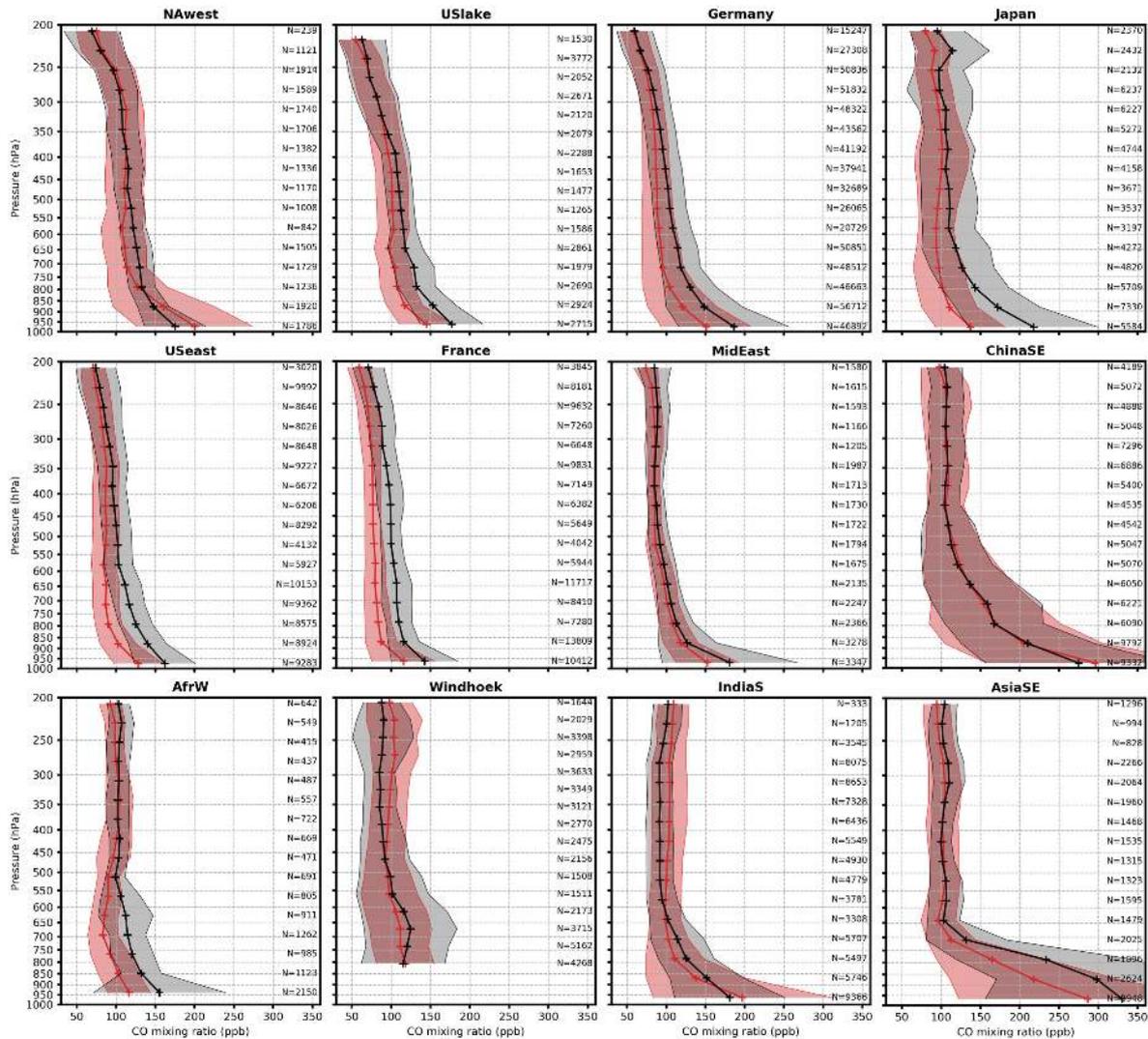
Overall the statistics indicate a good representation in MOCAGE of the CO mixing ratios both in the UT and the LS, with MNMB and FGE being close to zero in each of the regions. In both mid-latitude regions (EurNAt and cAsia), MNMB is slightly negative in the UT, and slightly positive in the LS. Correlation is good across all regions, except in MAM and JJA in EurNAt and cAsia. Except for this, scores do not appear to feature an annual cycle, with MNMB and FGE varying very slightly through the different seasons. MOCAGE seems to correctly represent both the upper tropospheric and lower stratospheric CO mixing ratios at northern mid-latitudes, as well as the upper tropospheric CO over central Africa.

**Tableau 4.5** – Description of used airport clusters for vertical profiles, as well as the total number of vertical profiles.

Cluster's name	Airports	N. profiles
NAwest	Seattle, Vancouver	215
USlake	Chicago, Detroit, Toronto	89
USEast	New York City, Boston, Washington D.C., Philadelphia	265
France	Paris (CDG and ORY)	318
Germany	Frankfort, Düsseldorf, Munich	1567
MidEast	Dubai, Abou Dabi, Muscat, Riyadh, Kuwait	158
Windhoek	Windhoek (Namibia)	215
ChinaSE	Taipei, Hong Kong, Xiamen	259
Japan	Narita, Nagoya, Osaka	196
AsiaSE	Bangkok, Ho Chi Minh	199
IndiaS	Chennai, Bombay, Hyderabad	210
AfrW	Niamey, Ouagadougou, Bamako	65
NSAm	Cayenne, Caracas	151

To complement the validation of MOCAGE behaviour in the UTLS, vertical profiles are computed using measurements during the ascent and descent phase of the aircraft. Airport clusters are formed by selecting nearby airports in order to take into account a larger number of flights. The airports considered in each cluster are described in Table 4.5, as well as the total number of flights taking off or landing at each of these airports or cluster of airports. These profiles are calculated by averaging measurements on fixed pressure levels (a total of 16 levels logarithmically spaced between the ground and the highest pressure reached during the ascent). Only measurements within 400 km of each

airport of the considered cluster are used for the profiles, to keep the profiles representative of a geographical region.



**Figure 4.11** – Comparison between IAGOS (in black) and MOCAGE INJH (in red) 2013 mean vertical CO profiles at the 12 airport clusters defined in table 4.5. The shaded grey and red areas represent respectively the standard deviation around the IAGOS and the MOCAGE mean. The number of data points used for each each pressure level mean is indicated on the right side of each profile.

The 12 annual mean vertical profiles are presented in Fig. 4.11. Profiles are presented from the ground to 200 hPa (12 km), but MOCAGE performances will mostly be discussed in the upper troposphere (300-200 hPa), which is the region of interest in this study. The same evaluation have been carried out seasonally, and are presented in the supplement to

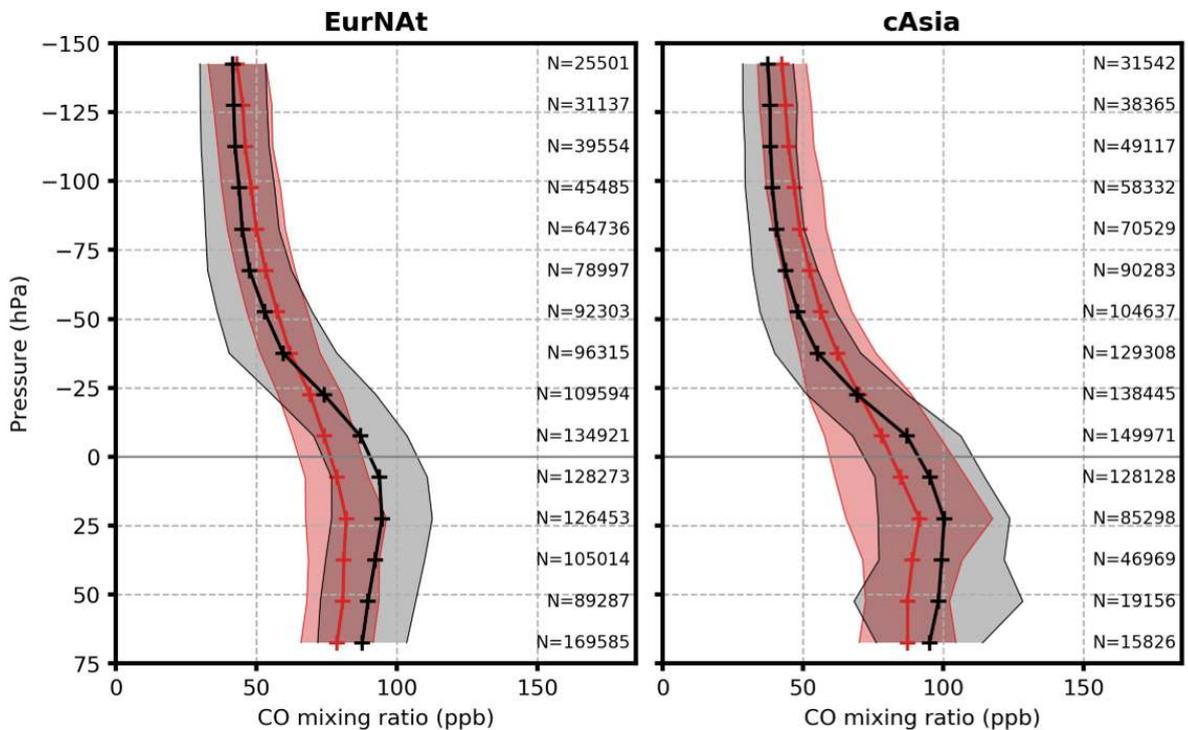
this article.

Looking at profiles representative of mid-latitudes (i.e. NAWest, USlake, USEast, France, Germany, and Japan), they show similarities when comparing MOCAGE CO mean mixing ratios to IAGOS. Around 500 hPa, MOCAGE CO mixing ratios are underestimated by 10 ppb or more, but become closer to the IAGOS mean profile upper in the atmosphere, except for the France cluster. In this specific cluster MOCAGE keeps underestimating upper tropospheric CO by 10 ppb. It could be due to an overestimation of the oceanic influence of less polluted air in MOCAGE. At mid latitudes, both the vertical gradient and concentrations of CO in the free and upper troposphere are captured by the model.

For the six other clusters, all located within the tropics, only the troposphere is sampled as the tropopause is above any commercial flight levels in these regions, resulting in almost no vertical gradient in CO concentrations. In the AfrW, AsiaSE, MidEast and ChinaSE clusters, MOCAGE mean vertical profiles matches very well the IAGOS ones with a similar variability. At the Windhoek and IndiaS clusters however, MOCAGE tends to overestimate CO mixing ratios above 400 hPa by almost 20 ppb. MOCAGE mean profile still falls within the standard deviation around IAGOS mean profile. These overestimations of upper tropospheric CO could be a conjunction of an overestimation of surface emissions (especially for IndiaS, where MOCAGE overestimates surface CO), and an overestimation of convective transport, since both of these profile show a deficit of simulated CO in the PBL.

Finally, to evaluate in detail MOCAGE representation of CO vertical gradient in the UT and the LS, cruise altitude measurements are used to produce vertical profiles with a pressure coordinate relative to the dynamical tropopause. The annual profiles are presented in Fig. 4.12, for the EurNat and cAsia regions. The transition from the UT to the LS can clearly be seen on the IAGOS mean profile, with CO mean mixing ratios falling from 90-100 ppb to below 50 ppb above the dynamical tropopause. This transition is also observable in the MOCAGE mean profile, but with a weaker vertical gradient. This results in a slight underestimation in the UT and a slight overestimation in the LS of CO

mixing ratios, which was already seen in the scores presented in Table 4.4. The variability observed, represented in the figure by the deviation around the mean, is correctly captured by MOCAGE as well. Similarly to the vertical profiles of Fig. 4.11, this evaluation has been performed for the four seasons of the year, and is presented in the supplement to this article.



**Figure 4.12** – Comparison between IAGOS (in black) and MOCAGE INJH (in red) for the 2013 mean vertical CO profiles in the two geographical areas EurNAt and cAsia defined in Fig. 4.1. Pressure is relative to the dynamical tropopause, defined as the 2 PVU iso-surface. The shaded grey and red areas represent respectively the standard deviation around the IAGOS and the MOCAGE mean. The number of data points used for each each pressure level is indicated on the right side of each profile.

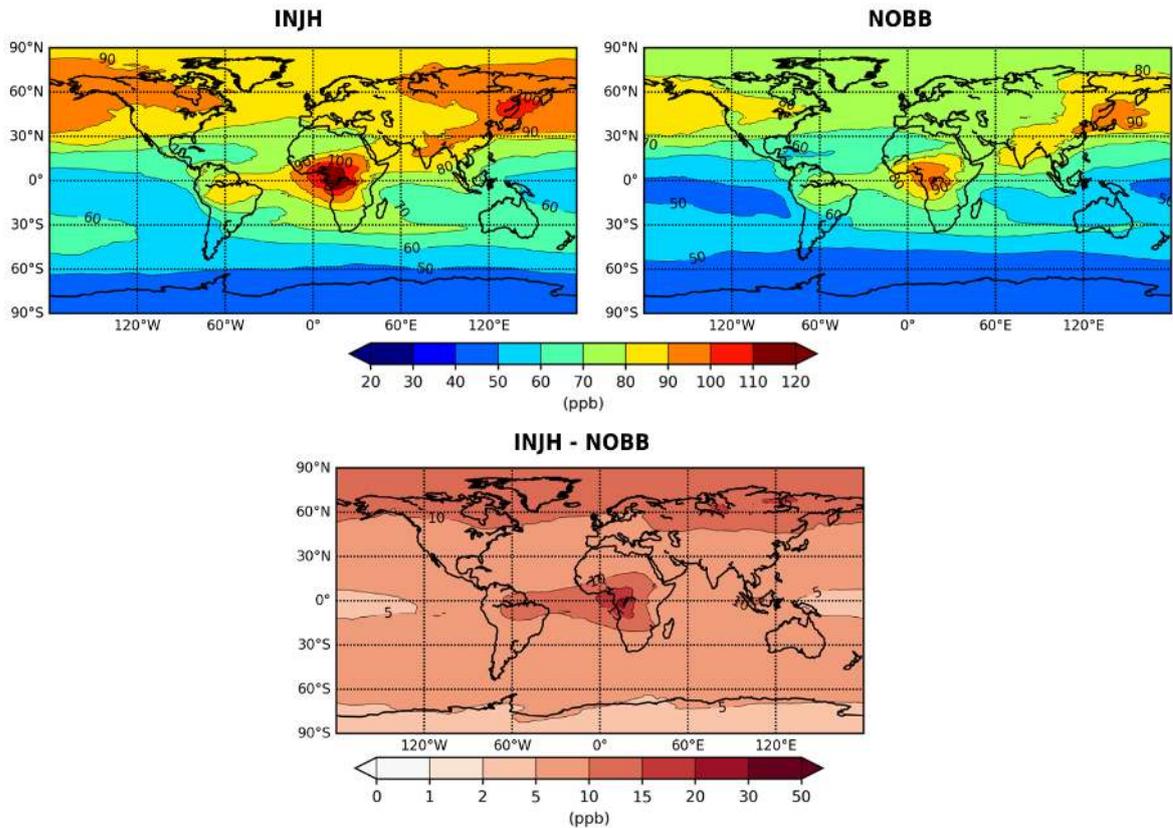
To summarize, MOCAGE chemistry transport model, when compared to IAGOS in-situ observations, is able to reproduce realistic CO mixing ratios from the free troposphere up to the upper troposphere and the lower stratosphere.

## 4.2.6 Global impact of biomass burning on upper tropospheric carbon monoxide

### 4.2.6.1 Global contribution

In order to assess the impact of biomass burning emissions on global CO concentration in the upper troposphere over the globe, the INJH and NOBB MOCAGE experiments are compared. As we want to investigate the contribution of biomass burning emissions on upper tropospheric composition, an upper tropospheric layer is defined in the MOCAGE simulation results. This layer is defined relative to the dynamical tropopause, ranging between -15 hPa to -65 hPa below the 2 PVU iso-surface, as done in previous studies analysing the UTLS with IAGOS data (Thouret et al., 2006; Cohen et al., 2018). Near the equator, where the potential vorticity rises exponentially, the dynamical definition is replaced by the 380 K potential temperature iso-surface whenever the 2 pvu iso-surface is higher. The MOCAGE results are then averaged in this layer. The estimation of the contribution of biomass burning is calculated by subtracting the results of the NOBB simulation from the INJH one.

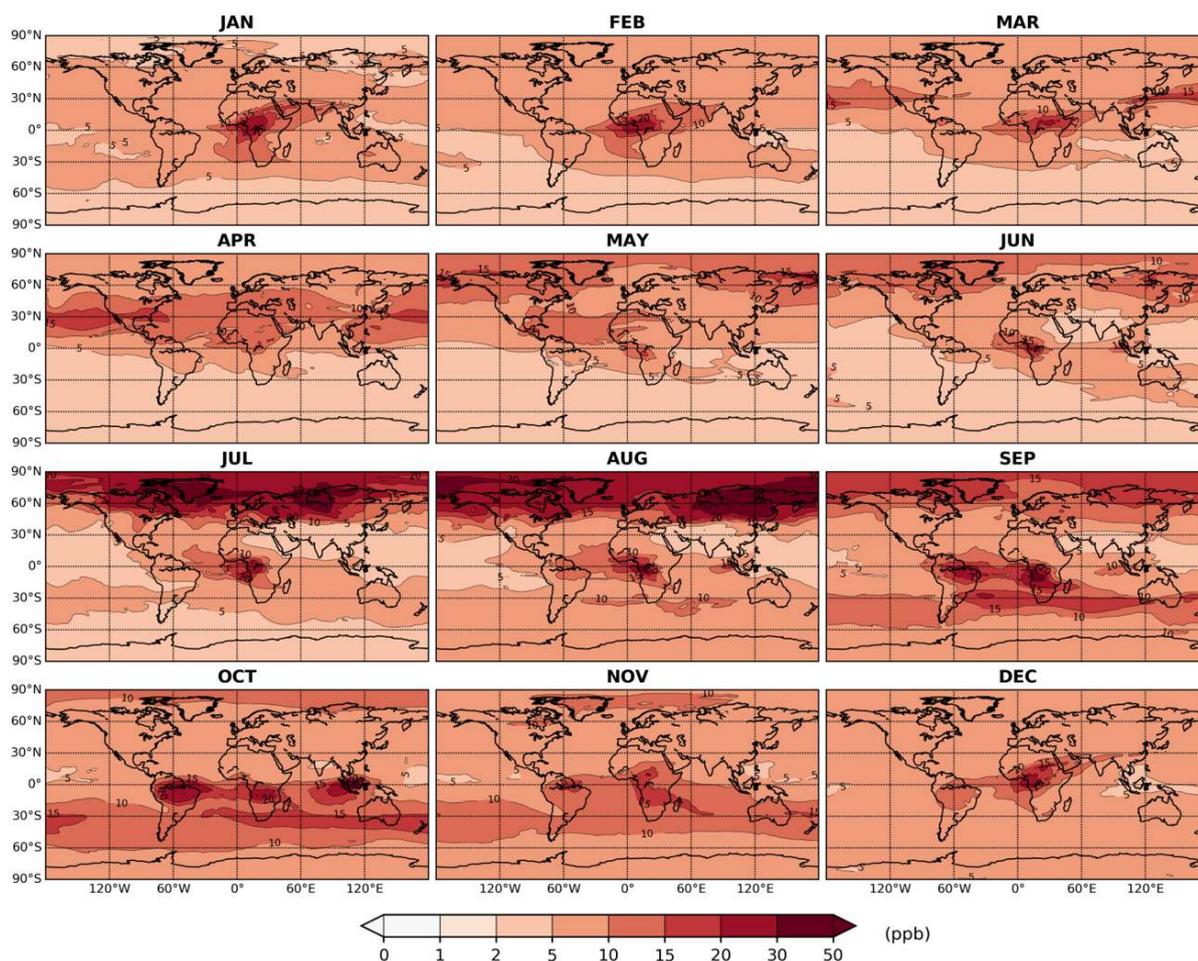
In Fig. 4.13 are displayed the MOCAGE annual mean CO mixing ratios for 2013 in the upper troposphere for the INJH and the NOBB experiments, as well as the calculated difference between the two. A similar map as the INJH but with IAGOS data could not be produced as a year of IAGOS flight is not enough to establish a representative climatology. However, the map looks consistent with the 15 year IAGOS CO climatology shown in Cohen et al. (2018). It appears that biomass burning emissions contribute globally to upper tropospheric CO. The averaged contribution can be estimated around 8 ppb for 2013, which is between 10 and 15 % of the CO mixing ratios at this altitude. Looking at the difference between the two simulations, 2 regions stand out with above average contribution of biomass burning, namely equatorial Africa and boreal latitudes, with locally more than 15 ppb of CO of difference between the two simulations. This is expected as these two regions represent respectively 42 % and 20 % of CO emissions from biomass



**Figure 4.13** – Map of 2013 upper tropospheric mean mixing ratios of CO for the INJH and NOBB simulations, as well as the absolute difference between the two.

burning in 2013, and transport pathways above these regions also favours injection of CO in the upper troposphere (Huang et al., 2014, 2012; Liu et al., 2013). As mentioned in Sect. 4.2.4.1, African emissions are transported to the upper troposphere thanks to deep convection, while a fraction of Boreal fires emissions are transported directly high in the troposphere by pyroconvection.

In Fig. 4.14 is presented the monthly mean evolution of the absolute difference of UT CO mixing ratios between the INJH and the NOBB simulations. It is worth noting that at all times of the year, biomass burning contributes to simulated UT CO mixing ratios, by more than 5 ppb. In an expected way, the contribution of biomass burning is higher directly above the most active open fire areas. Equatorial Africa is impacted all year round, north of the equator from December to May, and south of the equator from June to November, with a contribution of more than 15 ppb of CO. Boreal fires have the



**Figure 4.14** – Maps of the 2013 monthly mean difference in upper tropospheric CO mixing ratios in ppb between the INJH and the NOBB MOCAGE simulations.

strongest impact during the two most active months of forest fires (July and August), with an enhancement of up to 67 ppb of CO at boreal latitudes, which is approximately half of the CO in this region. Other regions being impacted are the Amazon forest during its fire season (September to November), and Indonesia in October. Even though the strongest impacts are local, the relatively long lifetime of CO (approximately 2 months) makes biomass burning emissions impacting UT air composition on a global scale.

#### 4.2.6.2 Sensitivity to regional emissions

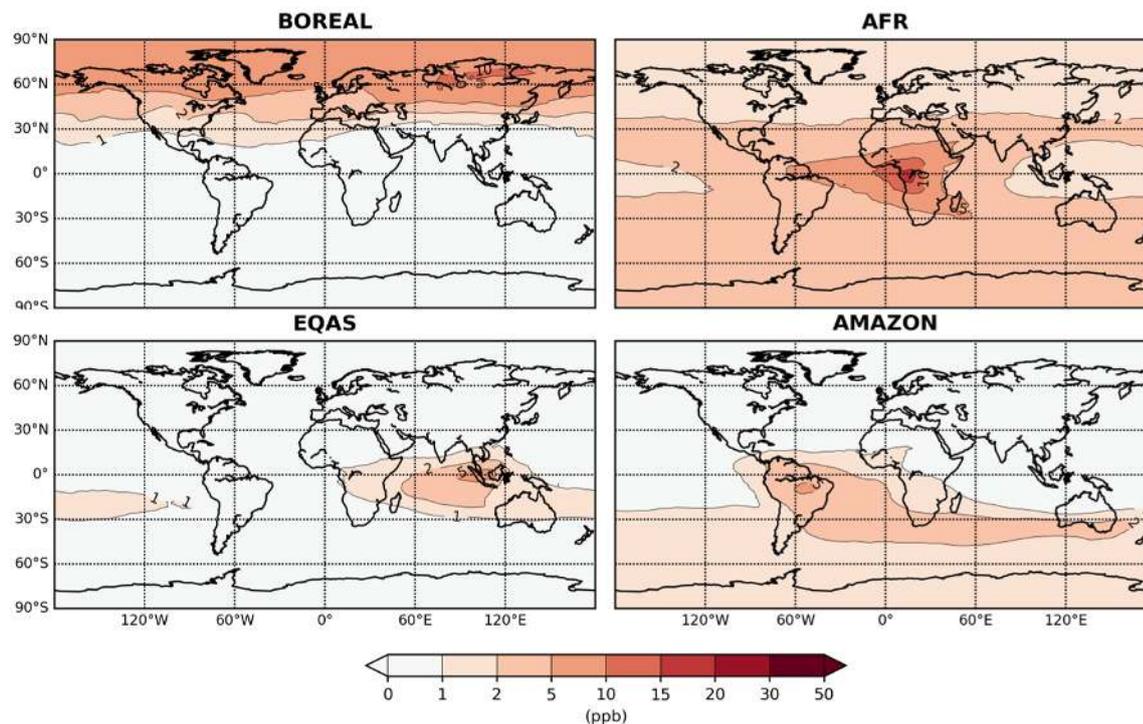
In order to clarify how each region affects the upper tropospheric CO, different variations the INJH simulation were performed. In each one, the biomass burning emissions

were activated only for one region of the globe with significant amount of CO emitted from biomass burning (see Fig. 4.4). The chosen regions are the following :

- AFR (NHSA and SHSA), with 124 TgCO in 2013 (42 %)
- BOREAL (BOAS and BONA), with 62 TgCO in 2013 (21 %)
- AMAZON (NHSA and SHSA), with 32 TgCO in 2013 (11 %)
- EQAS, with 17 TgCO in 2013 (6 %)

The resulting yearly means of upper tropospheric CO are presented in Fig. 4.15. As expected, impacts are greatest for African and Boreal fire emissions, since both of these regions are the main contributors to annual emissions overall. Due to atmospheric mixing, African emissions have a wider and global impact, with an enhancement between 2 and 5 ppb on upper tropospheric CO. Boreal fire emissions also have a strong impact with an enhancement of 5 to 10 ppb, but limited to boreal latitudes. Emissions from the Amazon forest, despite being slightly lower than usual in 2013 (Petetin et al., 2018), impact the upper troposphere by more than 5 ppb directly above the regions, but also a good part of the southern hemisphere through general circulation. Emissions over the maritime continent (EQAS) mostly have a local impact on the upper troposphere, for around 5 ppb of CO.

Three additional simulations were performed where emissions were limited to the SEAS or AUST regions, as well as a last one for the 5 remaining regions (TENA, CEAM, EURO, MIDE and CEAS), since they account for similar amount of CO emissions in 2013 (respectively for 22 Tg, 15 Tg and 23 Tg) as the EQAS region. The results are not shown since no noticeable effect was seen on upper tropospheric CO. However they allowed for a verification of this method by adding each CO contribution field and comparing them to the one presented in Fig. 4.13. Yearly mean results (not shown) matched closely within 1 ppb. Australian fires, despite being active almost all year long, might not have fast enough transport pathway to the upper troposphere, as convection is less prevalent than in equatorial Asia (Liu et al., 2013), and fires are more spread out geographically. SEAS



**Figure 4.15** – Maps of upper tropospheric CO yearly mean differences between the four sensitivity tests of the INJH simulation and the NOBB simulation, in ppb.

fire emissions on the other hand, despite being more important than in EQAS, do not impact the upper troposphere. This is probably due to the time of occurrence in 2013 of the fires. SEAS fires mostly occur from February to May, before the beginning of the south asian monsoon, whereas EQAS fires occurs from June to October, covering the whole monsoon season, when fast vertical transport is the most effective through deep convection. In conclusion, biomass burning emissions contribute globally to the upper tropospheric CO budget. The impact is stronger above the areas with the strongest fire emissions, but is non negligible elsewhere around the globe due to atmospheric transport.

#### 4.2.7 Summary and conclusions

Carbon monoxide is one of the key trace gases in the atmosphere, and one of its major sources is biomass burning. This study aimed at improving the understanding of the contribution of biomass burning emissions to upper tropospheric carbon monoxide, using global simulations performed with MOCAGE chemistry-transport model. We have

chosen a single year simulation, as a compromise between the need to study seasonality of biomass burning emissions and computational costs as simulations were carried out globally at a fine resolution and with frequent outputs. The year of 2013 was chosen as it was the most recent year with the largest number of validated IAGOS flights.

Firstly, GFAS latest products (injection height and plume top altitudes) were used in MOCAGE to improve the injection scheme for biomass burning emissions (INJH simulation), as they are expected to better represent the characteristics of wildfire plumes and injection in the upper part of the troposphere due to pyroconvection for a selection of large fire events. To validate the results of this simulation, IAGOS in-situ observations were used, in addition with SOFT-IO ancillary data on CO anomalies source attribution. Thanks to the SOFT-IO contribution estimations, 220 plumes were selected from the IAGOS flights of 2013, so as to validate the use of GFAS injection height and plume top altitude in MOCAGE. Results were analysed accordingly to the region of origin of the plume. The original plume representation in MOCAGE performs fairly well. Nevertheless, the new injection scheme greatly improves the modelled plumes from boreal wildfires. It was also shown the importance of capturing the variability of pyroconvection on CO vertical distribution at northern high latitudes, but not elsewhere, despite higher occurrences of wildfires. To go a step further, it would be interesting to investigate the sensitivity to the shape of the injection profile of the vertical distribution of CO. Based on the results of this study and previous ones that have shown that the importance of the transport through pyroconvection has been underestimated (Fromm et al., 2019), it appears that the use of products such as GFAS injection height can offer improvement in the representation of biomass burning plumes in atmospheric models, especially for mid to high latitudes.

Secondly, the INJH simulation was evaluated using all the available CO IAGOS measurements of 2013 before being used to study the contribution of biomass burning to upper tropospheric CO. The extensive IAGOS database has been used in two ways :

- Vertical profiles at different airport clusters were used to validate CO levels as well

as its gradient in the free and upper troposphere at specific locations.

- Overall statistical scores and vertical profiles calculation in the UT and LS confirmed MOCAGE is well suited to study upper tropospheric CO.

Finally, a global estimation of biomass burning emissions contribution to upper tropospheric CO is given, by comparing different simulations in which biomass burning emissions were activated or not in different regions of the globe. On average the contribution is 8 ppb in 2013, but gets up to 20 ppb above the regions with highest emissions (i.e. equatorial Africa and the boreal forests). Other regions where emissions have a significant impact are the Amazon forest and equatorial Asia. Overall, the amount of emitted CO seems to be the primary factor driving the upper tropospheric contribution, followed by the existence of fast vertical transport above or close to the burning areas (either deep convection or pyroconvection).

The conclusions of this work are of course limited to the year of 2013. As emissions from biomass burning this year are on the lower end, estimations made in this paper are expected to be as well. It would be interesting carry out similar analysis for years with high fire activity, or more generally investigate the role of inter-annual variability of fire emissions by extending the simulations. IAGOS database would still be valuable as it spans over more than 15 years for CO measurements. Before this, the first step will be to extend the analysis of the numerical simulations used in this paper, looking at wildfires impact on upper tropospheric chemistry. The ozone production especially will be investigated since CO is its main precursor at this altitude.

*Data availability.* The IAGOS time series (<https://doi.org/10.25326/06>), vertical profiles (<https://doi.org/10.25326/07>) and the SOFT-IO ancillary data (<https://doi.org/10.25326/3>) used in this study can all be found on the IAGOS data portal (<https://doi.org/10.25326/20>)

#### 4.2.8 Appendix A : Statistical score used for evaluation

The metrics used in this study for evaluation of modelled variables against in-situ observations are the modified normalized mean bias (MNMB), the fractional gross error

(FGE), as well as Pearson's linear correlation coefficient and the Spearman's rank correlation coefficient. The MNMB and the FGE have been chosen over the standard mean bias (MB) and root mean square error metrics (RMSE), as they have been prescribed for atmospheric air composition studies where differences between a model and observations can be larger than for other meteorological fields (Seigneur et al., 2000).

For a dataset of  $N$  observations points  $o_i$  and co-located modelled value  $f_i$ , the MNMB is defined as :

$$MNMB = \frac{2}{N} \sum_i^N \left( \frac{f_i - o_i}{f_i + o_i} \right) \quad (4.2)$$

It ranges from -2 to 2 and behaves symmetrically in regards of underestimation and overestimation.

$$FGE = \frac{2}{N} \sum_i^N \left| \frac{f_i - o_i}{f_i + o_i} \right| \quad (4.3)$$

The FGE ranges from 0 to 2, and unlike the RMSE it does not overweight data points with the highest observed values within a given dataset.

In order to assess the model capability to reproduce the observed spatio-temporal patterns, two types of correlation coefficient were used. Pearson's linear correlation coefficient is defined as follows :

$$r = \frac{1}{N} \frac{\sum_i^N (f_i - \bar{f})(o_i - \bar{o})}{\sigma_f \sigma_o} \quad (4.4)$$

with  $\bar{f}$  and  $\bar{o}$  the mean value of the forecast and the observed values, as well as  $\sigma_f$  and  $\sigma_o$  the associated standard deviation. This coefficient ranges between -1 for a perfect anti-correlation to 1, a perfect correlation. However, it assumes a linear relation between the forecast and the observations. This is not always the case for a global atmospheric composition model, at this is why Spearman's rank correlation coefficient  $r_s$  has also been used. It is defined as the following :

$$r_s = \frac{cov(r_{g_f}, r_{g_o})}{\sigma_{r_{g_f}} \sigma_{r_{g_o}}} \quad (4.5)$$

where  $rg_f$  and  $rg_o$  are the rank of the forecast and observed values within the dataset, with  $\sigma_{rg_f}$  and  $\sigma_{rg_o}$  being their associated standard deviations. Spearman's rank correlation is also bounded between -1 and 1, but does not make the assumption that the forecast and the observed values are linearly related. It particularly is valuable for the study of heavy-tailed distribution of observations, or distributions where strong outliers are expected.

*Author contributions.* MC, VM, VT and BJ designed the study and the model experiments. Simulations were carried out by MC with help from BJ. The IAGOS and SOFT-IO data were provided by VT and BS, with guidance on how to use them. Manuscript was written by MC and reviewed by VM, and commented, edited and approved by all the authors.

*Competing interests.* The authors declare that they have no conflict of interest

*Acknowledgements.* The authors acknowledge the strong support of the European Commission, Airbus, and the airlines (Lufthansa, Air-France, Austrian, Air Namibia, Cathay Pacific, Iberia, and China Airlines so far) who carry the MOZAIC or IAGOS equipment and have performed the maintenance since 1994. In its last 10 years of operation, MOZAIC has been funded by INSU-CNRS (France), Météo-France, Université Paul Sabatier (Toulouse, France), and Research Center Jülich (FZJ, Jülich, Germany). IAGOS has been additionally funded by the EU projects IAGOS-DS and IAGOS-ERI. We also wish to acknowledge our colleagues from the IAGOS team in FZJ, Jülich, for useful discussions. The MOZAIC-IAGOS database is supported by AERIS. The authors also thank the Midi-Pyrénées region and Météo-France for funding Martin Cussac's PhD.

## Chapitre 5

# Impact des émissions de feux de biomasse sur le bilan de l’ozone dans la haute troposphère

Après avoir étudié les émissions des feux de biomasse et comment ces dernières affectent les quantités de monoxyde de carbone dans la haute troposphère, on s’intéresse maintenant à leur impact sur la production d’ozone. Dans un premier temps, les simulations MOCAGE sont évaluées globalement à l’aide des données IAGOS de manière similaire au chapitre précédent, mais pour l’ozone et un autre de ces précurseurs les oxydes d’azotes. On s’intéresse ensuite à la production d’ozone dans les panaches de feux de biomasse, toujours identifiés dans la base de données IAGOS grâce à SOFT-IO. Pour finir, la production d’ozone et les régimes chimiques associés sont étudiés et quantifiés à l’échelle globale, à partir des résultats des simulations précédemment validées.

## 5.1 Évaluation de MOCAGE dans la haute troposphère.

Avant de pouvoir analyser la production d'ozone dans la haute troposphère due aux émissions de feux de biomasse, on cherche à évaluer le modèle MOCAGE. La simulation à évaluer est la simulation INJH, décrite dans le chapitre précédent, et dont les résultats sur le monoxyde de carbone ont déjà été validés. Toujours en utilisant la base de données IAGOS, on va de la même façon que dans le chapitre précédent, évaluer MOCAGE avec les mesures d'ozone, ainsi que des mesures de NO et de NO<sub>y</sub> effectuées lors de vols CARIBIC.

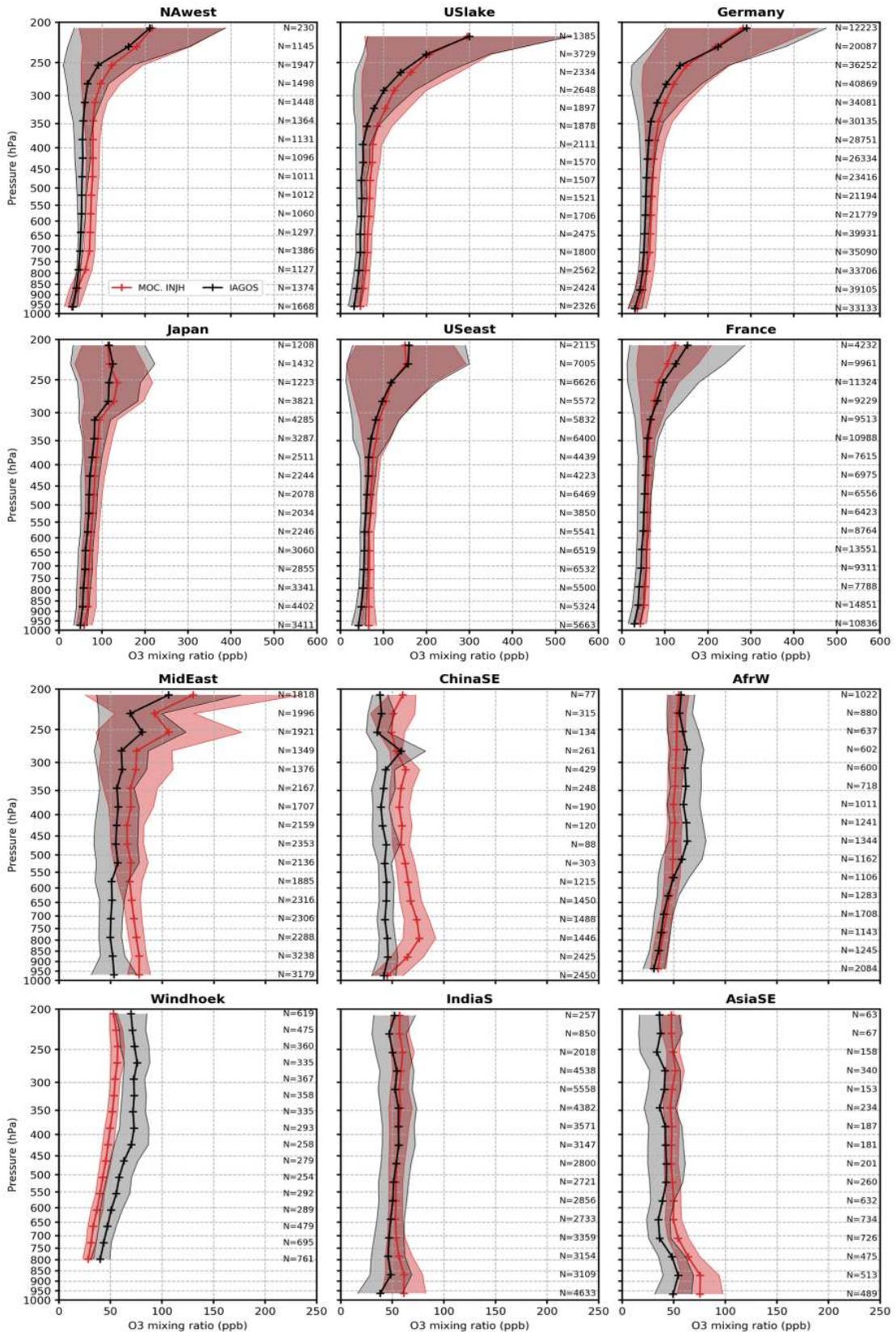
### 5.1.1 Évaluation de l'ozone.

#### 5.1.1.1 Profil verticaux d'ozone troposphérique.

Dans un premier temps, on cherche à estimer la représentation de l'ozone troposphérique en général dans MOCAGE. Pour cela, on utilise les données issues des phases ascendantes et descendantes des vols IAGOS, dont on se sert pour établir des profils verticaux moyens aux abords de différents clusters d'aéroports, définis dans le tableau 4.5. Les profils moyens d'ozone sont présentés figure 5.1.

Pour tous les clusters, les concentrations d'ozone mesurées sont quasi constantes sur la verticale dans la troposphère libre, ce qui est bien reproduit par MOCAGE. On observe cependant un biais positif d'une dizaine à une vingtaine de ppb pour la plupart des clusters d'aéroports (excepté AfrW, Windhoek et IndiaS). Ce biais positif semble être récurrent dans les modèles de chimie atmosphérique qui surestiment pour beaucoup l'ozone troposphérique dans l'hémisphère nord (Revell et al., 2018). Toujours d'après la même étude, ce biais devient négatif dans l'hémisphère sud, ce qui aussi le cas dans MOCAGE à Windhoek, qui est l'aéroport le plus au sud visité par des avions IAGOS. Les explications avancées sont la difficulté pour des modèles globaux de représenter certains processus physico-chimiques avec des résolutions horizontale et verticale trop grossières.

## 5.1. ÉVALUATION DE MOCAGE DANS LA HAUTE TROPOSPHÈRE.



**Figure 5.1** – Comme pour la figure 4.11, mais pour l’ozone, avec MOCAGE en rouge et IAGOS en noir.

Les émissions, notamment, ont souvent lieu à une échelle spatiale inférieure à une cellule du modèle, et subissent donc une dilution accrue dans ce dernier, ce qui mène généralement à une production d'ozone accrue. L'étude pointe aussi les limitations de la représentation simplifiée des COV non méthaniques de par leur grand nombre.

Dans les clusters des moyennes latitudes (i.e. NAWest, USlake, USEast, France, Germany, et Japan), qui sont aussi les plus fréquemment visités, l'UTLS est échantillonnée par les avions IAGOS avant d'arriver à leur altitude de croisière. La concentration moyenne d'ozone y augmente donc fortement, ainsi que sa variabilité, ce qui est bien représenté dans le modèle.

Pour résumer, les profils verticaux établis autour des aéroports les plus fréquemment desservis par des avions IAGOS permettent de valider la représentation de l'ozone troposphérique dans MOCAGE. Le modèle est bien capable de représenter la variation de l'ozone troposphérique sur la verticale avec les quelques biais systématiques évoqués précédemment. Cette évaluation a aussi été réalisée à l'échelle saisonnière et est présentée en annexe B. On y retrouve les mêmes aspect discutés sur les moyennes annuelles, avec donc une bonne représentation par MOCAGE des moyennes verticales d'ozone troposphérique.

#### 5.1.1.2 Évaluation de l'ozone dans l'UTLS

La zone d'intérêt de l'étude étant la haute troposphère, on utilise aussi les données acquises par les avions à leur altitude de croisière pour valider MOCAGE. Les données sont réparties dans les trois régions géographiques définies dans le chapitre précédent (voir figure 4.1). Des statistiques sont calculées en séparant l'UT de la LS pour évaluer les performances de MOCAGE dans chacune de ces couches. On utilise la définition dynamique de la tropopause qui correspond à la pression à laquelle le PV est égal à 2 PVU, majorée dans les tropiques par la pression de l'iso surface de 380 K. L'UT est considérée comme la couche comprise entre +15 et 75 hPa par rapport à la tropopause, et la LS entre -15 et -150 hPa. Les statistiques calculées sont les mêmes que pour le CO (MNMB, FGE et corrélation linéaire), et sont présentées dans le tableau 5.1.

**Tableau 5.1** – Statistiques comparant la simulation INJH aux données IAGOS dans les trois régions géographiques décrites sur la figure 4.1. Chaque score est présenté annuellement en gras, suivi des scores saisonniers (DJF | MAM | JJA | SON).

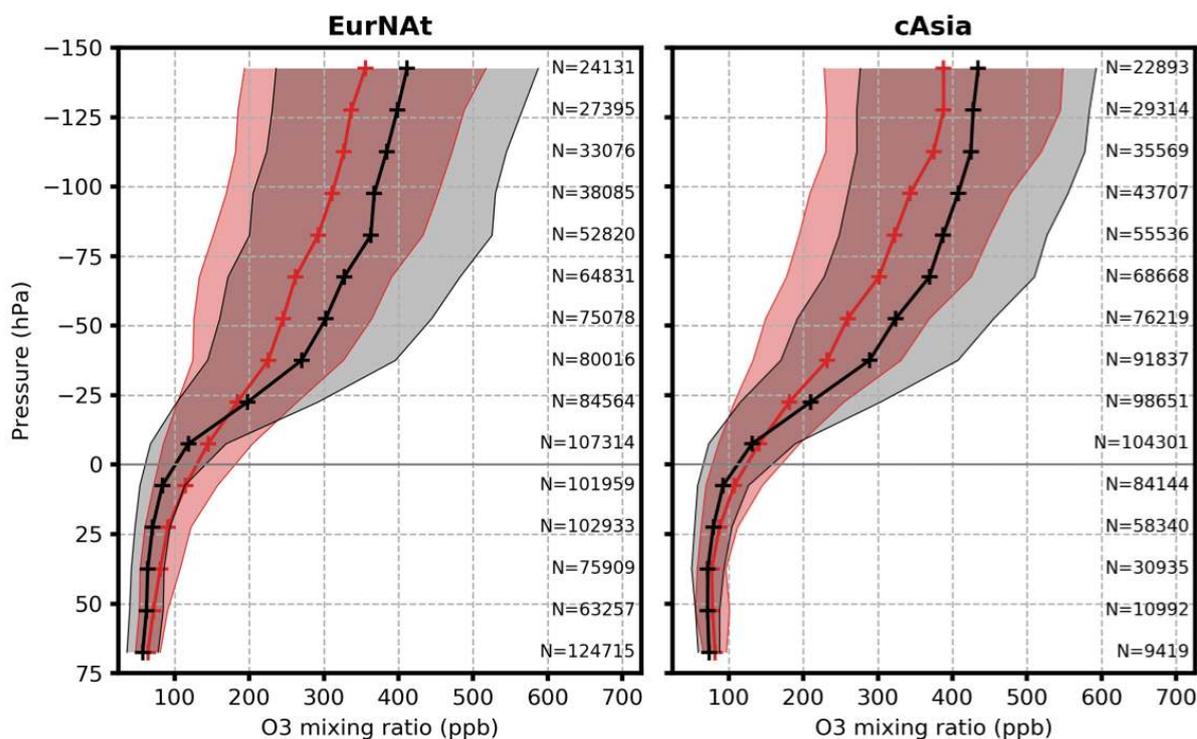
Région		MNMB	FGE	Correlation
NAtEur	LS	<b>-0.17</b> (-0.01   -0.02   -0.37   -0.37)	<b>0.30</b> ( 0.22   0.20   0.42   0.41)	<b>0.82</b> ( 0.86   0.85   0.86   0.71)
	UT	<b>0.21</b> (-0.17   0.34   0.01   0.12)	<b>0.29</b> ( 0.30   0.38   0.20   0.21)	<b>0.56</b> ( 0.43   0.28   0.41   0.55)
cAsia	LS	<b>-0.17</b> ( 0.37   -0.05   -0.46   -0.43)	<b>0.30</b> ( 0.37   0.18   0.48   0.45)	<b>0.81</b> ( 0.88   0.84   0.82   0.78)
	UT	<b>0.10</b> ( 0.37   0.39   -0.06   0.07)	<b>0.26</b> ( 0.37   0.42   0.19   0.20)	<b>0.30</b> ( 0.48   0.12   0.34   0.48)
cAfr	UT	<b>0.11</b> ( 0.17   0.20   0.08   0.06)	<b>0.20</b> ( 0.23   0.23   0.23   0.18)	<b>0.60</b> ( 0.55   0.39   0.14   0.37)

Les scores de MNMB et de FGE annuels sont bons dans l'UT et la LS quelle que soit la région considérée, avec des valeurs absolues toujours inférieures à 0.3. On remarque tout de même un biais positif dans l'UT qui devient négatif dans la LS, à l'inverse du CO (cf tableau 4.4), probablement pour des raisons similaires de mélange vertical accru par la résolution verticale et horizontale assez grossière. Pour la corrélation, en revanche, on distingue un comportement bien distinct entre l'UT où les corrélations sont de l'ordre de 0.5, et la LS où ces dernières sont plus élevées, avec des valeurs supérieures à 0.8. Cela s'explique facilement par le gradient vertical d'ozone dans la LS, qui, étant bien plus important que dans l'UT, facilite de meilleurs scores de corrélation. En regardant les statistiques trimestrielles, on remarque un léger cycle saisonnier, avec de meilleurs scores dans l'UT pendant les saisons JJA et SON, et dans la LS pendant les saisons DJF et MAM.

Pour compléter cette évaluation de l'ozone dans l'UTLS, et notamment du gradient vertical dans cette couche de l'atmosphère, les mesures à altitude de croisière sont utilisées pour construire des profils verticaux moyens relatifs à la tropopause dans les régions EurNat et cAsia. Pour la définition de la tropopause, on procède de la même manière que pour les statistiques, et on utilise comme coordonnée verticale la pression relative à cette dernière. Les profils ainsi produits sont présentés sur la figure 5.2. On y retrouve le même comportement de MOCAGE par rapport à IAGOS avec les profils verticaux aux aéroports, avec une légère surestimation de l'ozone dans l'UT et une sous-estimation dans la LS. La transition de l'UT avec des concentrations d'ozone inférieures à 100 ppb vers la LS et des concentrations supérieures à 300 ppb est clairement visible à la fois dans les mesures et le modèle. On note tout de même un gradient vertical maximal juste au-dessus de la tropopause, qui est un peu plus faible dans MOCAGE, expliquant les concentrations sous-estimées dans la LS. La variabilité quant à elle, indiquée par l'écart-type autour de la moyenne, est bien représentée par MOCAGE. Ces résultats peuvent être comparés à ceux de Gaudel et al. (2015), qui a effectué une analyse similaire entre les données IAGOS et la réanalyse MACC (pour *Monitoring Atmospheric Composition and Climate*). Il y

## 5.1. ÉVALUATION DE MOCAGE DANS LA HAUTE TROPOSPHÈRE.

est trouvé un biais similaire pour l’ozone dans la LS, avec une sous-estimation de 60 ppb, mais supérieur par rapport à MOCAGE dans l’UT, avec une surestimation de l’ordre de 50 ppb. L’hypothèse avancée est aussi celle d’un mélange vertical trop important dans la réanalyse MACC, principalement à cause de la résolution verticale.



**Figure 5.2** – Comparaison entre les profils verticaux moyens d’O<sub>3</sub> référencés par rapport à la tropopause dynamique, sur l’année 2013, entre la simulation MOCAGE INJH (en rouge) et les données IAGOS (en noir) sur les zones géographiques EurNat et cAsia définies sur la figure 4.1. Les aires colorées représentent les écarts-type autour de la moyenne. Le nombre de points utilisé à chaque niveau de pression est indiqué sur la partie droite du profil.

Pour conclure cette partie de validation, la simulation INJH comparée aux mesures in-situ IAGOS montre une bonne représentation moyenne de l’ozone dans la troposphère libre et l’UTLS. Cette comparaison a aussi permis de mettre en avant des biais légers de MOCAGE, comme une surestimation des niveaux d’ozones dans la haute troposphère.

On note aussi que cette validation est principalement effectuée dans l’hémisphère nord et les tropiques. Le manque de données in-situ dans l’hémisphère sud est une problématique récurrente pour la validation de modèles globaux, que ne permet pas de combler la

base de données IAGOS.

### 5.1.2 Évaluation des espèces azotées.

Après une évaluation en détail de MOCAGE pour les espèces CO et O<sub>3</sub> grâce aux données IAGOS, on s'intéresse maintenant aux oxydes d'azotes et leurs réservoirs, afin de compléter la validation de la composition de la haute troposphère. Pour cela, on dispose des mesures de NO et des oxydes d'azotes totaux NO<sub>y</sub> effectuées lors des vols CARIBIC de 2013. Pour rappel, les oxydes d'azotes totaux sont la somme des oxydes d'azotes et de leurs espèces réservoir (NO<sub>y</sub>=NO<sub>x</sub>+NO<sub>z</sub>). Les informations générales de chaque vol ayant des mesures de l'une de ces espèces sont détaillées dans le tableau 5.2. On note que sur les 27 vols concernés cette année-là, 12 ont effectués des mesures de NO, et 23 des mesures de NO<sub>y</sub>. Les différents vols couvrent tous les mois de l'année, hormis le mois de janvier, et empruntent, pour la majorité, des routes aériennes habituelles des vols IAGOS, hormis entre l'Europe et l'Afrique.

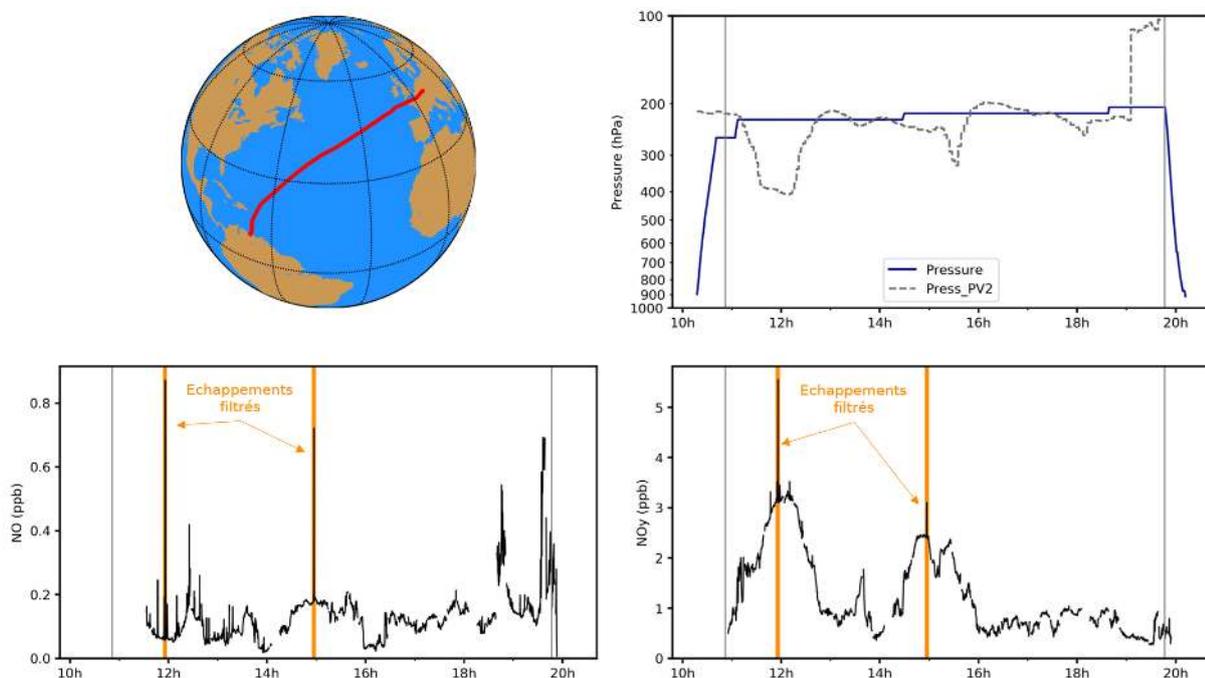
A la différence de l'ozone et du monoxyde de carbone, il existe des sources locales de NO et donc de NO<sub>y</sub> que sont les émissions par l'aviation et par les éclairs. Ces sources sont représentées dans MOCAGE, mais de manière moyenne pour l'aviation. Dans la réalité, les routes aériennes, qui sont assez denses, font que les émissions les plus récentes des avions (ou échappements) causent des anomalies de NO et NO<sub>y</sub> très fortes (plusieurs ppb) mais surtout très ponctuelles (5 à 10 km d'extension). Ces anomalies doivent donc être éliminées avant de pouvoir procéder à la comparaison entre les résultats de MOCAGE et les données CARIBIC. La méthode employée par Gressent et al. (2014) sur des mesures IAGOS de NO<sub>y</sub> est ici adaptée pour filtrer les mesures de NO et de NO<sub>y</sub> de CARIBIC. Il s'agit de repérer et supprimer les anomalies de NO<sub>y</sub> d'une amplitude d'au moins 0.5 ppb et d'une extension inférieure à 20 km. Un exemple de mesures effectuées lors du vol n° 6 est présenté sur la figure 5.3, ainsi qu'une illustration du filtrage réalisé. On y voit deux anomalies fortes dans les mesures de NO et de NO<sub>y</sub>, identifiées donc comme issues d'échappements récents d'autres avions. Les concentrations mesurées de NO restent très bruitées malgré

## 5.1. ÉVALUATION DE MOCAGE DANS LA HAUTE TROPOSPHÈRE.

**Tableau 5.2** – Présentation des vols CARIBIC de l'année 2013 utilisés pour la validation de NO et NO<sub>y</sub>. La disponibilité de mesures pour une espèce donnée sur un vol est marquée par un x. Un numéro est attribué aux vols arbitrairement pour faciliter leur dénomination.

Numéro de vol	Date	Décollage	Atterrissage	NO	NO <sub>y</sub>
1	21 Février	Kuala Lumpur	Bangkok	-	x
2	21 Février	Bangkok	Frankfurt	-	x
3	21 Mars	Bangkok	Kuala Lumpur	-	x
4	21 Mars	Kuala Lumpur	Bangkok	-	x
5	21 Mars	Bangkok	Frankfurt	-	x
6	26 Avril	Frankfurt	Caracas	x	x
7	26 Avril	Caracas	Frankfurt	x	x
8	27 Avril	Frankfurt	Toronto	x	x
9	27 Avril	Toronto	Frankfurt	x	x
10	08 Juin	Caracas	Frankfurt	x	x
11	09 Juin	Frankfurt	Vancouver	x	x
12	09 Juin	Vancouver	Frankfurt	x	x
13	22 Août	Frankfurt	Vancouver	x	-
14	18 Septembre	Frankfurt	Caracas	x	-
15	19 Septembre	Frankfurt	Vancouver	x	-
16	17 Octobre	Frankfurt	Vancouver	-	x
17	17 Octobre	Vancouver	Frankfurt	-	x
18	07 Novembre	Frankfurt	Seoul	-	x
19	08 Novembre	Seoul	Frankfurt	-	x
20	08 Novembre	Frankfurt	Bangkok	-	x
21	09 Novembre	Bangkok	Kuala Lumpur	-	x
22	09 Novembre	Kuala Lumpur	Bangkok	-	x
23	03 Décembre	Frankfurt	Seoul	x	-
24	04 Décembre	Seoul	Frankfurt	-	x
25	04 Décembre	Frankfurt	Bangkok	x	x
26	05 Décembre	Kuala Lumpur	Bangkok	-	x
27	05 Décembre	Bangkok	Frankfurt	-	x

ce filtrage, probablement à cause du bruit instrumental non négligeable au regard des concentrations mesurées (voir partie 2.1.2).



**Figure 5.3** – Exemple de mesures de NO et de NO<sub>y</sub> lors du vol CARIBIC n°6 de Francfort à Caracas. La partie colorée en orange dénote les échappements d’avions traversés lors du vol CARIBIC qui sont donc exclus pour les comparaisons ultérieures avec MOCAGE.

Une fois les données ainsi préparées, on procède de la même façon que dans les parties précédentes pour interpoler les sorties de MOCAGE sur les trajectoires des avions CARIBIC. En revanche, les vols sont trop éloignés dans le temps et dans l’espace pour pouvoir réaliser des statistiques globales ou des profils verticaux sur plusieurs d’entre eux. On calcule donc les statistiques indépendamment pour chaque vol complet, ainsi que sur la partie des mesures faite dans la haute troposphère. Ces statistiques sont présentées dans les tableaux 5.3 et 5.4, respectivement pour le NO et les NO<sub>y</sub>.

A commencer par les mesures de NO, présentées dans le tableau 5.3, on remarque tout de suite une sous-estimation de MOCAGE représentée par un score de MNMB négatif pour tous les vols. Cela s’accompagne de valeurs de FGE assez importantes. La corrélation est assez variable sur l’ensemble des vols. Si l’on regarde les statistiques sur l’UT seulement, on ne constate que peu de changements. Seule la corrélation diminue, à cause de la gamme

## 5.1. ÉVALUATION DE MOCAGE DANS LA HAUTE TROPOSPHÈRE.

**Tableau 5.3** – Statistiques comparant les mesures CARIBIC de NO aux sorties du modèle MOCAGE. Chaque score est donné pour l’intégralité du vol, puis entre parenthèses pour les mesures faites dans la haute troposphère uniquement (si existantes).

Numéro de vol	Moyenne CARIBIC (ppb)	Moyenne MOCAGE (ppb)	MNMB	FGE	Corrélation
6	0.125 (0.110)	0.071 (0.047)	-0.47 (-0.57)	0.62 (0.76)	0.02 (-0.29)
7	0.056 (-)	0.045 (-)	-0.37 (-)	0.66 (-)	0.45 (-)
8	0.131 (0.115)	0.079 (0.053)	-0.48 (-0.66)	0.52 (0.67)	0.48 (0.76)
9	0.083 (-)	0.032 (-)	-0.75 (-)	0.82 (-)	0.76 (-)
10	0.105 (0.044)	0.042 (0.016)	-0.89 (-0.80)	0.95 (0.91)	0.88 (-0.13)
11	0.138 (0.065)	0.089 (0.050)	-0.35 (-0.16)	0.46 (0.46)	0.63 (-0.21)
12	0.105 (0.065)	0.056 (0.049)	-0.45 (-0.19)	0.64 (0.41)	0.30 (-0.16)
13	0.079 (0.088)	0.030 (0.021)	-0.62 (-0.75)	0.72 (0.83)	0.40 (0.64)
14	0.161 (0.159)	0.052 (0.053)	-0.87 (-0.84)	0.87 (0.84)	0.32 (0.34)
15	0.093 (0.053)	0.044 (0.034)	-0.68 (-0.39)	0.68 (0.40)	0.56 (-0.06)
23	0.091 (-)	0.018 (-)	-1.11 (-)	1.13 (-)	0.86 (-)
25	0.118 (0.110)	0.052 (0.051)	-0.75 (-0.70)	0.90 (0.88)	0.13 (0.07)
Médiane	0.105 (0.088)	0.049 (0.049)	-0.65 (-0.66)	0.70 (0.76)	0.46 (-0.06)

de concentrations plus restreinte de NO dans la haute troposphère. Ces performances de MOCAGE sont à mettre en perspective avec les concentrations très faibles de NO à cette altitude, associées à sa forte réactivité et sa faible durée de vie. Pour évaluer plus précisément le modèle pour le NO, des mesures additionnelles de NO<sub>2</sub> (ou de NO<sub>x</sub>) permettraient de préciser la répartition entre ces deux espèces.

C’est pour cela que les statistiques pour les NO<sub>y</sub> présentées dans le tableau 5.4 sont plus pertinentes. A noter que dans MOCAGE, les espèces comprises dans la famille NO<sub>y</sub> sont : les NO<sub>x</sub>, HNO<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, HNO<sub>4</sub>, HONO, le PAN, et certaines familles de composés organiques. On retrouve un biais globalement négatif de MOCAGE, même si les valeurs de MNMB sont plus proches de zéro que pour le NO. La FGE est toujours un peu élevée, avec une valeur médiane de 0.69. En revanche, ces deux scores sont bien meilleurs quand calculés sur les mesures dans l’UT uniquement. Cela semble être du à une sous-estimation assez forte des valeurs de NO<sub>y</sub> dans la basse stratosphère. En effet, celles ci sont bien supérieures dans la LS que dans l’UT lors des vols IAGOS, mais seulement dans une moindre mesure dans MOCAGE (voir les valeurs moyennes de NO<sub>y</sub> dans le tableau 5.4).

CHAPITRE 5. IMPACT DES ÉMISSIONS DE FEUX DE BIOMASSE SUR LE  
BILAN DE L'OZONE DANS LA HAUTE TROPOSPHÈRE

---

**Tableau 5.4** – Comme pour le tableau 5.3, mais pour les  $\text{NO}_y$ .

Numéro de vol	Moyenne CARIBIC (ppb)	Moyenne MOCAGE (ppb)	MNMB	FGE	Corrélation
1	0.415 (0.415)	0.825 (0.825)	0.68 (0.68)	0.68 (0.68)	0.63 (0.63)
2	1.435 (0.787)	0.990 (0.633)	-0.25 (-0.07)	0.47 (0.73)	0.57 (-0.75)
3	0.842 (0.842)	0.719 (0.719)	-0.41 (-0.41)	0.59 (0.59)	0.83 (0.83)
4	0.862 (0.862)	0.349 (0.349)	-0.87 (-0.87)	0.88 (0.88)	-0.58 (-0.58)
5	1.981 (0.786)	1.032 (0.787)	-0.37 (0.03)	0.57 (0.35)	0.88 (0.10)
6	1.229 (0.694)	0.885 (0.612)	-0.25 (-0.15)	0.36 (0.34)	0.89 (0.50)
7	2.214 (0.871)	0.996 (0.477)	-0.68 (-0.52)	0.69 (0.55)	0.95 (0.00)
8	2.126 (1.209)	1.118 (0.891)	-0.51 (-0.29)	0.52 (0.31)	0.90 (0.59)
9	2.950 (1.120)	1.200 (0.824)	-0.78 (-0.29)	0.78 (0.29)	0.90 (0.07)
10	1.343 (0.839)	0.715 (0.605)	-0.40 (-0.26)	0.56 (0.46)	0.67 (0.26)
11	3.103 (1.040)	1.088 (0.951)	-0.80 (-0.07)	0.83 (0.18)	0.82 (0.41)
12	2.816 (0.881)	1.004 (0.851)	-0.76 (-0.01)	0.80 (0.18)	0.86 (-0.04)
16	1.385 (0.671)	0.523 (0.454)	-0.75 (-0.20)	0.81 (0.39)	0.79 (0.56)
17	1.309 (0.541)	0.522 (0.337)	-0.78 (-0.34)	0.78 (0.38)	0.76 (0.86)
18	1.562 (0.779)	0.566 (0.565)	-0.81 (-0.26)	0.85 (0.38)	0.10 (0.19)
19	0.864 (0.627)	0.569 (0.635)	-0.24 (0.30)	0.61 (0.58)	0.51 (0.82)
20	0.281 (0.239)	0.525 (0.563)	0.59 (0.75)	0.67 (0.83)	0.06 (0.15)
21	0.254 (0.254)	0.567 (0.564)	0.68 (0.67)	0.70 (0.69)	0.47 (0.48)
22	0.295 (0.295)	0.453 (0.453)	0.47 (0.47)	0.55 (0.55)	0.48 (0.48)
24	1.765 (0.387)	0.534 (0.546)	-0.95 (0.36)	1.04 (0.39)	0.24 (-0.12)
25	0.724 (0.495)	0.444 (0.441)	-0.38 (-0.14)	0.70 (0.63)	0.05 (-0.17)
26	0.474 (0.480)	0.742 (0.744)	0.45 (0.44)	0.45 (0.44)	0.23 (0.22)
27	1.170 (0.529)	0.466 (0.412)	-0.62 (-0.19)	0.78 (0.51)	0.41 (-0.44)
Médiane	1.309 (0.694)	0.715 (0.605)	-0.41 (-0.14)	0.69 (0.46)	0.63 (0.22)

La corrélation est bonne sur les vols complets, mais chute quand calculées uniquement dans l'UT, pour les mêmes raisons que pour les autres espèces évaluées comme le CO et l'O<sub>3</sub> (i.e. un gradient vertical très faible).

Pour conclure, cette validation des espèces azotées dans MOCAGE met en avant des performances un peu plus faibles du modèle que pour le CO ou l'O<sub>3</sub>. On note un biais négatif du modèle pour le NO, mais bien meilleur pour le NO<sub>y</sub>, à retenir pour l'interprétation des résultats à suivre. Dans notre zone d'intérêt qu'est la haute troposphère, les oxydes d'azotes totaux sont en moyenne bien représentés, indiquant une bonne représentation des espèces réservoir des oxydes d'azotes NO<sub>z</sub> et, comme cela sera détaillé dans la partie suivante, du PAN, qui en est le principal contributeur dans l'UT.

## 5.2 Production d'ozone dans les panaches de feux de biomasse.

Les panaches de feux de biomasse présentent généralement des niveaux élevés de certaines espèces réactives, favorisant certaines réactions chimiques au cours de leur transport. Une partie non négligeable de la production photochimique d'ozone due aux feux de biomasse a lieu au cours de leur vieillissement dans les panaches (Jaffe and Wigder, 2012).

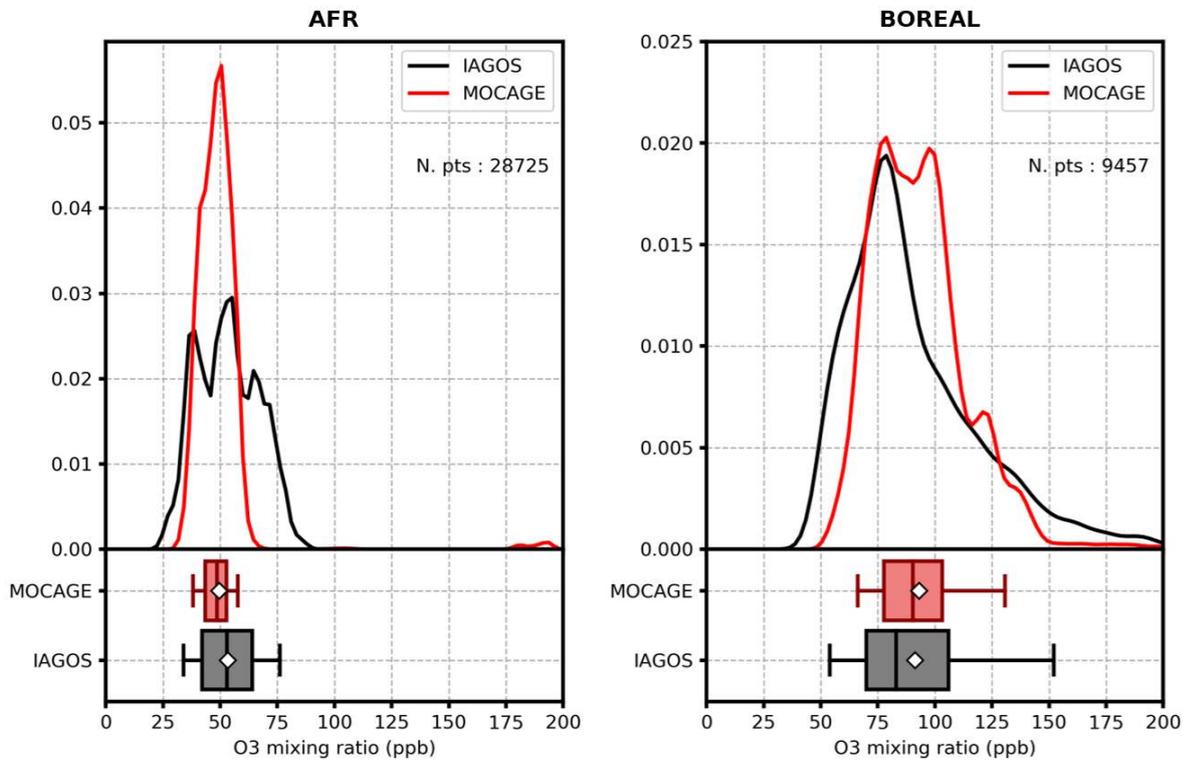
Après avoir évalué la représentation de l'ozone dans les panaches de feux de biomasse par MOCAGE, la méthode utilisée pour y estimer la production d'ozone est détaillée. Enfin, les résultats sont présentés et discutés au regard de précédentes études utilisant des méthodes similaires.

### 5.2.1 Évaluation de l'ozone dans les panaches

Afin d'estimer la production d'ozone et son efficacité dans les panaches de feux de biomasse, les résultats de simulations de MOCAGE sont utilisés. Dans un premier temps, cela implique d'évaluer MOCAGE dans sa représentation de la composition chimique desdits panaches. Cette évaluation a déjà été effectuée pour le CO dans la partie 4.2.4.1, et la même méthode est donc utilisée pour l'O<sub>3</sub>.

Pour rappel, l'outil SOFT-IO (voir partie 4.2.3.1.2) a été utilisé pour identifier des panaches de feux de biomasse associés à des anomalies de CO dans la base de données IAGOS, sur l'année 2013. Au total 220 panaches ont été identifiés, originaires de différentes régions du globe (voir tableau 4.1). En comparant MOCAGE aux mesures IAGOS dans ces panaches, on peut évaluer ses performances. Pour commencer, la comparaison est faite pour les panaches provenant de feux d'Afrique ou des régions boréales. La distribution des concentrations d'ozone dans ces panaches est présentée sur la figure 5.4, sous forme de fonction de densité de probabilité et de graphiques en boîtes à moustaches, pour les régions AFR et BOREAL, qui sont à la fois les plus échantillonnées sur l'année 2013, mais

aussi les principales émettrices. La simulation comparée aux observations ici est toujours la simulation INJH.



**Figure 5.4** – Fonction de densité de probabilité et boîtes à moustaches comparant les concentrations d'O<sub>3</sub> de IAGOS (en noir) et simulées par MOCAGE (en rouge) dans les panaches de feux de biomasse originaires des régions AFR (à gauche) et BOREAL (à droite). Les moustaches dénotent les 5<sup>e</sup> et 95<sup>e</sup> centiles, et le losange blanc la moyenne.

Pour les panaches originaires du continent africain, on remarque des niveaux d'ozone mesurés assez faibles, entre 25 et 85 ppb environ. La distribution est encore plus resserrée pour les résultats de la simulation MOCAGE, entre 30 et 70 ppb. La distribution reste tout de même assez symétrique, que ce soit dans IAGOS ou dans MOCAGE. Une variabilité plus faible est un biais typique de la modélisation globale, due à un mélange induit par la taille des cellules du modèle. Cela est particulièrement vrai aux tropiques, là où les cellules sont les plus grandes, et pour l'étude des panaches de feux de biomasse qui sont souvent assez localisés dans la réalité. Concernant les valeurs moyenne et médiane, MOCAGE sous-estime légèrement les concentrations en O<sub>3</sub> par rapport aux mesures IAGOS, malgré un biais global plutôt positif établi précédemment (voir tableau 5.1). Cela s'explique aussi

## 5.2. PRODUCTION D'OZONE DANS LES PANACHES DE FEUX DE BIOMASSE.

par un mélange des panaches avec leur environnement peut être surestimé dans le modèle, limitant la production d'ozone dans les panaches eux-mêmes.

La distribution des mesures IAGOS d'O<sub>3</sub> dans les panaches issus des zones boréales est un peu différente. Des concentrations plus importantes sont observées, avec des valeurs moyennes proches de 90 ppb. La variabilité aussi est plus grande que pour les panaches Africains, à cause de la variabilité naturelle que l'on retrouve aux moyennes et hautes latitudes dans la haute troposphère. Cette variabilité est assez bien reproduite par MOCAGE, même si légèrement inférieure à celle observée. En moyenne, MOCAGE surestime d'une dizaine de ppb les concentrations d'ozone dans les panaches. Cette surestimation est à comparer avec le biais général de MOCAGE aux moyennes et hautes latitudes, qui est du même ordre de grandeur (voir tableau 5.1). Ainsi, si l'on soustrait ce biais global d'environ 10 ppb, les résultats indiquent une bonne représentation de l'ozone dans les panaches issus des forêts boréales par MOCAGE.

Pour compléter cette évaluation, des statistiques sont calculées comparant les résultats de MOCAGE aux mesures IAGOS pour les panaches issus des deux régions déjà mentionnées, mais aussi des autres régions du globe (dénomé OTHER) et enfin sur l'ensemble des panaches (dénomé ALL). Comme pour la validation effectuée dans l'article (partie 4.2.4.1 et tableau 4.3), les statistiques choisies sont encore le coefficient de corrélation de Spearman, le MNMB et la FGE (détails données partie 4.2.8). Ces statistiques sont présentées dans le tableau 5.5.

**Tableau 5.5** – Statistiques comparant les concentration d'ozone de la simulation INJH à celle mesurées de la base de données IAGOS dans les panaches de feux de biomasse.

Région d'origine (N. panaches)	Corrélation Spearman	MNMB	FGE
AFR (95)	0.53	-0.06	0.23
BOREAL (51)	0.43	0.05	0.23
OTHERS (74)	0.60	0.11	0.23
ALL (220)	0.68	0.01	0.23

On retrouve les conclusions précédemment faites pour les regroupements AFR et BO-

REAL, avec un MNMB légèrement négatif pour le premier et positif pour le deuxième. D'une manière générale, quelque soit le regroupement de mesures considéré, le MNMB est très proche de zéro et indique donc une très bonne représentation moyenne des niveaux d'ozone. La FGE est aussi assez bonne avec une valeur de 0.23 pour chaque cas. Les coefficients de corrélation de Spearman sont moyens pour la plupart des régions, avec un minimum de 0.43 pour les panaches boréaux, probablement à cause de la plus grande variabilité de la concentration en ozone dans ceux-ci. Toutes ces valeurs sont comparables à celles établies pour le CO dans le tableau 4.3, indiquant des performances semblables de MOCAGE pour ces deux espèces.

Pour conclure, la simulation INJH réalisée avec MOCAGE donne une bonne représentation des concentrations en O<sub>3</sub> dans les panaches de feux de biomasse identifiés dans la base de données IAGOS dans la haute troposphère, et ce, quelle que soit la région du globe dont les panaches sont originaires. Cette simulation semble donc adaptée à une étude plus poussée sur la production d'ozone dans ces panaches.

### 5.2.2 Méthode d'évaluation de la production d'ozone

Il est maintenant reconnu que les feux de biomasse, étant source de précurseurs d'ozone, contribuent de manière significative à la production d'ozone dans la troposphère. Une partie non négligeable de cette production se fait dans les panaches issus de ces émissions, ce qui favorise donc l'export de la production d'ozone au fur et à mesure de leur transport (Real et al., 2007, 2010; Brocchi et al., 2017). La production d'ozone dans ces panaches dépend de plusieurs facteurs, tels que la présence relative de NO<sub>x</sub> et de COV dans les émissions, la dilution du panache dans son environnement ou encore l'altitude.

Un des indicateurs permettant de quantifier l'efficacité de cette production d'ozone, utilisé dans la plupart des études de ce genre, est le ratio  $\Delta O_3/\Delta CO$  (d'après la revue de littérature de Jaffe and Wigder, 2012). Ce ratio caractérise l'augmentation des concentrations d'O<sub>3</sub> due aux feux de biomasse par rapport à l'augmentation de CO, et croit donc avec l'efficacité de la production d'ozone. Sa valeur est le plus souvent comprise entre 0.1

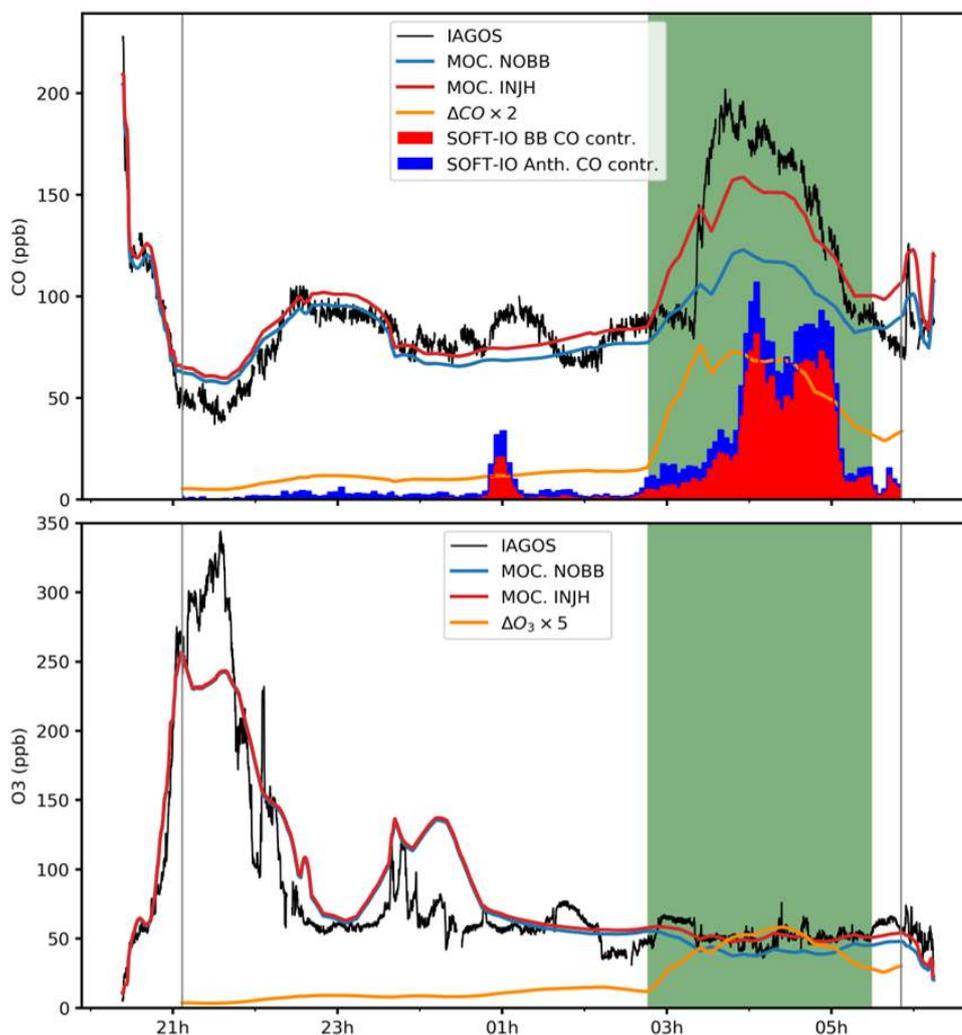
## 5.2. PRODUCTION D'OZONE DANS LES PANACHES DE FEUX DE BIOMASSE.

---

et 0.9, elle varie au cours du vieillissement du panache (Thomas et al., 2013; Andreae et al., 1994). Au plus proche des émissions, le ratio  $\Delta O_3/\Delta CO$  est proche de zéro, voire même négatif, à cause d'un régime saturé en COV, et de la titration de l'ozone par NO. Les  $NO_x$  sont d'ailleurs assez rapidement transformés en PAN à ce stade, en particulier pour les feux boréaux car les températures sont plus basses (Jaffe and Wigder, 2012). Au fur et à mesure du transport du panache, le PAN se reconvertit lentement en  $NO_x$ , favorisant une augmentation de l'efficacité de la production d'ozone pour des quantités plus faibles de  $NO_x$ .

On note que les études s'intéressant à la production d'ozone dans les panaches de feux de biomasse sont toutes faites à partir de campagnes de mesures. Elles comprennent donc une densité de mesures plus importante, échantillonnant souvent une grande variété d'espèces chimiques, et ciblées sur les panaches. Aux latitudes boréales par exemple, on peut citer par exemple l'étude de Parrington et al. (2013) qui se base sur les mesures effectuées lors de la campagne BORTAS, ou bien celle de Ancellet et al. (2016) pendant la campagne POLARCAT. Dans les tropiques, on retrouve la campagne AMMA, dont les mesures sont par exemple exploitées dans les études de Mari et al. (2008) et Real et al. (2010). La base de données IAGOS ne permet pas de mesures ciblées directement sur les panaches, mais on a vu précédemment qu'ils pouvaient être identifiés rétrospectivement grâce à l'outil SOFT-IO. Elle présente donc l'avantage de contenir un grand nombre de cas de panaches observés, d'âge et d'origine différents. On va donc chercher ici si les mesures avions IAGOS, même si moins intensives, peuvent être utilisées en conjonction à MOCAGE pour une étude similaire à l'échelle globale, et permettre ainsi l'évaluation de l'efficacité de la production d'ozone dans des panaches de différentes origines.

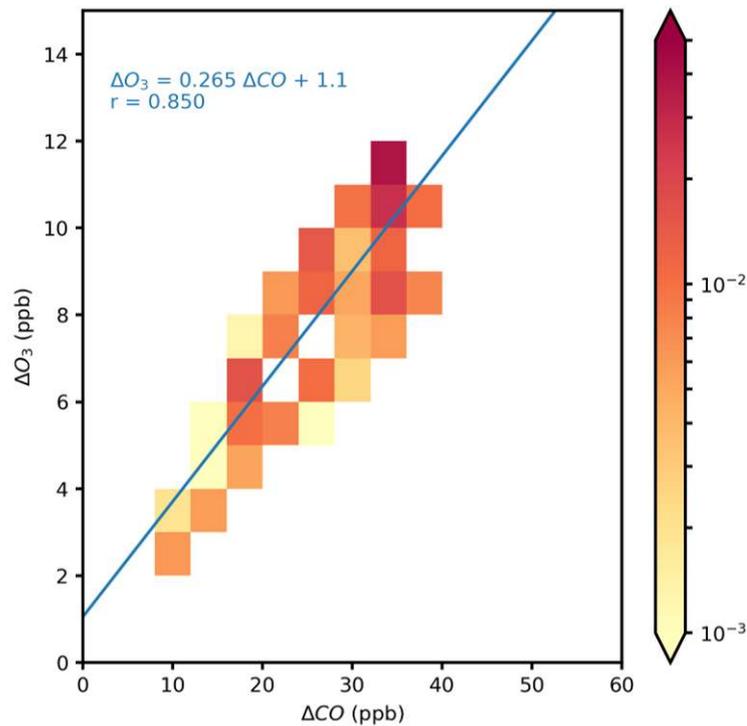
Le ratio  $\Delta O_3/\Delta CO$  est calculé comme la pente de la régression linéaire entre les valeurs d'excès  $\Delta O_3$  et  $\Delta CO$ . Cela peut être fait à partir de mesures brutes d' $O_3$  et de CO, en calculant l'écart avec une valeur moyenne de fond. Cette méthode implique l'hypothèse que les concentrations moyennes autour du panache sont constantes et devient de moins en moins réaliste pour des panaches de plus en plus vieux. Dans cette thèse, on va utiliser



**Figure 5.5** – Exemple de calcul de  $\Delta O_3$  et  $\Delta CO$  à partir des simulations MOCAGE INJH et NOBB, interpolées sur la trajectoire du vol IAGOS du 13/01/2013 de Francfort à Windhoek. La partie en vert du vol correspond à un panache de feu de biomasse nord africain (NHAF) identifié grâce à SOFT-IO.

une méthode de calcul de  $\Delta O_3/\Delta CO$  à partir de résultat de modélisation numérique, de manière similaire à Thomas et al. (2013). Dans cette étude, les valeurs de  $\Delta O_3$  et  $\Delta CO$  sont estimées en effectuant la différence entre deux simulations, une première simulation de référence (ici la simulation INJH) et une deuxième où les émissions des feux de biomasse sont nulles (ici la simulation NOBB). On peut voir un exemple de ce calcul fait pour un panache de feu de biomasse identifié grâce à SOFT-IO sur la figure 5.5.

A partir de ces données, on peut calculer le ratio  $\Delta O_3/\Delta CO$  comme la pente de la régression linéaire entre les valeurs de  $\Delta O_3$  et  $\Delta CO$ . Un exemple est présenté sur la



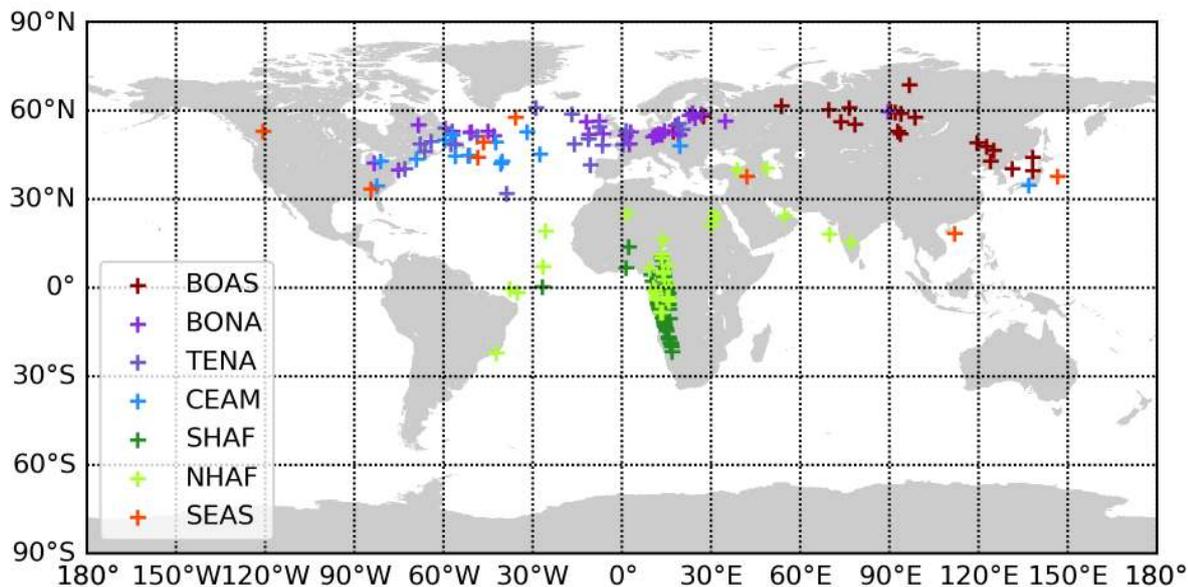
**Figure 5.6** – Histogramme 2D de  $\Delta O_3$  par rapport  $\Delta CO$  due aux feux de biomasse dans un panache de feux de biomasse d'origine nord africaine rencontré par un avion IAGOS (voir figure 5.5). L'échelle de couleur représente la fréquence dans des cellules de taille 1 ppb d' $O_3$  et 3 ppb de CO. La droite de régression linéaire est représentée en bleu.

figure 5.6, pour le panache de la figure 5.5. Les points étant nombreux, le graphique est présenté comme un histogramme 2D. On y voit effectivement une relation linéaire entre les deux variables, avec un coefficient de corrélation linéaire de 0.85. Le ratio  $\Delta O_3/\Delta CO$  y est estimé pour ce panache précis à 0.265 ppb/ppb. La même méthode peut alors être appliquée à tous les panaches identifiés précédemment. Les résultats sont présentés dans la partie suivante.

### 5.2.3 Résultats

Pour faciliter l'analyse des résultats, les ratios  $\Delta O_3/\Delta CO$  sont regroupés en fonction de leur région d'origine (voir figure 4.2). On peut voir sur la figure 5.7 l'origine et la localisation de chacun des panaches échantillonnés lors d'un vol IAGOS pour lesquels le ratio  $\Delta O_3/\Delta CO$  est calculé dans cette étude.

Leur distribution est présentée sous forme de boîtes à moustaches sur la figure 5.8, et

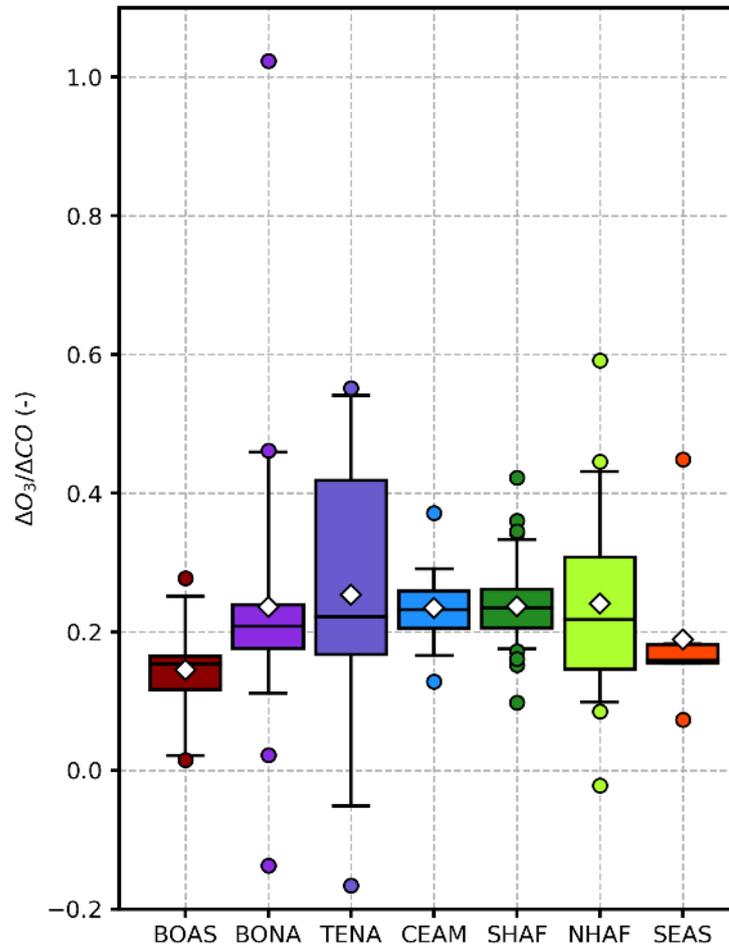


**Figure 5.7** – Répartition géographique de panaches de feux de biomasse échantillonnées par les vols IAGOS dans la haute troposphère en fonction de leur origine (voir figure 4.2 pour la définition des zones d'origine).

accompagnée d'un résumé des ratios  $\Delta O_3/\Delta CO$  médians et moyens par région dans le tableau 5.6. Ces résultats seront comparés à ceux présentés dans la méta-analyse de Jaffe and Wigder (2012) résumant les connaissances des travaux précédents sur le sujet, ainsi qu'à des travaux plus récents (Thomas et al., 2013; Parrington et al., 2013; Arnold et al., 2015; Brocchi et al., 2017).

Concernant les distributions des ratios  $\Delta O_3/\Delta CO$ , on observe dans leur grande majorité des valeurs positives, en moyenne légèrement supérieures à 0.2 ppb/ppb. Les principales caractéristiques à retenir pour les différentes régions sont les suivantes :

- Pour les ratios  $\Delta O_3/\Delta CO$  dans les panaches originaires de la région BOAS on remarque des valeurs et une variabilité un peu plus faibles que pour les autres régions. On note aussi que ces panaches sont tous observés au-dessus de l'Asie continentale, et donc probablement assez proches de leur lieu d'émission.
- Malgré des biomes et des types de feux similaires, les panaches de BONA et TENA affichent la plus grande variabilité, et des valeurs plus importantes de  $\Delta O_3/\Delta CO$  que pour BOAS. Une explication de cette différence est la localisation à laquelle les



**Figure 5.8** – Distributions statistiques des ratios  $\Delta O_3/\Delta CO$  par zones géographique, sous forme de boîtes à moustaches. Les moustaches dénotent les 5<sup>e</sup> et 95<sup>e</sup> centiles, et le losange blanc la moyenne.

panaches ont été observés (principalement au-dessus de l’océan atlantique et l’Europe), soit plus loin de leur zone d’émission, avec donc une efficacité de production d’ozone accrue. On note aussi l’influence des valeurs extrêmes sur le  $\Delta O_3/\Delta CO$  moyen, la valeur médiane étant sensiblement plus faible.

- Les panaches d’origine Africaine (NHAF que SHAF) présentent des valeurs moyennes très similaires, mais une plus grande variabilité est observée dans les panaches nord africains. Cela trouve sûrement aussi son explication par une étendue géographique plus large dans laquelle ces panaches ont été observés.
- La distribution des panaches originaires de SEAS est plus particulière, et ce très certainement à cause du peu de panaches observés (seulement 8) par rapport aux

autres régions. La valeur moyenne de  $\Delta O_3/\Delta CO$  est tout de même comparable à celle des autres régions. La distribution très resserrée indique sûrement des observations d'un même panache au cours de son transport, d'où des valeurs très similaires.

**Tableau 5.6** – Synthèse des estimations de ratios  $\Delta O_3/\Delta CO$  pour les panaches de feux de biomasse échantillonnés par des avions IAGOS en 2013.

Région d'origine	Nombre de panaches	Médiane $\Delta O_3/\Delta CO$ (ppb/ppb)	Moyenne $\Delta O_3/\Delta CO$ (ppb/ppb)
BOAS	21	0.153	$0.145 \pm 0.014$
BONA	28	0.208	$0.236 \pm 0.036$
TENA	21	0.222	$0.253 \pm 0.040$
CEAM	13	0.232	$0.234 \pm 0.016$
SHAF	62	0.235	$0.237 \pm 0.007$
NHAF	31	0.218	$0.241 \pm 0.023$
SEAS	8	0.159	$0.189 \pm 0.039$

Enfin, on peut comparer nos résultats à ceux issus de précédentes études, résumés dans la tableau 5.7. Nos estimations de  $\Delta O_3/\Delta CO$  sont cohérentes avec les résultats des études antérieures. On note que nos observations de panaches sont toutes faites dans la haute troposphère, et sont donc à comparer avec des valeurs données pour des panaches vieux de quelques jours (typiquement au moins deux). De cette revue de la littérature, on peut dégager deux principales caractéristiques de l'évolution de l'efficacité de la production d'ozone dans les panaches de feux de biomasse :

- Le ratio  $\Delta O_3/\Delta CO$  augmente bien avec l'âge d'un panache, quelle que soit sa région d'émission. On semble retrouver ce comportement dans notre étude, avec par exemple une différence entre les panaches BONA et BOAS. Ces derniers sont observés plus proches de leur lieu d'émission, et avec une valeur moyenne de 0.145 ppb/ppb semblable à celles établie pour des panaches boréaux de 2 à 5 jours, tandis que ceux issus d'Amérique du Nord, observés au-dessus de l'océan atlantique et l'Europe, correspondent plus à des panaches vieux de plus de 5 jours.
- La production d'ozone semble plus efficace aux tropiques. Même si nos estimations sont inférieures à celle de Jaffe and Wigder (2012), on observe bien une augmenta-

## 5.2. PRODUCTION D'OZONE DANS LES PANACHES DE FEUX DE BIOMASSE.

tion du  $\Delta O_3/\Delta CO$ , par exemple entre les régions BOAS et SHAF, pour lesquelles les panaches ont été observés au plus proche de leur zone d'origine. On remarque aussi que la plupart des valeurs faibles ou négatives de  $\Delta O_3/\Delta CO$  sont observées pour les panaches originaires des moyennes et hautes latitudes (BOAS, BONA et TENA)

**Tableau 5.7** – Synthèse des estimations de ratios  $\Delta O_3/\Delta CO$  dans la littérature, selon la régions de l'étude et l'âge des panaches observés.

Étude / Région	Age approximatif des panaches	$\Delta O_3/\Delta CO$ (ppb/ppb)
<b>Jaffe and Wigder (2012)<sup>†</sup></b>		
Régions tempérées et boréales :	$\leq 1-2$ jours	0.018
	2-5 jours	0.15
	$> 5$ jours	0.22
Tropiques/subtropiques :	$\leq 1-2$ jours	0.14
	2-5 jours	0.34
	$> 5$ jours	0.63
<b>Thomas et al. (2013)</b>		
Amérique du Nord/Groenland :	Frais	0.08
	Âgé	0.49
<b>Parrington et al. (2013)</b>		
Régions boréales/Canada :	$\leq 1-2$ jours	$0.020 \pm 0.009$
	2-5 jours	$0.13 \pm 0.10$
	$> 5$ jours	$0.75 \pm 0.41$
<b>Arnold et al. (2015)</b>		
Régions boréales/Canada :	Frais	0.113
	Âgé	0.193
<b>Brocchi et al. (2017)<sup>‡</sup></b>		
Région boréales :	$> 5$ jours	0.25 et 0.50

<sup>†</sup> Estimations après revue de la littérature (24 études).

<sup>‡</sup> 2 panaches observés.

A propos de l'estimation basse de  $\Delta O_3/\Delta CO$  dans les panaches originaires d'Afrique, cela est très probablement dû à leur relative "fraicheur" à cause de la localisation de leur observation. En effet, pour les panaches observés aux dessus du bassin atlantique tropical, les ratios sont compris entre 0.31 et 0.43, indiquant effectivement une production d'ozone plus efficace en aval de la zone d'émission. Cela correspond aux conclusions de Mauzerall

et al. (1998), les feux africains contribuant fortement au bilan de l'ozone au-dessus de l'Atlantique Sud tropical.

Globalement, notre méthode d'évaluation donne des résultats en accord avec la littérature existante sur le sujet de la production d'ozone dans les panaches de feux de biomasse. L'identification de ces panaches dans la base de données IAGOS permet une étude à l'échelle globale sur un grand nombre de cas, et ce pour différentes régions d'origine des émissions. On note que la variabilité de cette efficacité de production d'ozone est encore assez importante. L'âge moyen des masses d'air n'étant pas disponible dans les données SOFTIO au moment de cette étude, l'analyse des résultats s'est basée sur une approximation de la distance parcourue par rapport à sa région d'origine. De tels produits permettraient d'affiner l'analyse et probablement d'expliquer en partie la forte variabilité que l'on observe pour des panaches issus d'une même région.

## **5.3 Impact des feux de biomasse sur l'ozone dans la haute troposphère à l'échelle globale**

On a vu que les panaches de feux de biomasse sont chimiquement actifs, et entraînent une production d'ozone plus ou moins efficace durant leur transport dans l'atmosphère. Dans cette partie, on cherche à estimer si cette production additionnelle d'ozone se fait de manière plus générale dans toute la haute troposphère, et comment ces quantités d'ozone se répartissent autour du globe.

### **5.3.1 Effets sur les oxydes d'azotes et espèces réservoir**

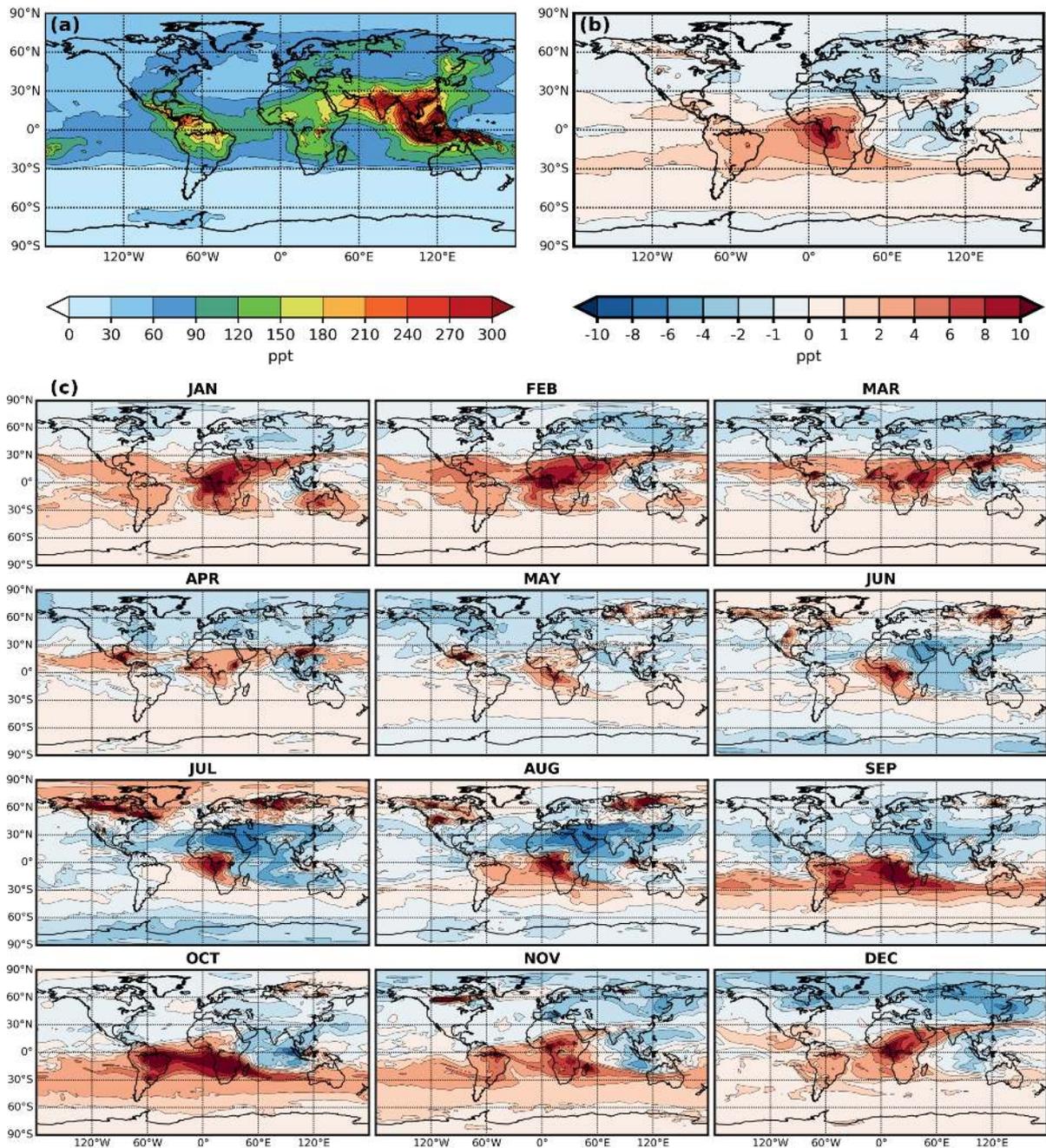
On a déjà vu en détail dans le chapitre 4 comment les feux de biomasse contribuaient au bilan du CO dans la haute troposphère, là où il est le principal précurseur de l'ozone. Pour pouvoir ensuite analyser l'impact sur l'ozone, on va d'abord évaluer l'impact des feux de biomasse sur les oxydes d'azotes et leurs espèces réservoir qui jouent aussi un rôle important sur la production d'ozone.

### 5.3.1.1 Impact sur les NO<sub>x</sub>

Les oxydes d'azote dans la haute troposphère, de par leur courte durée de vie, sont présents en faible quantité (autour de la centaine de ppt) par rapport aux basses couches de l'atmosphère, où ils peuvent atteindre la dizaine de ppb à proximité de leur source. Dans la haute troposphère, on l'a vu, ce sont les éclairs qui en sont la principale source, mais on peut aussi se demander comment les feux de biomasse impactent les concentrations de NO<sub>x</sub>. Comme dans l'article, la contribution des émissions par les feux de biomasse est estimée comme la différence entre une simulation de référence (ici la simulation INJH), et une simulation où les émissions des feux de biomasse ne sont pas prises en compte (ici la simulation NOBB).

De manière cohérente avec le reste de ces travaux, on analyse les résultats dans la haute troposphère. On la définit dans les sorties MOCAGE comme la couche comprise entre  $-15$  hPa et  $-75$  hPa sous la tropopause. On utilise pour cela la définition dynamique de la tropopause, avec une valeur limite de 2 PVU. Pour éviter toute divergence au niveau de l'équateur à cause de la définition dynamique de la tropopause, sa pression est bornée par celle de l'iso-surface de température potentielle 380 K. On peut retrouver la moyenne annuelle des concentrations de NO<sub>x</sub> dans la haute troposphère ainsi définie, accompagnée du détail de la contribution des feux de biomasse sur la figure 5.9.

On retrouve sur cette figure 5.9 une concentration moyenne annuelle de l'ordre de 80 ppt de NO<sub>x</sub> dans l'UT. Leur concentration est maximale aux tropiques, en particulier au-dessus du continent maritime, de manière cohérente avec les émissions par les éclairs. La contribution des feux de biomasse à ces concentrations de NO<sub>x</sub> varie autour du globe. On retrouve une augmentation aux tropiques, maximale au dessus de l'Afrique centrale où elle atteint 10 ppt en moyenne sur l'année. Dans l'hémisphère nord, au contraire, les émissions des feux de biomasse entraînent plutôt une diminution des niveaux de NO<sub>x</sub>, de quelques ppt en moyenne, sauf au-dessus des principaux foyers de feux dans les forêts boréales d'Asie et d'Amérique du Nord. Cela est particulièrement visible pendant les mois de juin à août, où la contribution dépasse alors les 10 ppt.



**Figure 5.9** – (a) Carte des concentrations de NO<sub>x</sub> dans la haute troposphère pour l'année 2013, en moyenne annuelle dans la simulation MOCAGE INJH. Contribution des feux de biomasse aux concentrations de NO<sub>x</sub> dans la haute troposphère, (b) en moyenne annuelle, (c) en moyenne mensuelle sur l'année 2013.

La diminution des concentrations de  $\text{NO}_x$  dans l'hémisphère nord peut paraître contre-intuitive puisque les feux de biomasse sont bien une source additionnelle de  $\text{NO}_x$ . En revanche, les feux de biomasse contribuent aussi à la présence de COV, ce qui peut favoriser la formation de PAN à partir des  $\text{NO}_x$  déjà présents par réaction avec l'acétaldéhyde ( $\text{CH}_3\text{CHO}$ ). Il est donc intéressant de regarder l'impact des feux de biomasse sur les espèces réservoir des oxydes d'azote.

#### 5.3.1.2 Oxydes d'azotes totaux

Les oxydes d'azote totaux  $\text{NO}_y$  comprennent les oxydes d'azote réactifs  $\text{NO}_x$  ainsi que leur espèces réservoir  $\text{NO}_z$ . On peut observer la contribution des feux de biomasse sur les  $\text{NO}_y$  sur la figure 5.10, calculée de la même manière que pour les  $\text{NO}_x$ .

L'analyse des résultats est ici un peu différente de celle pour les  $\text{NO}_x$ , notamment parce que la répartition des oxydes d'azote totaux  $\text{NO}_y$  est un peu différente de celle des  $\text{NO}_x$ . On les retrouve principalement aux moyennes et hautes latitudes de l'hémisphère nord. Cela est dû à la plus faible température et aux différentes sources de  $\text{NO}_x$  et de COV qui facilitent leur formation sous forme de PAN (voir partie 1.2.2.2).

Concernant la contribution des feux de biomasse à ces concentrations de  $\text{NO}_y$  on observe, toujours sur la figure 5.10, une augmentation générale d'environ 40 ppt. Cette augmentation est plus importante au-dessus de l'Afrique équatoriale, ainsi qu'aux hautes latitudes, où elle est maximale en de juin à août. Contrairement aux  $\text{NO}_x$ , cette contribution est plus significative, et représente entre 5 et 15% du total de  $\text{NO}_y$  dans l'UT, et jusqu'à 40% aux hautes latitudes de l'hémisphère nord pendant l'été. D'ailleurs, cette augmentation se fait par une augmentation des espèces réservoir  $\text{NO}_z$  ( $\text{NO}_z = \text{NO}_y - \text{NO}_x$ ), à hauteur de plus de 99%. Parmi les espèces réservoir, c'est bien le PAN qui en représente la majorité, soit 70% en moyenne sur l'année 2013. On peut le voir sur la figure 5.11, où l'augmentation du PAN sur l'année 2013 présente des caractéristiques très similaires à la figure 5.10. Cela renforce l'hypothèse faite précédemment que la baisse des niveaux moyens de  $\text{NO}_x$  dans l'hémisphère Nord est sûrement due à leur conversion en PAN,

CHAPITRE 5. IMPACT DES ÉMISSIONS DE FEUX DE BIOMASSE SUR LE BILAN DE L'OZONE DANS LA HAUTE TROPOSPHÈRE

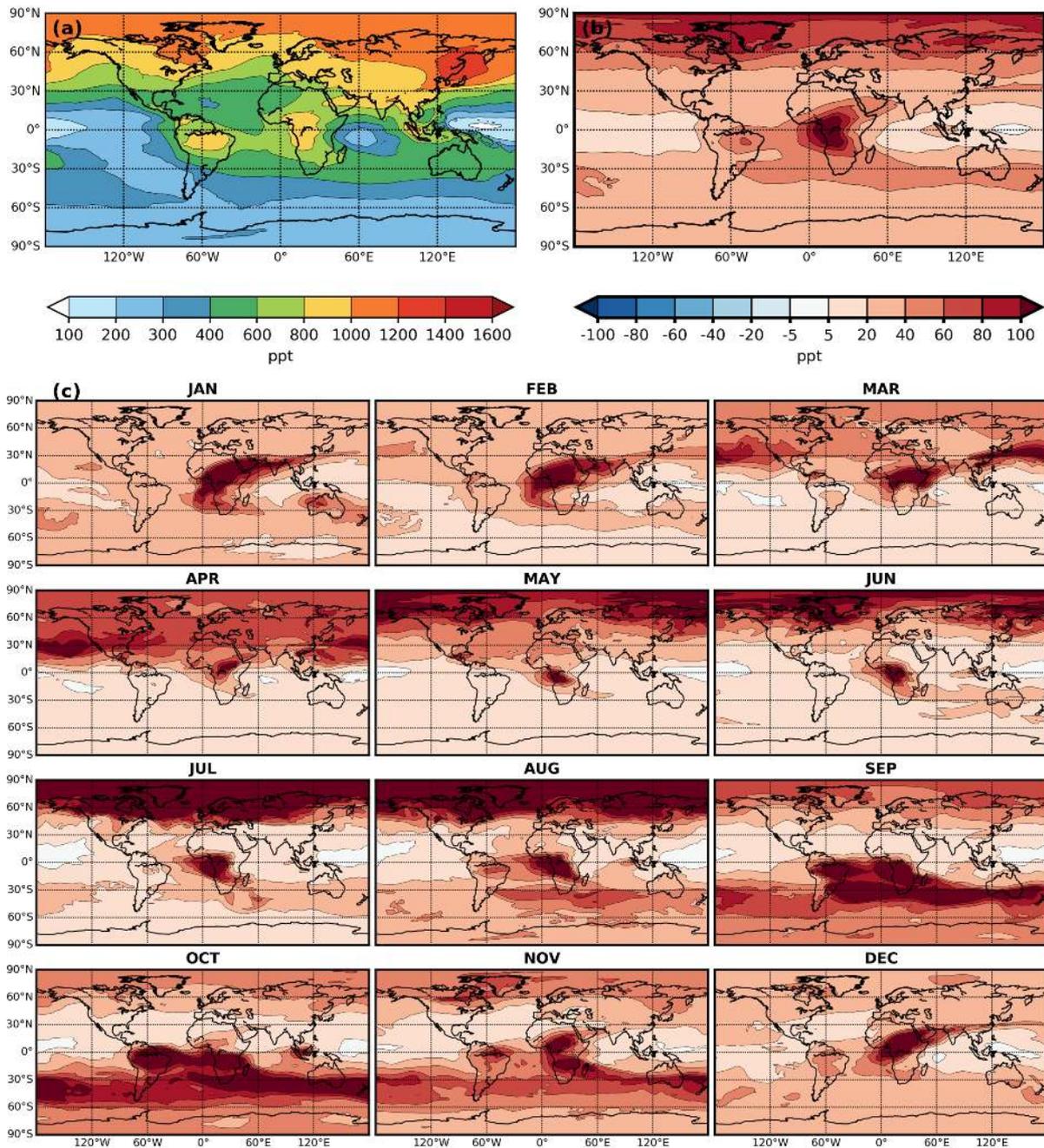
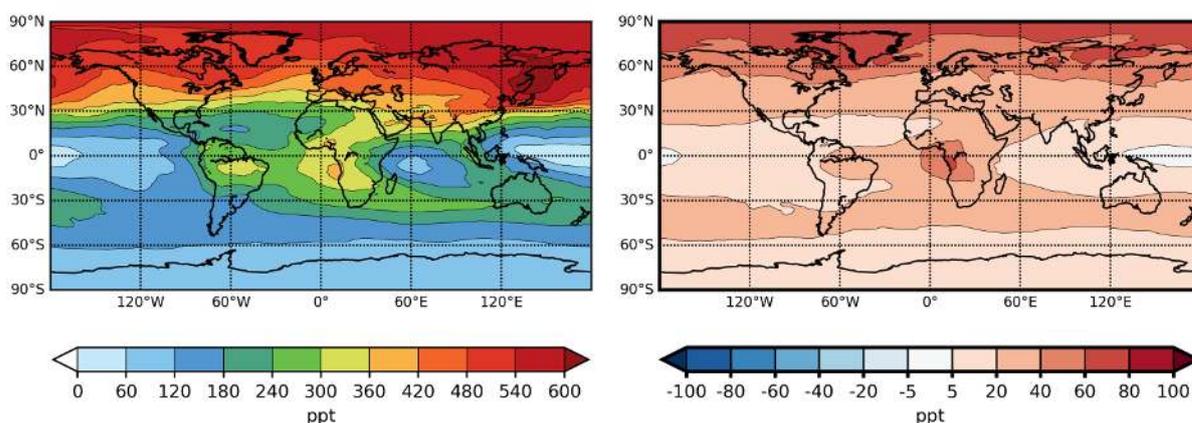


Figure 5.10 – Comme la figure 5.9, mais pour les  $\text{NO}_y$ .

### 5.3. IMPACT DES FEUX DE BIOMASSE SUR L'OZONE DANS LA HAUTE TROPOSPHÈRE À L'ÉCHELLE GLOBALE

favorisée par la plus grande abondance de COV, dont l'acétaldéhyde.

On peut conclure de cette partie que, l'impact des feux de biomasse sur les espèces azotées n'est pas négligeable et se fait principalement sur la formation d'espèces réservoir. Ces espèces réservoir ayant une durée de vie plus longue que celle des  $\text{NO}_x$  elles peuvent être transportées loin des foyers de feux de biomasse.



**Figure 5.11** – Moyenne annuelle de la contribution des émissions des feux de biomasse aux concentrations de PAN.

## 5.3.2 Production d'ozone par les feux de biomasse dans l'UT

### 5.3.2.1 Impact global sur l'ozone

Enfin, après avoir vu comment les feux de biomasse impactent les différents précurseurs de l'ozone dans la haute troposphère, on peut s'intéresser de la même manière à la production d'ozone. On retrouve le bilan annuel moyen de l'ozone et de la contribution des feux de biomasse sur l'ozone dans l'UT sur la figure 5.12.

On observe une contribution globale des feux de biomasse à l'ozone dans l'UT moyenne de 2.4 ppb sur l'année 2013. On note aussi que les feux de biomasse n'entraînent jamais une diminution des niveaux d'ozone dans la haute troposphère, mais l'augmentation n'est pas du tout homogène. Elle est maximale au-dessus de l'Afrique équatoriale où elle atteint les 5 ppb. Cela représente à cet endroit du globe environ 10% de l'ozone dans la haute troposphère. L'impact des feux boréaux en moyenne annuelle est à peine détectable par

## CHAPITRE 5. IMPACT DES ÉMISSIONS DE FEUX DE BIOMASSE SUR LE BILAN DE L'OZONE DANS LA HAUTE TROPOSPHÈRE

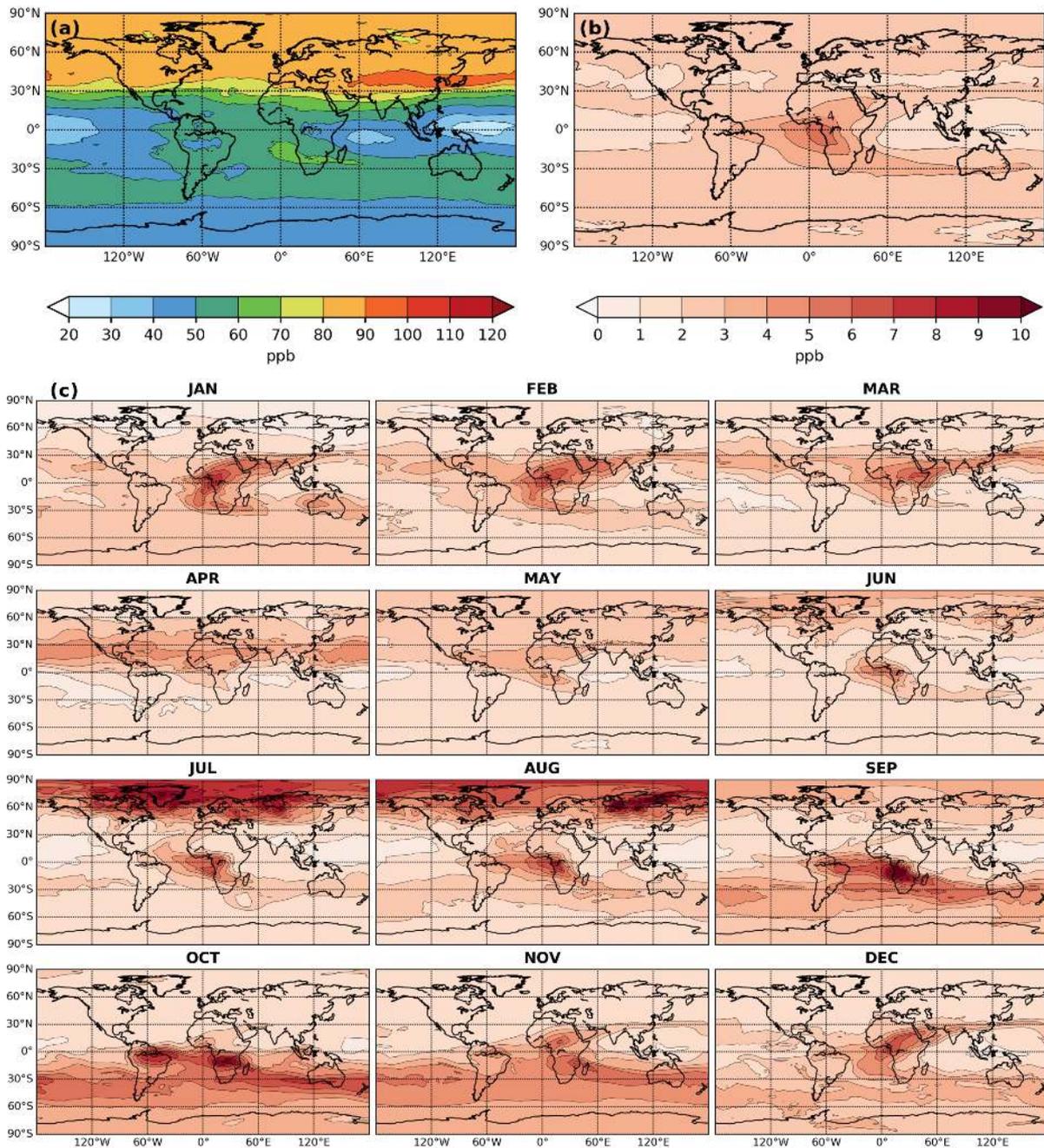


Figure 5.12 – Comme la figure 5.9, mais pour l'O<sub>3</sub>.

### 5.3. IMPACT DES FEUX DE BIOMASSE SUR L'OZONE DANS LA HAUTE TROPOSPHÈRE À L'ÉCHELLE GLOBALE

---

rapport l'augmentation moyenne globale de la concentration d'O<sub>3</sub>, à la différence de ses précurseurs comme le CO ou les NO<sub>y</sub> (figures 4.13 et 5.10). Si l'on s'intéresse à la contribution en moyenne mensuelle, on voit qu'il y a effectivement une production d'ozone aux latitudes boréales associées aux feux de biomasse, qui atteint même 10 ppb pendant les mois de juillet et d'août, mais est limitée à ces deux mois d'été. En effet, en dehors de ces deux mois, les émissions par les feux de biomasse et du flux actinique indispensable à la production d'ozone diminuent fortement. Il semble donc y avoir, de la même manière qu'à l'intérieur des panaches de feux de biomasse, une efficacité de production de l'ozone dans l'UT plus forte aux tropiques qu'aux moyennes et hautes latitudes.

On peut aussi faire la comparaison avec la contribution des feux de biomasse sur les différents précurseurs de l'ozone. Comme pour le CO ou les NO<sub>y</sub>, la contribution à l'ozone est assez logiquement maximale au niveau des foyers d'émissions, mais est aussi non négligeable pour des localisations éloignées par redistribution par la circulation de grande échelle, et impacte donc le niveau de fond. On observe aussi quelques différences, la contribution sur l'ozone étant plus importante aux tropiques qu'aux hautes latitudes, là où elle est comparable dans ces deux régions pour le CO et les NO<sub>y</sub>. Cela rejoint les conclusions faites concernant les NO<sub>x</sub>, pour lesquels les émissions des feux de biomasse contribuent principalement à augmenter les niveaux aux tropiques.

On peut comparer nos résultats à ceux de Ziemke et al. (2009), qui effectuent une analyse similaire pour septembre 2006, septembre étant le mois de l'année où l'activité des feux de biomasse aux tropiques est maximale. Ils y montrent que les feux de biomasse étaient responsables de 10 à 20% de la colonne d'ozone troposphérique au-dessus des foyers de feux de biomasse. On obtient effectivement des résultats similaires en se concentrant sur la haute troposphère, mais on montre aussi que cette contribution aux tropiques se fait sur toute l'année, et que l'ozone ainsi produit est redistribué dans la haute troposphère à l'échelle globale.

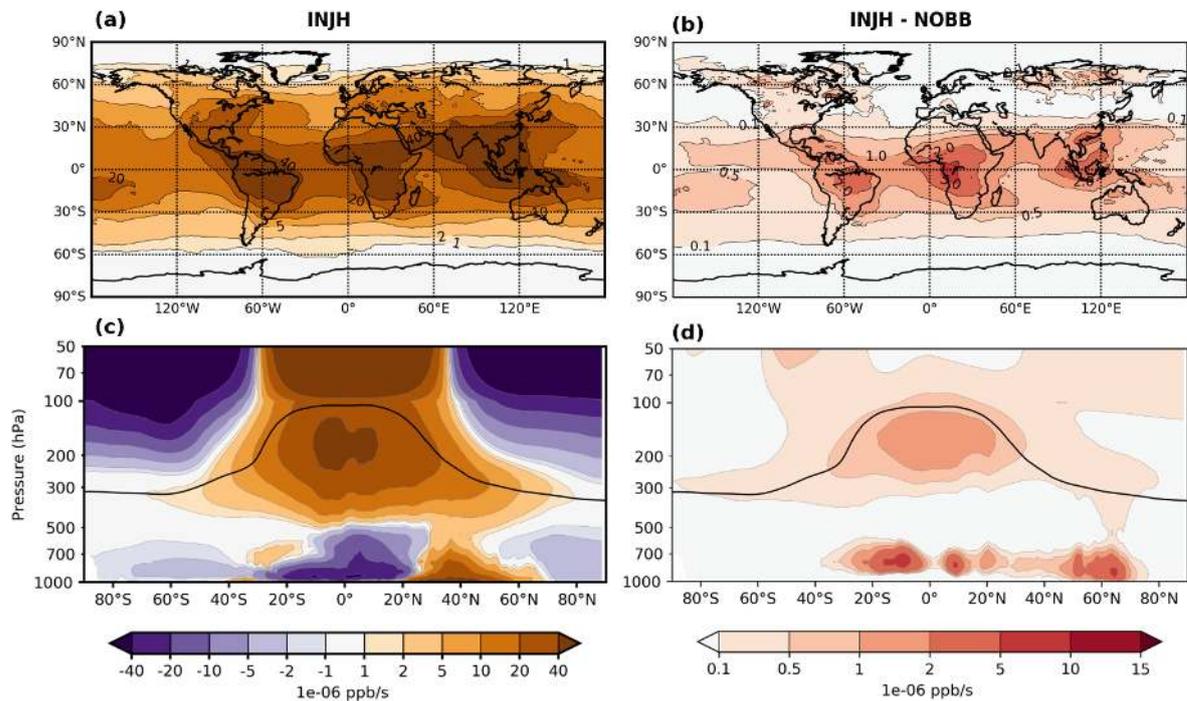
### 5.3.2.2 Production d'ozone et régimes chimiques

Il existe un certain nombre d'indicateurs permettant de caractériser les régimes chimiques de production d'ozone (voir partie 1.2.1.3). Parmi eux, on retrouve souvent des ratios entre les concentrations de deux espèces ou regroupements d'espèces chimiques, comme les ratios  $\text{H}_2\text{O}_2/\text{NO}_z$  et  $\text{HCHO}/\text{NO}_y$  (Sillman et al., 1995). Cependant, s'ils sont représentatifs des régimes chimiques dans les basses couches de l'atmosphère, ils ne permettent pas de correctement caractériser la haute troposphère, les espèces en question étant de trop courte durée de vie, et les oxydes d'azote n'étant pas forcément corrélés à leurs espèces réservoir. Dans la haute troposphère la production d'ozone est très dépendante de la disponibilité de radicaux OH. À ce propos, Jaeglé et al. (2000) montrent que l'efficacité de production de ces radicaux est principalement contrôlée par la présence de  $\text{NO}_x$ . Il définit alors plusieurs régimes chimiques dans la haute troposphère, directement en fonction de la concentration de  $\text{NO}_x$ . Jusqu'à 100 ppt, le régime est limité en  $\text{NO}_x$ . S'ensuit alors un régime transitoire entre 100 et 300 ppt, et saturé en  $\text{NO}_x$  au-delà de 300 ppt.

Dans notre simulation MOCAGE, on observe sur la figure 5.9 les concentrations en moyenne annuelle de  $\text{NO}_x$  dans la haute troposphère. On y observe globalement une majorité de concentrations inférieures à 100 ppt, à part au dessus des surfaces continentales aux tropiques, où les concentrations sont légèrement plus élevées (autour de 150 ppt). On note aussi des concentrations de  $\text{NO}_x$  très élevées ( $>300$  ppt) au niveau du Continent Maritime. Globalement les niveaux de  $\text{NO}_x$  dans la haute troposphère sont très corrélés avec les émissions par les éclairs (voir figure 2.13). La prédominance de la production de  $\text{NO}_x$  par les éclairs dans la haute troposphère, et de la production d'ozone associée est un résultat déjà observé par Sauvage et al. (2007a). On a donc un régime globalement limité en  $\text{NO}_x$  dans la haute troposphère, et un régime transitoire voire très localement saturé en  $\text{NO}_x$  aux tropiques.

Afin de rendre compte de l'impact des feux de biomasse sur la production chimique d'ozone, on peut calculer la différence du taux de production net d'ozone entre les simu-

### 5.3. IMPACT DES FEUX DE BIOMASSE SUR L'OZONE DANS LA HAUTE TROPOSPHÈRE À L'ÉCHELLE GLOBALE



**Figure 5.13** – Contribution des feux de biomasse au taux de production net d’ozone moyen sur l’année 2013 : (a) et (b) dans la haute troposphère, et (c) et (d) en moyenne zonale, avec en trait continu noir la pression moyenne de la tropopause dynamique.

lations INJH et NOBB. Le résultat de ce calcul est présenté en moyenne dans l’UT, et en moyenne zonale sur l’année 2013 sur la figure 5.13, accompagné du taux de production net d’ozone de la simulation INJH.

La répartition de cette contribution tend à confirmer ce que l’on observait à propos des régimes chimiques dans la haute troposphère. Une augmentation du taux de production net d’ozone est observée, mais quasi exclusivement dans les tropiques. Cette production est maximale au-dessus des continents, en lien avec la présence accrue de  $\text{NO}_x$  à ces localisations. On note aussi une légère augmentation de la production d’ozone directement au-dessus des foyers de feux de biomasse boréaux, mais qui ne couvre pas toutes les zones boréales. En moyenne zonale (toujours sur la figure 5.13), on observe effectivement une augmentation de la production nette d’ozone dans la haute troposphère tropicale, d’entre 2 et  $5 \times 10^{-6}$  ppb/s. Cela représente jusqu’à 10% du taux de production d’ozone dans l’UT aux tropiques. Cette augmentation est légèrement inférieure à celle constatée près de la surface, mais reste importante aux regards des concentrations bien plus faibles en

précurseurs d'ozone à cette altitude.

Pour résumer, il semble que l'influence des feux de biomasse sur la production d'ozone à l'échelle globale dans la haute troposphère soit corrélée à la présence préalable de  $\text{NO}_x$ , qui sont eux principalement émis par les éclairs.

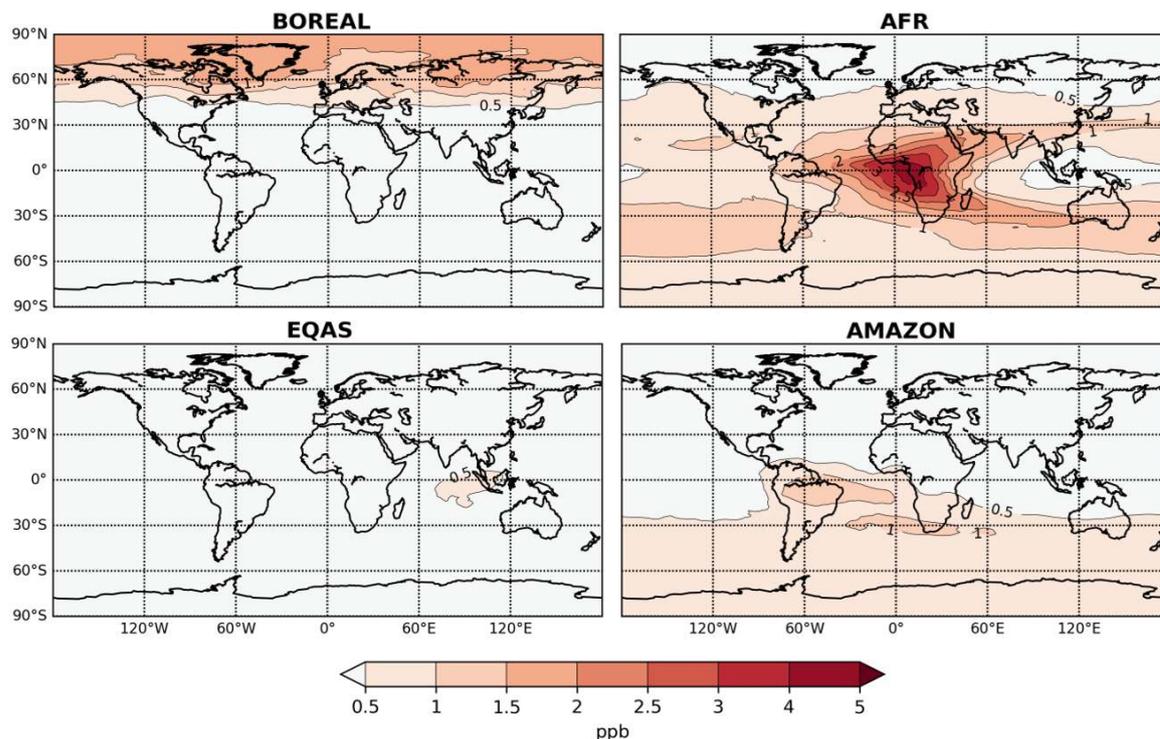
### 5.3.2.3 Impact des émissions régionales

Pour finir, on cherche à évaluer la sensibilité de la contribution sur l'ozone dans la haute troposphère par les feux de biomasse aux émissions des différentes régions du globe. Pour cela, on utilise les mêmes expériences de sensibilité que dans le chapitre 4, soit des simulations MOCAGE où les émissions par les feux de biomasse ne sont faites que dans certaines régions géographiques. Pour rappel, les zones sont établies en regroupant certaines régions définies dans l'inventaire GFED (voir figure 2.6) :

- AFR (NHSA and SHSA)
- BOREAL (BOAS and BONA)
- AMAZON (NHSA and SHSA)
- EQAS

Les contributions des émissions des feux de biomasse sur les concentrations d'ozone dans la haute troposphère sont présentées sur la figure 5.14. Les feux africains ont l'impact à la fois le plus important en valeur absolue et le plus étendu sur le globe (entre 1 et 5 ppb). Cela représente 42% de la quantité additionnelle d' $\text{O}_3$  dans l'UT. Ils pilotent clairement la contribution des feux de biomasse à la production d'ozone, étant à la fois les plus grand émetteurs de précurseurs d'ozone, et les latitudes tropicales étant plus propices à sa production. Les feux des régions boréales entraînent tout de même une augmentation de 1 à 2 ppb d'ozone, mais cette elle est limitée au cercle polaire. Par ailleurs, les feux boréaux comptent pour 21% des émissions de CO par les feux de biomasse, mais seulement 11% des concentrations additionnelles d' $\text{O}_3$  dans l'UT leur est attribuée. Les feux de la région AMAZON, quant à eux, semblent impacter le niveau de fond de l'ozone dans l'hémisphère sud, dont l'UT est plus pauvre en  $\text{O}_3$  que l'hémisphère nord (voie figure 5.12). En 2013

### 5.3. IMPACT DES FEUX DE BIOMASSE SUR L'OZONE DANS LA HAUTE TROPOSPHÈRE À L'ÉCHELLE GLOBALE



**Figure 5.14** – Contribution des feux de biomasse aux concentrations d’ozone dans la haute troposphère selon la région d’origine des feux de biomasse (voir texte pour les détails.)

ils ne représentaient que 11% des émissions de CO , mais 17% de l’augmentation de l’O<sub>3</sub> dans l’UT associée aux feux de biomasse.

Afin de vérifier que ces contributions par région sont cohérentes, on effectue le même test que dans la partie 4.2.6.2. Il s’agit d’ajouter les contributions calculées pour chaque région séparément, puis de la comparer à la contribution totale calculée précédemment (figure 5.12). Malgré la non-linéarité de la production d’ozone, les deux manières de calculer la contribution d’ozone donnent des résultats très similaires, et ne diffèrent en moyenne que d’un dixième de ppb.

Il faut tout de même rappeler que ces résultats se limitent à l’année 2013. Les émissions africaines sont assez peu soumises à la variabilité interannuelle, mais ce n’est pas le cas des autres régions du globe (Petetin et al., 2018). Il serait donc intéressant de voir cette contribution une année où, par exemple, les feux de biomasse en Amérique du Sud sont plus importants.

## 5.4 Conclusion

Dans cette partie on s'intéressait à la production d'ozone induite par les émissions des feux de biomasse dans la haute troposphère. Après avoir évalué MOCAGE à l'aide des mesures IAGOS disponibles pour l'ozone et les oxydes d'azotes, nos travaux se sont découpés en deux parties.

Une première partie où une méthode a été mise en place pour estimer l'efficacité de la production d'ozone dans les panaches de feux de biomasse, préalablement identifiés dans la base de données IAGOS grâce à l'outil SOFTIO. En calculant le ratio  $\Delta O_3/\Delta CO$  à partir des deux simulations MOCAGE INJH et NOBB, il a été possible d'analyser la variabilité de l'efficacité de production d'ozone en fonction de l'origine des panaches identifiés. En se comparant à d'autres études préalablement réalisées à une échelle régionale, il a été possible de confirmer certaines de leurs conclusions. On trouve en effet une production d'ozone plus importante dans les panaches observés dans les régions tropicales, ainsi qu'une efficacité de production croissante avec l'âge du panache.

Une deuxième partie, cette fois-ci basée uniquement sur les simulations MOCAGE, où on s'intéresse à l'impact global des émissions des feux de biomasse sur l'ozone dans la haute troposphère. En comparant les simulations INJH et NOBB dans la haute troposphère, il a pu être établi une contribution des feux de biomasse relativement faible aux oxydes d'azotes, mais importante sur les espèces réservoir de ces derniers. Concernant la contribution à l'ozone, on observe une augmentation globale, mais maximale aux tropiques où elle atteint jusqu'à 5 ppb. Cela est confirmé par l'analyse du taux de production net d'ozone et de tests de sensibilité aux émissions régionales, qui montrent que ce sont principalement les feux africains qui sont les principaux contributeurs à de la formation additionnelle d'ozone, et que cette dernière semble liée aux émissions de  $NO_x$  par les éclairs qui est aussi maximale dans l'UT aux tropiques. Cela montre que la production d'ozone dues aux feux de biomasse continue après dilution des panaches dans l'UT, alors que l'impact des feux des forêts tempérées et boréales est beaucoup plus limité dans le temps et l'espace.

# Conclusions et perspectives

L'ozone ( $O_3$ ) est un gaz à effet de serre, et il maximise son effet dans la haute troposphère/basse stratosphère. Cette région de l'atmosphère, aussi appelée UTLS, qui est à cheval entre troposphère et stratosphère, est donc une région d'intérêt pour les communautés scientifiques s'intéressant au climat ou à la composition chimique atmosphérique. Elle se trouve autour de la tropopause, qui joue à la fois le rôle de barrière dynamique distinguant la troposphère de la stratosphère, mais aussi de zone d'échange des masses d'air entre les deux couches. Dans cette région, il existe une production locale d' $O_3$  en particulier dans la haute troposphère, qu'il convient de comprendre et quantifier. Les principaux précurseurs de l' $O_3$  dans la haute troposphère, le monoxyde de carbone (CO) et les oxydes d'azotes ( $NO_x$ ), sont émis en quantités importantes par les feux de biomasse. Certains processus de transport tel que la convection atmosphérique ou la pyroconvection peuvent entraîner une partie de ces émissions rapidement jusqu'à l'UT. L'objectif de cette thèse était donc d'étudier l'impact des feux de biomasse sur la composition de la haute troposphère, en se focalisant sur l' $O_3$  et ses précurseurs.

Afin de répondre à cet objectif, divers outils d'étude de la composition chimique de l'atmosphère ont été utilisés. L'outil principal de cette thèse est le modèle de chimie-transport MOCAGE, qui est utilisé pour sa capacité à simuler la composition chimique de la troposphère et de la stratosphère à l'échelle globale. Le modèle doit être évalué en détail dans l'UTLS et à haute résolution temporelle avant de pouvoir procéder à l'analyse des simulations, et on utilise pour cela des observations in-situ. Grâce à l'infrastructure de recherche IAGOS, des avions commerciaux sont équipés de capteurs mesurant la com-

position chimique des masses d'air rencontrées. La base de données IAGOS permet une validation des simulations MOCAGE à la fois sur la verticale dans la troposphère en utilisant les mesures faites pendant les phases de décollage et d'atterrissage des avions, et dans l'UTLS en utilisant les mesures acquises à altitude de croisière.

Dans un premier temps, l'évaluation des simulations MOCAGE est faite sur l'année 2013, sur la base de plusieurs simulations, certaines incluant des modifications des schémas de diffusion et de convection atmosphérique du modèle. Il est montré que ces modifications améliorent de manière importante les performances de MOCAGE dans l'UTLS, à la fois sur les concentrations d'O<sub>3</sub> et de CO. Cette amélioration est due à une diminution du mélange entre UT et LS, qui conditionne fortement la composition de chacune de ces couches de l'atmosphère. Cela montre l'attention particulière qu'il faut porter à ce type de processus dans les études qui s'intéressent à la composition chimique de l'UTLS et/ou aux échanges de masses d'air qui y ont lieu. Cette nouvelle version de MOCAGE est utilisée dans le reste de la thèse. Au delà, ces modifications ont été implémentées et utilisées avec succès pour d'autres applications, que ce soit la prévision opérationnelle de la qualité de l'air ou l'étude de la composition de l'atmosphère à l'échelle climatique.

A partir de cette nouvelle version de MOCAGE, on s'est intéressé à l'impact des émissions des feux de biomasse sur la composition chimique de la haute troposphère. Afin d'améliorer leur représentation dans le modèle, des produits issus de modèles de panaches disponibles dans l'inventaire d'émission GFAS ont été implémentés dans MOCAGE. Ces produits sont des estimations de l'altitude maximale des panaches et de la hauteur moyenne d'injection pour les foyers de feux de biomasse. Pour valider leur utilisation, on a utilisé l'outil SOFT-IO pour identifier les mesures de CO IAGOS effectuées à l'intérieur de panaches de feux de biomasse dans la haute troposphère, toujours sur l'année 2013. Il a été montré que cela permettait une amélioration de la représentation des concentrations de CO, tout particulièrement dans les panaches issus des forêts boréales, d'ailleurs connus pour les événements pyroconvectifs associés. Cela complète des travaux précédents où ces produits avaient été utilisés et validés sur des cas d'étude comme celle

de Rémy et al. (2017), et montre que l'utilisation de ces produits à l'échelle globale est pertinente.

Enfin, on a utilisé cette simulation MOCAGE pour évaluer l'impact des émissions des feux de biomasse sur les précurseurs et la production d'ozone dans la haute troposphère. Cette partie de l'étude se fait dans les panaches identifiés précédemment, puis à l'échelle globale afin d'établir l'impact de la redistribution des émissions dans la haute troposphère à grande échelle. Dans les panaches de feux de biomasse, l'efficacité de production d'ozone est estimée à partir du calcul du ratio  $\Delta O_3/\Delta CO$ . Les résultats ont été analysés en fonction de leur origine géographique et ont pu être comparés avec la littérature existante sur le sujet. On trouve des valeurs assez intermédiaires, autour de 0.2 ppb/ppb, et qui correspondent bien à ce qui est trouvé en moyenne dans d'autres études. On trouve aussi des valeurs de  $\Delta O_3/\Delta CO$  plus importantes dans les panaches originaires des tropiques que ceux des moyennes et hautes latitudes, et qui semblent croissantes avec l'âge du panache. Ces conclusions sont toutes en accord avec les études préexistantes. Néanmoins, c'est la première fois que ce genre d'étude a pu être faite à l'échelle globale dans la haute troposphère, et ce, grâce à la base de données globale IAGOS, dans laquelle on a pu identifier un grand nombre de panaches de feux de biomasse d'origines variées avec SOFT-IO.

L'échelle de l'étude de la production d'ozone liée aux émissions des feux de biomasse a ensuite été élargie à la haute troposphère en général. En comparant des simulations MOCAGE avec et sans émissions des feux de biomasse, la contribution de ces derniers aux précurseurs et à la production d'ozone dans l'UT a pu être estimée. Concernant le CO, un fort impact a été constaté, avec une augmentation annuelle globale des concentrations de fond d'environ 8 ppb. Cette contribution est maximale au-dessus des principales zones d'émissions, où elle peut atteindre 60 ppb aux hautes latitudes de l'hémisphère nord en juillet et août 2013. Pour les espèces azotées, l'impact n'est pas le même sur les oxydes d'azotes  $NO_x$  et leurs espèces réservoir  $NO_z$ . La contribution des feux de biomasse aux concentrations de  $NO_x$  dans l'UT est assez faible, positive aux tropiques et négative dans

l'hémisphère nord. Les concentrations de  $\text{NO}_z$  dans l'UT sont elles plus fortement impactées par les feux de biomasse. On retrouve un comportement similaire au CO, avec une contribution supérieure à 100 ppt, soit assez forte, au plus proches des zones d'émission, et une contribution moyenne globale de 40 ppt par redistribution au travers de la circulation de grande échelle. On a aussi vu que la principale espèce réservoir concernée était le PAN, dont la formation est favorisée par la présence de COV, et des températures basses, expliquant une contribution maximale aux hautes latitudes de l'hémisphère nord. Cette augmentation des concentrations des précurseurs se traduit, comme attendu, par une augmentation de la production de l'ozone, principalement dans la haute troposphère tropicale. Cela s'explique par la présence accrue de  $\text{NO}_x$  à ces latitudes où les émissions par les éclairs sont maximales. La contribution des feux de biomasse aux concentrations d' $\text{O}_3$  dans l'UT est établie à 2.4 ppb en moyenne annuelle, et est maximale au-dessus de l'Afrique centrale où elle atteint 5 ppb.

D'une manière plus générale, cette thèse a permis, par le biais de la modélisation numérique et d'observations in-situ, d'explorer et quantifier les impacts des feux de biomasse sur la composition chimique de la haute troposphère. Toutefois, certaines questions ou perspectives ont pu être soulevées au cours de ces travaux de thèse, présentées ci-dessous.

Cette thèse portait sur les feux de biomasse, mais il serait possible d'en réaliser une similaire sur le rôle des émissions anthropiques. Celles-ci sont aussi à l'origine de panaches, qui, même s'ils sont moins denses et entraînent des anomalies de CO moins fortes (Petetin et al., 2018), sont fréquemment observées lors de vols IAGOS. Ces panaches sont aussi actifs photochimiquement, et associés à une production d'ozone efficace (Thomas et al., 2013). Comme SOFT-IO permet aussi l'identification de panaches issu d'émissions anthropiques, il serait tout à fait possible d'identifier un ensemble de panaches pour lequel la méthode de notre thèse pourrait être adaptée. Notre analyse sur l'efficacité de production d'ozone dans les panaches était aussi limitée par l'absence d'information sur l'âge des masses d'air. Un ajout dans SOFT-IO de ce type d'estimation permettrait d'approfondir l'analyse de manière très précise sur la chimie et le vieillissement des panaches.

Cette thèse s'est focalisée sur la haute troposphère plutôt que la basse stratosphère, car directement impactée par les émissions des feux de biomasse. Cependant, de rares cas ont été rapportés où des panaches de feux de biomasse ont été injectés directement dans la basse stratosphère (Peterson et al., 2018; Fromm et al., 2008). Mais surtout, la composition chimique de la basse stratosphère est influencée au travers des échanges de masses d'air par celle de la haute troposphère. On peut alors se demander dans quelle mesure l'impact observé sur la haute troposphère se retrouve dans la basse stratosphère.

En parallèle, les mesures IAGOS se diversifient. De nouveaux *packages* d'instruments sont développés et déployés sur les avions IAGOS, pour permettre des mesures de nouvelles espèces chimiques. Pour les  $\text{NO}_x$  et les  $\text{NO}_y$  par exemple, des observations plus régulières permettrait une validation détaillée des espèces azotées, avec des diagnostics similaires à ceux utilisés dans cette thèse pour l' $\text{O}_3$  et le CO. Un instrument mesurant les concentrations en aérosols est aussi en cours de développement. Les feux de biomasse étant une source majeure d'aérosols dans l'atmosphère (à la fois primaires et secondaires), de telles observations permettraient de compléter l'étude sur les émissions des feux de biomasse sur ce volet.

Afin de limiter le coût de calcul des simulations et d'interpolation des résultats de MOCAGE, on s'est concentré sur l'année 2013, qui comprenait une bonne densité de mesures IAGOS validées, et était une année assez moyenne en terme d'émissions par les feux de biomasse. Cela a permis une étude détaillée sur une année, mais qui ne prend donc pas en compte la variabilité interannuelle importante qui caractérise les émissions des feux de biomasse. Il serait intéressant d'étendre les simulations sur une période de quelques années (au moins 3 à 5 ans, mais possiblement jusqu'à une vingtaine d'années) afin de préciser cette variabilité. Une autre méthode pourrait être de cibler une année où les émissions ont été particulièrement intenses dans certaines régions de globe, comme l'année 2019, marquée par une anomalie forte des feux de forêts en Sibérie.

Aussi, sur les études de long terme, il serait intéressant de voir comment se traduit l'impact des émissions des feux de biomasse sur la production d'ozone troposphérique et

son effet sur le bilan radiatif sur une échelle de temps climatique, à la fois présent et futur. Une telle étude se baserait sur des simulations plus longues, issues de modèle de climat ou de système Terre, et comprenant une bonne représentation de la chimie troposphérique. Cela permettrait alors d'évaluer l'impact d'une tendance à la hausse des émissions par les feux de biomasse et plus généralement de leurs interactions avec le changement climatique.

# Bibliographie

- S. K. Akagi, R. J. Yokelson, C. Wiedinmyer, M. J. Alvarado, J. S. Reid, T. Karl, J. D. Crouse, and P. O. Wennberg. Emission factors for open and domestic biomass burning for use in atmospheric models. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(9) :4039–4072, 2011. doi:10.5194/acp-11-4039-2011.
- G. Ancellet, N. Daskalakis, J. C. Raut, D. Tarasick, J. Hair, B. Quennehen, F. Ravetta, H. Schlager, A. J. Weinheimer, A. M. Thompson, B. Johnson, J. L. Thomas, and K. S. Law. Analysis of the latitudinal variability of tropospheric ozone in the Arctic using the large number of aircraft and ozonesonde observations in early summer 2008. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(20) :13341–13358, Oct. 2016. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-16-13341-2016.
- M. O. Andreae. Emission of trace gases and aerosols from biomass burning – an updated assessment. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(13) :8523–8546, July 2019. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-19-8523-2019.
- M. O. Andreae and P. Merlet. Emission of trace gases and aerosols from biomass burning. *Global Biogeochemical Cycles*, 15(4) :955–966, 2001. doi:10.1029/2000GB001382.
- M. O. Andreae, B. E. Anderson, D. R. Blake, J. D. Bradshaw, J. E. Collins, G. L. Gregory, G. W. Sachse, and M. C. Shipham. Influence of plumes from biomass burning on atmospheric chemistry over the equatorial and tropical south atlantic during cite 3. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 99(D6) :12793–12808, 1994. doi:10.1029/94JD00263.
- S. R. Arnold, L. K. Emmons, S. A. Monks, K. S. Law, D. A. Ridley, S. Turquety, S. Tilmes, J. L. Thomas, I. Bouarar, J. Flemming, V. Huijnen, J. Mao, B. N. Duncan, S. Steenrod, Y. Yoshida, J. Langner, and Y. Long. Biomass burning influence on high-latitude tropospheric ozone and reactive nitrogen in summer 2008 : a multi-model analysis based on polmip simulations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(11) :6047–6068, 2015. doi:10.5194/acp-15-6047-2015.
- J. Barré, L. El Amraoui, P. Ricaud, W. A. Lahoz, J.-L. Attié, V.-H. Peuch, B. Josse, and V. Marécal. Diagnosing the transition layer at extratropical latitudes using mls o<sub>3</sub> and mopitt co analyses. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(14) :7225–7240, July 2013. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-13-7225-2013.
- P. Bechtold, E. Bazile, F. Guichard, P. Mascart, and E. Richard. A mass-flux convection scheme for regional and global models. *Quarterly Journal of the Royal*

- Meteorological Society*, 127(573) :869–886, Apr. 2001. ISSN 00359009, 1477870X. doi:10.1002/qj.49712757309.
- S. Bethan, G. Vaughan, and S. J. Reid. A comparison of ozone and thermal tropopause heights and the impact of tropopause definition on quantifying the ozone content of the troposphere. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 122(532) :929–944, 1996. ISSN 1477-870X. doi:10.1002/qj.49712253207.
- H. Bönisch, A. Engel, T. Birner, P. Hoor, D. W. Tarasick, and E. A. Ray. On the structural changes in the Brewer-Dobson circulation after 2000. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(8) :3937–3948, Apr. 2011. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-11-3937-2011.
- N. Bousserez, J. L. Attié, V. H. Peuch, M. Michou, G. Pfister, D. Edwards, L. Emmons, C. Mari, B. Barret, S. R. Arnold, A. Heckel, A. Richter, H. Schlager, A. Lewis, M. Avery, G. Sachse, E. V. Browell, and J. W. Hair. Evaluation of the mocage chemistry transport model during the icartt/itop experiment. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D10), 2007. doi:10.1029/2006JD007595.
- G. P. Brasseur, D. A. Hauglustaine, S. Walters, P. J. Rasch, J.-F. Müller, C. Granier, and X. X. Tie. MOZART, a global chemical transport model for ozone and related chemical tracers : 1. Model description. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 103 (D21) :28265–28289, Nov. 1998. ISSN 0148-0227. doi:10.1029/98JD02397. Publisher : John Wiley & Sons, Ltd.
- A. W. Brewer. Evidence for a world circulation provided by the measurements of helium and water vapour distribution in the stratosphere. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 75(326) :351–363, 1949. ISSN 1477-870X. doi:10.1002/qj.49707532603.
- J. Brioude, J.-P. Cammas, and O. R. Cooper. Stratosphere-troposphere exchange in a summertime extratropical low : analysis. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(8) : 2337–2353, June 2006. ISSN 1680-7316. doi:10.5194/acp-6-2337-2006.
- V. Brocchi, G. Krysztofiak, V. Catoire, J. Guth, V. Marécal, L. El Amraoui, F. Dulac, and P. Ricaud. Intercontinental transport of biomass burning pollutants over the Mediterranean Basin during the summer 2014 ChArMEx-GLAM airborne campaign. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, pages 1–30, Sept. 2017. ISSN 1680-7375. doi:10.5194/acp-2017-732.
- W. H. Brune, D. Tan, I. F. Faloona, L. Jaeglé, D. J. Jacob, B. G. Heikes, J. Snow, Y. Kondo, R. Shetter, G. W. Sachse, B. Anderson, G. L. Gregory, S. Vay, H. B. Singh, D. D. Davis, J. H. Crawford, and D. R. Blake. OH and HO<sub>2</sub> chemistry in the North Atlantic free troposphere. *Geophysical Research Letters*, 26(20) :3077–3080, 1999. ISSN 1944-8007. doi:10.1029/1999GL900549.
- U. Bundke, M. Berg, N. Houben, A. Ibrahim, M. Fiebig, F. Tettich, C. Klaus, H. Franke, and A. Petzold. The IAGOS-CORE aerosol package : instrument design, operation and performance for continuous measurement aboard in-service aircraft. *Tellus*

- B : Chemical and Physical Meteorology*, 67(1) :28339, Dec. 2015. ISSN 1600-0889. doi:10.3402/tellusb.v67.28339.
- N. Butchart. The Brewer-Dobson circulation. *Reviews of Geophysics*, 52(2) :157–184, 2014. ISSN 1944-9208. doi:10.1002/2013RG000448.
- M. Camredon and B. Aumont. Modélisation chimique de l’ozone et des oxydants gazeux. *Pollution Atmosphérique*, 2007. doi:10.4267/pollution-atmospherique.1404.
- D. Cariolle, P. Moinat, H. Teyssède, L. Giraud, B. Josse, and F. Lefèvre. ASIS v1.0 : an adaptive solver for the simulation of atmospheric chemistry. *Geoscientific Model Development*, 10(4) :1467–1485, Apr. 2017. ISSN 1991-959X. doi:10.5194/gmd-10-1467-2017. Publisher : Copernicus GmbH.
- D. J. Cecil, D. E. Buechler, and R. J. Blakeslee. Gridded lightning climatology from TRMM-LIS and OTD : Dataset description. *Atmospheric Research*, 135-136 :404–414, Jan. 2014. ISSN 01698095. doi:10.1016/j.atmosres.2012.06.028.
- Y. Cohen. *Climatologies et tendances de l’ozone et du monoxyde de carbone dans la haute troposphère - basse stratosphère, vues par les mesures IAGOS et le modèle MOCAGE*. PhD thesis, 2018. URL <http://www.theses.fr/2018T0U30288>. Thèse de doctorat dirigée par Thouret, Valérie et Marecal, Virginie.
- Y. Cohen, H. Petetin, V. Thouret, V. Marécal, B. Josse, H. Clark, B. Sauvage, A. Fontaine, G. Athier, R. Blot, D. Boulanger, J.-M. Cousin, and P. Nédélec. Climatology and long-term evolution of ozone and carbon monoxide in the upper troposphere–lower stratosphere (UTLS) at northern midlatitudes, as seen by IAGOS from 1995 to 2013. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(8) :5415–5453, Apr. 2018. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-18-5415-2018.
- P. Courtier, C. Freydl, J.-F. Geleyn, F. Rabier, and M. Rochas. The arpege project at meteo france. In *Seminar on Numerical Methods in Atmospheric Models, 9-13 September 1991*, volume II, pages 193–232, Shinfield Park, Reading, 1991. ECMWF, ECMWF.
- P. J. Crutzen, L. E. Heidt, J. P. Krasnec, W. H. Pollock, and W. Seiler. Biomass burning as a source of atmospheric gases CO, H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>O, NO, CH<sub>3</sub>Cl and COS. *Nature*, 282 (5736) :253–256, Nov. 1979. ISSN 1476-4687. doi:10.1038/282253a0.
- P. Cunningham and M. J. Reeder. Severe convective storms initiated by intense wildfires : Numerical simulations of pyro-convection and pyro-tornadogenesis. *Geophysical Research Letters*, 36(12), June 2009. ISSN 0094-8276. doi:10.1029/2009GL039262.
- R. Damoah, N. Spichtinger, R. Servranckx, M. Fromm, E. W. Eloranta, I. A. Razenkov, P. James, M. Shulski, C. Forster, and A. Stohl. A case study of pyro-convection using transport model and remote sensing data. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(1) : 173–185, Jan. 2006. ISSN 1680-7316. doi:<https://doi.org/10.5194/acp-6-173-2006>.
- M. N. Deeter, S. Martínez-Alonso, D. P. Edwards, L. K. Emmons, J. C. Gille, H. M. Worden, J. V. Pittman, B. C. Daube, and S. C. Wofsy. Validation of MOPITT Version 5 thermal-infrared, near-infrared, and multispectral carbon monoxide profile retrievals

- for 2000–2011. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 118(12) :6710–6725, 2013. ISSN 2169-8996. doi:10.1002/jgrd.50272.
- R. Delmas, G. Mégie, and V.-H. Peuch. *Physique et chimie de l'atmosphère*. Belin, 2005. ISBN 2-7011-3700-4.
- K. Ding, J. Liu, A. Ding, Q. Liu, T. L. Zhao, J. Shi, Y. Han, H. Wang, and F. Jiang. Uplifting of carbon monoxide from biomass burning and anthropogenic sources to the free troposphere in East Asia. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(5) :2843–2866, Mar. 2015. ISSN 1680-7316. doi:10.5194/acp-15-2843-2015.
- G. M. B. Dobson, D. N. Harrison, and J. Lawrence. Measurements of the amount of ozone in the Earth's atmosphere and its relation to other geophysical conditions.—Part III. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 122(790) :456–486, Feb. 1929. doi:10.1098/rspa.1929.0034. Publisher : Royal Society.
- B. N. Duncan, S. E. Strahan, Y. Yoshida, S. D. Steenrod, and N. Livesey. Model study of the cross-tropopause transport of biomass burning pollution. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(14) :3713–3736, July 2007. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-7-3713-2007.
- N. Elguindi, H. Clark, C. Ordóñez, V. Thouret, J. Flemming, O. Stein, V. Huijnen, P. Moinat, A. Inness, V.-H. Peuch, A. Stohl, S. Turquety, G. Athier, J.-P. Cammas, and M. Schultz. Current status of the ability of the GEMS/MACC models to reproduce the tropospheric CO vertical distribution as measured by MOZAIC. *Geoscientific Model Development*, 3(2) :501–518, Oct. 2010. ISSN 1991-9603. doi:10.5194/gmd-3-501-2010.
- A. Filges, C. Gerbig, C. W. Rella, J. Hoffnagle, H. Smit, M. Krämer, N. Spelten, C. Rolf, Z. Bozóki, B. Buchholz, and V. Ebert. Evaluation of the IAGOS-Core GHG package H<sub>2</sub>O measurements during the DENCHAR airborne inter-comparison campaign in 2011. *Atmospheric Measurement Techniques*, 11(9) :5279–5297, Sept. 2018. ISSN 1867-1381. doi:10.5194/amt-11-5279-2018.
- E. V. Fischer, D. J. Jacob, R. M. Yantosca, M. P. Sulprizio, D. B. Millet, J. Mao, F. Paulot, H. B. Singh, A. Roiger, L. Ries, R. W. Talbot, K. Dzepina, and S. Pandey Deolal. Atmospheric peroxyacetyl nitrate (PAN) : a global budget and source attribution. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(5) :2679–2698, Mar. 2014. ISSN 1680-7316. doi:10.5194/acp-14-2679-2014.
- S. R. Freitas, K. M. Longo, J. Trentmann, and D. Latham. Technical Note : Sensitivity of 1-D smoke plume rise models to the inclusion of environmental wind drag. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(2) :585–594, Jan. 2010. ISSN 1680-7316. doi:10.5194/acp-10-585-2010.
- M. A. Friedl, D. K. McIver, J. C. F. Hodges, X. Y. Zhang, D. Muchoney, A. H. Strahler, C. E. Woodcock, S. Gopal, A. Schneider, A. Cooper, A. Baccini, F. Gao, and C. Schaaf. Global land cover mapping from MODIS : algorithms and early results. *Remote Sensing of Environment*, 83(1) :287–302, Nov. 2002. ISSN 0034-4257. doi:10.1016/S0034-4257(02)00078-0.

- M. Fromm, O. Torres, D. Diner, D. Lindsey, B. V. Hull, R. Servranckx, E. P. Shettle, and Z. Li. Stratospheric impact of the Chisholm pyrocumulonimbus eruption : 1. Earth-viewing satellite perspective. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 113(D8), 2008. ISSN 2156-2202. doi:10.1029/2007JD009153.
- M. Fromm, D. T. Lindsey, R. Servranckx, G. Yue, T. Trickl, R. Sica, P. Doucet, and S. Godin-Beekmann. The Untold Story of Pyrocumulonimbus. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 91(9) :1193–1210, Sept. 2010. ISSN 0003-0007, 1520-0477. doi:10.1175/2010BAMS3004.1.
- M. Fromm, D. Peterson, and L. Di Girolamo. The Primary Convective Pathway for Observed Wildfire Emissions in the Upper Troposphere and Lower Stratosphere : A Targeted Reinterpretation. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 124(23) : 13254–13272, Dec. 2019. ISSN 2169-897X. doi:10.1029/2019JD031006. Publisher : John Wiley & Sons, Ltd.
- S. Fueglistaler, A. E. Dessler, T. J. Dunkerton, I. Folkins, Q. Fu, and P. W. Mote. Tropical tropopause layer. *Reviews of Geophysics*, 47(1), 2009. doi:https://doi.org/10.1029/2008RG000267.
- A. Gaudel, H. Clark, V. Thouret, L. Jones, A. Inness, J. Flemming, O. Stein, V. Huijnen, H. Eskes, P. Nedelec, and D. Boulanger. On the use of MOZAIC-IAGOS data to assess the ability of the MACC reanalysis to reproduce the distribution of ozone and CO in the UTLS over Europe. *Tellus B : Chemical and Physical Meteorology*, 67(1) :27955, Dec. 2015. doi:10.3402/tellusb.v67.27955.
- A. Gaudel, O. R. Cooper, G. Ancellet, B. Barret, A. Boynard, J. P. Burrows, C. Clerbaux, P.-F. Coheur, J. Cuesta, E. Cuevas, S. Doniki, G. Dufour, F. Ebojie, G. Foret, O. Garcia, M. J. G. Muñoz, J. W. Hannigan, F. Hase, G. Huang, B. Hassler, D. Hurtmans, D. Jaffe, N. Jones, P. Kalabokas, B. Kerridge, S. S. Kulawik, B. Latter, T. Leblanc, E. L. Flochmoën, W. Lin, J. Liu, X. Liu, E. Mahieu, A. McClure-Begley, J. L. Neu, M. Osman, M. Palm, H. Petetin, I. Petropavlovskikh, R. Querel, N. Rahpoe, A. Rozanov, M. G. Schultz, J. Schwab, R. Siddans, D. Smale, M. Steinbacher, H. Tanimoto, D. W. Tarasick, V. Thouret, A. M. Thompson, T. Trickl, E. Weatherhead, C. Wespes, H. M. Worden, C. Vigouroux, X. Xu, G. Zeng, and J. Ziemke. Tropospheric Ozone Assessment Report : Present-day distribution and trends of tropospheric ozone relevant to climate and global atmospheric chemistry model evaluation. *Elem Sci Anth*, 6(1) : 39, May 2018. ISSN 2325-1026. doi:10.1525/elementa.291.
- M. A. Geller, T. Zhou, D. Shindell, R. Ruedy, I. Aleinov, L. Nazarenko, N. L. Tausnev, M. Kelley, S. Sun, Y. Cheng, R. D. Field, and G. Faluvegi. Modeling the QBO—Improvements resulting from higher-model vertical resolution. *Journal of Advances in Modeling Earth Systems*, 8(3) :1092–1105, Sept. 2016. ISSN 1942-2466. doi:10.1002/2016MS000699.
- A. Gettelman, P. Hoor, L. L. Pan, W. J. Randel, M. I. Hegglin, and T. Birner. THE EXTRATROPICAL UPPER TROPOSPHERE AND LOWER STRATOSPHERE. *Reviews of Geophysics*, 49(3), Aug. 2011. ISSN 8755-1209. doi:10.1029/2011RG000355.

- L. Giglio, I. Csiszar, and C. O. Justice. Global distribution and seasonality of active fires as observed with the Terra and Aqua Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) sensors. *Journal of Geophysical Research : Biogeosciences*, 111(G2), 2006. ISSN 2156-2202. doi:10.1029/2005JG000142.
- L. Giglio, J. T. Randerson, and G. R. v. d. Werf. Analysis of daily, monthly, and annual burned area using the fourth-generation global fire emissions database (GFED4). *Journal of Geophysical Research : Biogeosciences*, 118(1) :317–328, 2013. ISSN 2169-8961. doi:10.1002/jgrg.20042.
- F. Giorgi and W. L. Chameides. Rainout lifetimes of highly soluble aerosols and gases as inferred from simulations with a general circulation model. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 91(D13) :14367–14376, 1986. ISSN 2156-2202. doi:10.1029/JD091iD13p14367.
- F. J. Gordillo-Vázquez, F. J. Pérez-Invernón, H. Huntrieser, and A. K. Smith. Comparison of Six Lightning Parameterizations in CAM5 and the Impact on Global Atmospheric Chemistry. *Earth and Space Science*, 6(12) :2317–2346, 2019. ISSN 2333-5084. doi:10.1029/2019EA000873.
- C. Granier, B. Bessagnet, T. Bond, A. D’Angiola, H. Denier van der Gon, G. J. Frost, A. Heil, J. W. Kaiser, S. Kinne, Z. Klimont, S. Kloster, J.-F. Lamarque, C. Liousse, T. Masui, F. Meleux, A. Mieville, T. Ohara, J.-C. Raut, K. Riahi, M. G. Schultz, S. J. Smith, A. Thompson, J. van Aardenne, G. R. van der Werf, and D. P. van Vuuren. Evolution of anthropogenic and biomass burning emissions of air pollutants at global and regional scales during the 1980–2010 period. *Climatic Change*, 109(1) :163, Aug. 2011. ISSN 1573-1480. doi:10.1007/s10584-011-0154-1.
- A. Gressent, B. Sauvage, E. Defer, H. W. Pätz, K. Thomas, R. Holle, J.-P. Cammas, P. Nédélec, D. Boulanger, V. Thouret, and A. Volz-Thomas. Lightning NO<sub>x</sub> influence on large-scale NO<sub>y</sub> and O<sub>3</sub> plumes observed over the northern mid-latitudes. *Tellus B : Chemical and Physical Meteorology*, 66(1) :25544, Jan. 2014. ISSN null. doi:10.3402/tellusb.v66.25544.
- A. Gressent, B. Sauvage, D. Cariolle, M. Evans, M. Leriche, C. Mari, and V. Thouret. Modeling lightning-NO<sub>x</sub> chemistry on a sub-grid scale in a global chemical transport model. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(9) :5867–5889, May 2016. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-16-5867-2016.
- J. Guth, B. Josse, V. Marécal, M. Joly, and P. Hamer. First implementation of secondary inorganic aerosols in the mocage version r2.15.0 chemistry transport model. *Geoscientific Model Development*, 9(1) :137–160, 2016. doi:10.5194/gmd-9-137-2016.
- J. Guth, V. Marécal, B. Josse, J. Arteta, and P. Hamer. Primary aerosol and secondary inorganic aerosol budget over the Mediterranean Basin during 2012 and 2013. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(7) :4911–4934, Apr. 2018. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-18-4911-2018.

- J. M. Haywood, J. Pelon, P. Formenti, N. Bharmal, M. Brooks, G. Capes, P. Chazette, C. Chou, S. Christopher, H. Coe, J. Cuesta, Y. Derimian, K. Desboeufs, G. Greed, M. Harrison, B. Heese, E. J. Highwood, B. Johnson, M. Mallet, B. Marticorena, J. Marsham, S. Milton, G. Myhre, S. R. Osborne, D. J. Parker, J.-L. Rajot, M. Schulz, A. Slingo, D. Tanré, and P. Tulet. Overview of the Dust and Biomass-burning Experiment and African Monsoon Multidisciplinary Analysis Special Observing Period-0. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 113(D23), 2008. ISSN 2156-2202. doi:10.1029/2008JD010077.
- M. Helten, H. G. J. Smit, D. Kley, J. Ovarlez, H. Schlager, R. Baumann, U. Schumann, P. Nedelec, and A. Marengo. In-flight comparison of MOZAIC and POLINAT water vapor measurements. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 104(D21) :26087–26096, 1999. ISSN 2156-2202. doi:10.1029/1999JD900315.
- L. Huang, R. Fu, J. H. Jiang, J. S. Wright, and M. Luo. Geographic and seasonal distributions of CO transport pathways and their roles in determining CO centers in the upper troposphere. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(10) :4683–4698, May 2012. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-12-4683-2012.
- L. Huang, R. Fu, and J. H. Jiang. Impacts of fire emissions and transport pathways on the interannual variation of CO in the tropical upper troposphere. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(8) :4087–4099, Apr. 2014. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-14-4087-2014.
- Y. Huang, S. Wu, and J. O. Kaplan. Sensitivity of global wildfire occurrences to various factors in the context of global change. *Atmospheric Environment*, 121 :86–92, Nov. 2015. ISSN 13522310. doi:10.1016/j.atmosenv.2015.06.002.
- C. Ichoku and L. Ellison. Global top-down smoke-aerosol emissions estimation using satellite fire radiative power measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14 (13) :6643–6667, 2014. doi:10.5194/acp-14-6643-2014.
- A. Inness, F. Baier, A. Benedetti, I. Bouarar, S. Chabrillat, H. Clark, C. Clerbaux, P. Coheur, R. J. Engelen, Q. Errera, J. Flemming, M. George, C. Granier, J. Hadji-Lazaro, V. Huijnen, D. Hurtmans, L. Jones, J. W. Kaiser, J. Kapsomenakis, K. Lefever, J. Leitão, M. Razinger, A. Richter, M. G. Schultz, A. J. Simmons, M. Suttie, O. Stein, J.-N. Thépaut, V. Thouret, M. Vrekoussis, C. Zerefos, and the MACC team. The MACC reanalysis : an 8 yr data set of atmospheric composition. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(8) :4073–4109, Apr. 2013. ISSN 1680-7316. doi:10.5194/acp-13-4073-2013.
- IPCC. *Climate Change 2013 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, 2013. ISBN 978-1-107-66182-0. doi:10.1017/CBO9781107415324. URL [www.climatechange2013.org](http://www.climatechange2013.org).
- D. J. Jacobs. *Introduction to Atmospheric Chemistry*. Princeton University Press, 1999.

- L. Jaeglé, D. J. Jacob, W. H. Brune, I. Faloon, D. Tan, B. G. Heikes, Y. Kondo, G. W. Sachse, B. Anderson, G. L. Gregory, H. B. Singh, R. Pueschel, G. Ferry, D. R. Blake, and R. E. Shetter. Photochemistry of HO<sub>x</sub> in the upper troposphere at northern midlatitudes. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 105(D3) :3877–3892, 2000. doi:10.1029/1999JD901016.
- L. Jaeglé, R. Wood, and K. Wargan. Multiyear Composite View of Ozone Enhancements and Stratosphere-to-Troposphere Transport in Dry Intrusions of Northern Hemisphere Extratropical Cyclones : Dry Intrusion Ozone Composites. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 122(24) :13,436–13,457, Dec. 2017. ISSN 2169897X. doi:10.1002/2017JD027656.
- D. A. Jaffe and N. L. Wigder. Ozone production from wildfires : A critical review. *Atmospheric Environment*, 51 :1–10, May 2012. ISSN 13522310. doi:10.1016/j.atmosenv.2011.11.063.
- J. H. Jiang, N. J. Livesey, H. Su, L. Neary, J. C. McConnell, and N. A. D. Richards. Connecting surface emissions, convective uplifting, and long-range transport of carbon monoxide in the upper troposphere : New observations from the Aura Microwave Limb Sounder. *Geophysical Research Letters*, 34(18), 2007. ISSN 1944-8007. doi:10.1029/2007GL030638.
- P. Jing and S. Banerjee. Rossby Wave Breaking and Isentropic Stratosphere-Troposphere Exchange During 1981–2015 in the Northern Hemisphere. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 123(17) :9011–9025, 2018. ISSN 2169-8996. doi:10.1029/2018JD028997.
- B. Josse, P. Simon, and V.-H. Peuch. Radon global simulations with the multiscale chemistry and transport model MOCAGE. *Tellus B*, 56(4) :339–356, Sept. 2004. ISSN 0280-6509, 1600-0889. doi:10.1111/j.1600-0889.2004.00112.x.
- C. O. Justice, L. Giglio, S. Korontzi, J. Owens, J. T. Morisette, D. Roy, J. Descloitres, S. Alleaume, F. Petitcolin, and Y. Kaufman. The MODIS fire products. *Remote Sensing of Environment*, 83(1) :244–262, Nov. 2002. ISSN 0034-4257. doi:10.1016/S0034-4257(02)00076-7.
- R. A. Kahn, Y. Chen, D. L. Nelson, F.-Y. Leung, Q. Li, D. J. Diner, and J. A. Logan. Wildfire smoke injection heights : Two perspectives from space. *Geophysical Research Letters*, 35(4), Feb. 2008. ISSN 1944-8007. doi:10.1029/2007GL032165.
- J. S. Kain and J. M. Fritsch. A One-Dimensional Entraining/Detraining Plume Model and Its Application in Convective Parameterization. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 47(23) :2784–2802, Dec. 1989. ISSN 0022-4928. doi:10.1175/1520-0469(1990)047<2784 :AODEPM>2.0.CO ;2.
- J. W. Kaiser, A. Heil, M. O. Andreae, A. Benedetti, N. Chubarova, L. Jones, J.-J. Morcrette, M. Razinger, M. G. Schultz, M. Suttie, and G. R. van der Werf. Biomass burning emissions estimated with a global fire assimilation system based on observed fire radiative power. *Biogeosciences*, 9(1) :527–554, Jan. 2012. ISSN 1726-4189. doi:10.5194/bg-9-527-2012.

- B. Škerlak, M. Sprenger, and H. Wernli. A global climatology of stratosphere–troposphere exchange using the ERA-Interim data set from 1979 to 2011. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(2) :913–937, Jan. 2014. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-14-913-2014.
- S. Khaykin, B. Legras, S. Bucci, P. Sellitto, L. Isaksen, F. Tencé, S. Bekki, A. Bourassa, L. Rieger, D. Zawada, J. Jumelet, and S. Godin-Beekmann. The 2019/20 Australian wildfires generated a persistent smoke-charged vortex rising up to 35 km altitude. *Communications Earth & Environment*, 1(1) :1–12, Sept. 2020. ISSN 2662-4435. doi:10.1038/s43247-020-00022-5. Number : 1 Publisher : Nature Publishing Group.
- R. D. Koster, A. S. Darmenov, and A. M. da Silva. The quick fire emissions dataset (qfed) : Documentation of versions 2.1, 2.2 and 2.4. *Technical Report Series on Global Modeling and Data Assimilation*, 38, 2015.
- A. Krause, S. Kloster, S. Wilkenskjeld, and H. Paeth. The sensitivity of global wildfires to simulated past, present, and future lightning frequency. *Journal of Geophysical Research : Biogeosciences*, 119(3) :312–322, Mar. 2014. ISSN 21698953. doi:10.1002/2013JG002502.
- M. Labonne, F.-M. Bréon, and F. Chevallier. Injection height of biomass burning aerosols as seen from a spaceborne lidar. *Geophysical Research Letters*, 34(11), June 2007. ISSN 1944-8007. doi:10.1029/2007GL029311.
- L. J. Labrador, R. von Kuhlmann, and M. G. Lawrence. The effects of lightning-produced  $\text{no}_x$  and its vertical distribution on atmospheric chemistry : sensitivity simulations with match-mpic. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(7) :1815–1834, 2005. doi:10.5194/acp-5-1815-2005.
- J.-F. Lamarque, T. C. Bond, V. Eyring, C. Granier, A. Heil, Z. Klimont, D. Lee, C. Liou, A. Mieville, B. Owen, M. G. Schultz, D. Shindell, S. J. Smith, E. Stehfest, J. Van Aardenne, O. R. Cooper, M. Kainuma, N. Mahowald, J. R. McConnell, V. Naik, K. Riahi, and D. P. van Vuuren. Historical (1850–2000) gridded anthropogenic and biomass burning emissions of reactive gases and aerosols : methodology and application. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(15) :7017–7039, 2010. doi:10.5194/acp-10-7017-2010.
- D. Lavoué, C. Liou, H. Cachier, B. J. Stocks, and J. G. Goldammer. Modeling of carbonaceous particles emitted by boreal and temperate wildfires at northern latitudes. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 105(D22) :26871–26890, 2000. ISSN 2156-2202. doi:10.1029/2000JD900180.
- F. Lefèvre, G. P. Brasseur, I. Folkins, A. K. Smith, and P. Simon. Chemistry of the 1991–1992 stratospheric winter : Three-dimensional model simulations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 99(D4) :8183–8195, 1994. ISSN 2156-2202. doi:10.1029/93JD03476.
- J. Lelieveld, S. Gromov, A. Pozzer, and D. Taraborrelli. Global tropospheric hydroxyl distribution, budget and reactivity. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(19) :12477–12493, Oct. 2016. ISSN 1680-7316. doi:10.5194/acp-16-12477-2016.

- F.-Y. T. Leung, J. A. Logan, R. Park, E. Hyer, E. Kasischke, D. Streets, and L. Yurganov. Impacts of enhanced biomass burning in the boreal forests in 1998 on tropospheric chemistry and the sensitivity of model results to the injection height of emissions. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D10), 2007. ISSN 2156-2202. doi:10.1029/2006JD008132.
- C. E. Liaskos, D. J. Allen, and K. E. Pickering. Sensitivity of tropical tropospheric composition to lightning NO<sub>x</sub> production as determined by replay simulations with GEOS-5. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 120(16) :8512–8534, 2015. ISSN 2169-8996. doi:10.1002/2014JD022987.
- C. Lin and Y. Zhang. Lofting and Circumnavigation of Biomass Burning Aerosols and Carbon Monoxide from a North American Wildfire in October 2020. *ACS Earth and Space Chemistry*, Feb. 2021. doi:10.1021/acsearthspacechem.0c00307.
- H. Liu, D. J. Jacob, I. Bey, and R. M. Yantosca. Constraints from 210pb and 7be on wet deposition and transport in a global three-dimensional chemical tracer model driven by assimilated meteorological fields. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 106 (D11) :12109–12128, 2001. ISSN 2156-2202. doi:10.1029/2000JD900839.
- J. Liu, J. A. Logan, L. T. Murray, H. C. Pumphrey, M. J. Schwartz, and I. A. Megretskaja. Transport analysis and source attribution of seasonal and interannual variability of CO in the tropical upper troposphere and lower stratosphere. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(1) :129–146, Jan. 2013. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-13-129-2013.
- J.-F. Louis. A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere. *Boundary-Layer Meteorology*, 17(2) :187–202, Sept. 1979. ISSN 0006-8314, 1573-1472. doi:10.1007/BF00117978.
- F. K. Lutgens, E. J. Tarbuck, and D. Tusa. *The Atmosphere*. Prentice Hall, 2001.
- E. M. Maddox and G. L. Mullendore. Determination of Best Tropopause Definition for Convective Transport Studies. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 75(10) :3433–3446, Oct. 2018. ISSN 0022-4928. doi:10.1175/JAS-D-18-0032.1.
- S. Madronich. Photodissociation in the atmosphere : 1. Actinic flux and the effects of ground reflections and clouds. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 92 (D8) :9740–9752, 1987. ISSN 2156-2202. doi:10.1029/JD092iD08p09740. \_eprint : <https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/pdf/10.1029/JD092iD08p09740>.
- V. Marécal, V.-H. Peuch, C. Andersson, S. Andersson, J. Arteta, M. Beekmann, A. Benedictow, R. Bergström, B. Bessagnet, A. Cansado, F. Chéroux, A. Colette, A. Coman, R. L. Curier, H. a. C. Denier van der Gon, A. Drouin, H. Elbern, E. Emili, R. J. Engelen, H. J. Eskes, G. Foret, E. Friese, M. Gauss, C. Giannaros, J. Guth, M. Joly, E. Jaumouillé, B. Josse, N. Kadygrov, J. W. Kaiser, K. Krajsek, J. Kuenen, U. Kumar, N. Liora, E. Lopez, L. Malherbe, I. Martinez, D. Melas, F. Meleux, L. Menut, P. Moinat, T. Morales, J. Parmentier, A. Piacentini, M. Plu, A. Poupkou, S. Queguiner, L. Robertson, L. Rouïl, M. Schaap, A. Segers, M. Sofiev, L. Tarasson, M. Thomas, R. Timmermans, . Valdebenito, P. van Velthoven, R. van Versendaal, J. Vira, and

- A. Ung. A regional air quality forecasting system over Europe : the MACC-II daily ensemble production. *Geoscientific Model Development*, 8(9) :2777–2813, Sept. 2015. ISSN 1991-959X. doi:10.5194/gmd-8-2777-2015.
- A. Marengo, V. Thouret, P. Nédélec, H. Smit, M. Helten, D. Kley, F. Karcher, P. Simon, K. Law, J. Pyle, G. Poschmann, R. V. Wrede, C. Hume, and T. Cook. Measurement of ozone and water vapor by Airbus in-service aircraft : The MOZAIIC airborne program, an overview. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 103(D19) :25631–25642, 1998. ISSN 2156-2202. doi:10.1029/98JD00977.
- C. Mari, D. J. Jacob, and P. Bechtold. Transport and scavenging of soluble gases in a deep convective cloud. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 105(D17) : 22255–22267, 2000. ISSN 2156-2202. doi:10.1029/2000JD900211.
- C. H. Mari, G. Cailley, L. Corre, M. Saunois, J. L. Attié, V. Thouret, and A. Stohl. Tracing biomass burning plumes from the Southern Hemisphere during the AMMA 2006 wet season experiment. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(14) :3951–3961, July 2008. ISSN 1680-7316. doi:https://doi.org/10.5194/acp-8-3951-2008.
- D. L. Mauzerall, J. A. Logan, D. J. Jacob, B. E. Anderson, D. R. Blake, J. D. Bradshaw, B. Heikes, G. W. Sachse, H. Singh, and B. Talbot. Photochemistry in biomass burning plumes and implications for tropospheric ozone over the tropical south atlantic. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 103(D7) :8401–8423, 1998. doi:10.1029/97JD02612.
- K. Miyazaki, S. Watanabe, Y. Kawatani, Y. Tomikawa, M. Takahashi, and K. Sato. Transport and Mixing in the Extratropical Tropopause Region in a High-Vertical-Resolution GCM. Part I : Potential Vorticity and Heat Budget Analysis. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 67(5) :1293–1314, May 2010. ISSN 0022-4928, 1520-0469. doi:10.1175/2009JAS3221.1.
- O. Morgenstern, M. I. Hegglin, E. Rozanov, F. M. O’Connor, N. L. Abraham, H. Akiyoshi, A. T. Archibald, S. Bekki, N. Butchart, M. P. Chipperfield, M. Deushi, S. S. Dhomse, R. R. Garcia, S. C. Hardiman, L. W. Horowitz, P. Jöckel, B. Josse, D. Kinnison, M. Lin, E. Mancini, M. E. Manyin, M. Marchand, V. Marécal, M. Michou, L. D. Oman, G. Pitari, D. A. Plummer, L. E. Revell, D. Saint-Martin, R. Schofield, A. Stenke, K. Stone, K. Sudo, T. Y. Tanaka, S. Tilmes, Y. Yamashita, K. Yoshida, and G. Zeng. Review of the global models used within phase 1 of the Chemistry–Climate Model Initiative (CCMI). *Geoscientific Model Development*, 10(2) :639–671, Feb. 2017. ISSN 1991-959X. doi:10.5194/gmd-10-639-2017.
- L. T. Murray. Lightning NO<sub>x</sub> and Impacts on Air Quality. *Current Pollution Reports*, 2 (2) :115–133, June 2016. ISSN 2198-6592. doi:10.1007/s40726-016-0031-7.
- B. A. Nault, J. L. Laughner, P. J. Wooldridge, J. D. Crouse, J. Dibb, G. Diskin, J. Peischl, J. R. Podolske, I. B. Pollack, T. B. Ryerson, E. Scheuer, P. O. Wennberg, and R. C. Cohen. Lightning NO<sub>x</sub> Emissions : Reconciling Measured and Modeled Estimates With Updated NO<sub>x</sub> Chemistry. *Geophysical Research Letters*, 44(18) :9479–9488, 2017. ISSN 1944-8007. doi:10.1002/2017GL074436.

- P. Nédélec, J.-P. Cammas, V. Thouret, G. Athier, J.-M. Cousin, C. Legrand, C. Abonnel, F. Lecoœur, G. Cayez, and C. Marizy. An improved infrared carbon monoxide analyser for routine measurements aboard commercial Airbus aircraft : technical validation and first scientific results of the MOZAIC III programme. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3(5) :1551–1564, 2003. doi:10.5194/acp-3-1551-2003.
- P. Nédélec, R. Blot, D. Boulanger, G. Athier, J.-M. Cousin, B. Gautron, A. Petzold, A. Volz-Thomas, and V. Thouret. Instrumentation on commercial aircraft for monitoring the atmospheric composition on a global scale : the IAGOS system, technical overview of ozone and carbon monoxide measurements. *Tellus B : Chemical and Physical Meteorology*, 67(1) :27791, Dec. 2015. ISSN 1600-0889. doi:10.3402/tellusb.v67.27791.
- P. Nedelec, V. Thouret, J. Brioude, B. Sauvage, J.-P. Cammas, and A. Stohl. Extreme CO concentrations in the upper troposphere over northeast Asia in June 2003 from the in situ MOZAIC aircraft data. *Geophysical Research Letters*, 32(14), 2005. ISSN 1944-8007. doi:10.1029/2005GL023141.
- S. C. Olsen, G. P. Brasseur, D. J. Wuebbles, S. R. H. Barrett, H. Dang, S. D. Eastham, M. Z. Jacobson, A. Khodayari, H. Selkirk, A. Sokolov, and N. Unger. Comparison of model estimates of the effects of aviation emissions on atmospheric ozone and methane. *Geophysical Research Letters*, 40(22) :6004–6009, 2013. ISSN 1944-8007. doi:10.1002/2013GL057660.
- C. Orbe, H. Yang, D. W. Waugh, G. Zeng, O. Morgenstern, D. E. Kinnison, J.-F. Lamarque, S. Tilmes, D. A. Plummer, J. F. Scinnoca, B. Josse, V. Marecal, P. Jöckel, L. D. Oman, S. E. Strahan, M. Deushi, T. Y. Tanaka, K. Yoshida, H. Akiyoshi, Y. Yamashita, A. Stenke, L. Revell, T. Sukhodolov, E. Rozanov, G. Pitari, D. Visioni, K. A. Stone, and R. Schofield. Large-Scale Tropospheric Transport in the Chemistry Climate Model Initiative (CCMI) Simulations. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, pages 1–29, Nov. 2017. ISSN 1680-7375. doi:10.5194/acp-2017-1038.
- L. L. Pan and L. A. Munchak. Relationship of cloud top to the tropopause and jet structure from CALIPSO data. *Journal of Geophysical Research*, 116(D12), June 2011. ISSN 0148-0227. doi:10.1029/2010JD015462.
- M. Parrington, P. I. Palmer, A. C. Lewis, J. D. Lee, A. R. Rickard, P. Di Carlo, J. W. Taylor, J. R. Hopkins, S. Punjabi, D. E. Oram, G. Forster, E. Aruffo, S. J. Moller, S. J.-B. Bauguitte, J. D. Allan, H. Coe, and R. J. Leigh. Ozone photochemistry in boreal biomass burning plumes. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(15) :7321–7341, Aug. 2013. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-13-7321-2013.
- R. Paugam, M. Wooster, S. Freitas, and M. Val Martin. A review of approaches to estimate wildfire plume injection height within large-scale atmospheric chemical transport models. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(2) :907–925, Jan. 2016. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-16-907-2016.
- O. Pechony and D. T. Shindell. Driving forces of global wildfires over the past millennium and the forthcoming century. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 107(45) :19167–19170, 2010. ISSN 0027-8424. doi:10.1073/pnas.1003669107.

- D. A. Peterson, J. R. Campbell, E. J. Hyer, M. D. Fromm, G. P. Kablick, J. H. Cossuth, and M. T. DeLand. Wildfire-driven thunderstorms cause a volcano-like stratospheric injection of smoke. *npj Climate and Atmospheric Science*, 1(1) :1–8, Aug. 2018. ISSN 2397-3722. doi:10.1038/s41612-018-0039-3.
- H. Petetin, B. Sauvage, M. Parrington, H. Clark, A. Fontaine, G. Athier, R. Blot, D. Boulanger, J.-M. Cousin, P. Nédélec, and V. Thouret. The role of biomass burning as derived from the tropospheric CO vertical profiles measured by IAGOS aircraft in 2002–2017. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(23) :17277–17306, Dec. 2018. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-18-17277-2018.
- A. Petzold, V. Thouret, C. Gerbig, A. Zahn, C. A. M. Brenninkmeijer, M. Gallagher, M. Hermann, M. Pontaud, H. Ziereis, D. Boulanger, J. Marshall, P. Nédélec, H. G. J. Smit, U. Friess, J.-M. Flaud, A. Wahner, J.-P. Cammas, A. Volz-Thomas, and I. TEAM. Global-scale atmosphere monitoring by in-service aircraft – current achievements and future prospects of the european research infrastructure iagos. *Tellus B : Chemical and Physical Meteorology*, 67(1) :28452, 2015. doi:10.3402/tellusb.v67.28452.
- R. A. Plumb. Stratospheric Transport. *Journal of the Meteorological Society of Japan. Ser. II*, 80(4B) :793–809, 2002. ISSN 0026-1165, 2186-9057. doi:10.2151/jmsj.80.793.
- C. Price, J. Penner, and M. Prather. NO<sub>x</sub> from lightning : 1. Global distribution based on lightning physics. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, Mar. 1997. doi:10.1029/96JD03504.
- E. Real, K. S. Law, B. Weinzierl, M. Fiebig, A. Petzold, O. Wild, J. Methven, S. Arnold, A. Stohl, H. Huntrieser, A. Roiger, H. Schlager, D. Stewart, M. Avery, G. Sachse, E. Browell, R. Ferrare, and D. Blake. Processes influencing ozone levels in Alaskan forest fire plumes during long-range transport over the North Atlantic. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D10), 2007. ISSN 2156-2202. doi:10.1029/2006JD007576.
- E. Real, E. Orlando, K. S. Law, F. Fierli, D. Josset, F. Cairo, H. Schlager, S. Borrmann, D. Kunkel, C. M. Volk, J. B. McQuaid, D. J. Stewart, J. Lee, A. C. Lewis, J. R. Hopkins, F. Ravegnani, A. Ulanovski, and C. Liousse. Cross-hemispheric transport of central African biomass burning pollutants : implications for downwind ozone production. *Atmos. Chem. Phys.*, page 20, 2010.
- L. E. Revell, A. Stenke, F. Tummon, A. Feinberg, E. Rozanov, T. Peter, N. L. Abraham, H. Akiyoshi, A. T. Archibald, N. Butchart, M. Deushi, P. Jöckel, D. Kinnison, M. Michou, O. Morgenstern, F. M. O’Connor, L. D. Oman, G. Pitari, D. A. Plummer, R. Schofield, K. Stone, S. Tilmes, D. Visioni, Y. Yamashita, and G. Zeng. Tropospheric ozone in ccmi models and gaussian process emulation to understand biases in the socol3 chemistry–climate model. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(21) : 16155–16172, 2018. doi:10.5194/acp-18-16155-2018.
- P. Ricaud, B. Barret, J.-L. Attié, E. Motte, E. L. Flochmoën, H. Teyssède, V.-H. Peuch, N. Livesey, A. Lambert, and J.-P. Pommereau. Impact of land convection on troposphere-stratosphere exchange in the tropics. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(21) :5639–5657, Nov. 2007. ISSN 1680-7316. doi:10.5194/acp-7-5639-2007.

- M. Riese, F. Ploeger, A. Rap, B. Vogel, P. Konopka, M. Dameris, and P. Forster. Impact of uncertainties in atmospheric mixing on simulated UTLS composition and related radiative effects : IMPACT OF MIXING ON RADIATIVE EFFECTS. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 117(D16) :n/a–n/a, Aug. 2012. ISSN 01480227. doi:10.1029/2012JD017751.
- S. Rémy, A. Veira, R. Paugam, M. Sofiev, J. W. Kaiser, F. Marenco, S. P. Burton, A. Benedetti, R. J. Engelen, R. Ferrare, and J. W. Hair. Two global data sets of daily fire emission injection heights since 2003. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(4) : 2921–2942, Feb. 2017. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-17-2921-2017.
- L. Rouil, C. Honoré, R. Vautard, M. Beekmann, B. Bessagnet, L. Malherbe, F. Meleux, A. Dufour, C. Elichegaray, J.-M. Flaud, L. Menut, D. Martin, A. Peuch, V.-H. Peuch, and N. Poisson. Prev'air : An Operational Forecasting and Mapping System for Air Quality in Europe. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 90(1) :73–84, Jan. 2009. ISSN 0003-0007. doi:10.1175/2008BAMS2390.1.
- B. Sauvage, R. V. Martin, A. v. Donkelaar, X. Liu, K. Chance, L. Jaeglé, P. I. Palmer, S. Wu, and T.-M. Fu. Remote sensed and in situ constraints on processes affecting tropical tropospheric ozone. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(3) :815–838, Feb. 2007a. ISSN 1680-7316. doi:https://doi.org/10.5194/acp-7-815-2007.
- B. Sauvage, R. V. Martin, A. v. Donkelaar, and J. R. Ziemke. Quantification of the factors controlling tropical tropospheric ozone and the South Atlantic maximum. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D11), 2007b. ISSN 2156-2202. doi:10.1029/2006JD008008.
- B. Sauvage, A. Fontaine, S. Eckhardt, A. Auby, D. Boulanger, H. Petetin, R. Paugam, G. Athier, J.-M. Cousin, S. Darras, P. Nédélec, A. Stohl, S. Turquety, J.-P. Cammas, and V. Thouret. Source attribution using FLEXPART and carbon monoxide emission inventories : SOFT-IO version 1.0. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(24) :15271–15292, Dec. 2017. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-17-15271-2017.
- U. Schumann and H. Huntrieser. The global lightning-induced nitrogen oxides source. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(14) :3823–3907, July 2007. ISSN 1680-7316. doi:10.5194/acp-7-3823-2007.
- P. Seibert and A. Frank. Source-receptor matrix calculation with a Lagrangian particle dispersion model in backward mode. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4(1) :51–63, Jan. 2004. ISSN 1680-7316. doi:https://doi.org/10.5194/acp-4-51-2004.
- C. Seigneur, B. Pun, P. Pai, J.-F. Louis, P. Solomon, C. Emery, R. Morris, M. Zahniser, D. Worsnop, P. Koutrakis, W. White, and I. Tombach. Guidance for the Performance Evaluation of Three-Dimensional Air Quality Modeling Systems for Particulate Matter and Visibility. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 50(4) :588–599, Apr. 2000. ISSN 1096-2247, 2162-2906. doi:10.1080/10473289.2000.10464036.
- M. A. Shapiro. Turbulent Mixing within Tropopause Folds as a Mechanism for the Exchange of Chemical Constituents between the Stratosphere and Troposphere. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 37(5) :994–1004, May 1980. ISSN 0022-4928.

- doi:10.1175/1520-0469(1980)037<0994 :TMWTFA>2.0.CO ;2. Publisher : American Meteorological Society.
- R. D. Sharman, S. B. Trier, T. P. Lane, and J. D. Doyle. Sources and dynamics of turbulence in the upper troposphere and lower stratosphere : A review. *Geophysical Research Letters*, 39(12), June 2012. ISSN 1944-8007. doi:10.1029/2012GL051996@10.1002/(ISSN)1944-8007.ATMOS\_VARIABILITY. Publisher : John Wiley & Sons, Ltd.
- S. Sillman, K. I. Al-Wali, F. J. Marsik, P. Nowacki, P. J. Samson, M. O. Rodgers, L. J. Garland, J. E. Martinez, C. Stoneking, R. Imhoff, J. H. Lee, L. Newman, J. Weinstein-Lloyd, and V. P. Aneja. Photochemistry of ozone formation in atlanta, ga-models and measurements. *Atmospheric Environment*, 29(21) :3055 – 3066, 1995. ISSN 1352-2310. doi:10.1016/1352-2310(95)00217-M.
- K. Sindelarova, C. Granier, I. Bouarar, A. Guenther, S. Tilmes, T. Stavrakou, J.-F. Müller, U. Kuhn, P. Stefani, and W. Knorr. Global data set of biogenic VOC emissions calculated by the MEGAN model over the last 30 years. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(17) :9317–9341, Sept. 2014. ISSN 1680-7316. doi:10.5194/acp-14-9317-2014.
- S. A. Slinn and W. G. N. Slinn. Predictions for particle deposition on natural waters. *Atmospheric Environment (1967)*, 14(9) :1013–1016, Jan. 1980. ISSN 0004-6981. doi:10.1016/0004-6981(80)90032-3.
- M. Sofiev, R. Vankevich, M. Lotjonen, M. Prank, V. Petukhov, T. Ermakova, J. Koskinen, and J. Kukkonen. An operational system for the assimilation of the satellite information on wild-land fires for the needs of air quality modelling and forecasting. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(18) :6833–6847, Sept. 2009. ISSN 1680-7316. doi:10.5194/acp-9-6833-2009. Publisher : Copernicus GmbH.
- M. Sofiev, T. Ermakova, and R. Vankevich. Evaluation of the smoke-injection height from wild-land fires using remote-sensing data. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(4) : 1995–2006, Feb. 2012. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-12-1995-2012.
- S. Solomon, D. W. J. Thompson, R. W. Portmann, S. J. Oltmans, and A. M. Thompson. On the distribution and variability of ozone in the tropical upper troposphere : Implications for tropical deep convection and chemical-dynamical coupling. *Geophysical Research Letters*, 32(23), 2005. ISSN 1944-8007. doi:10.1029/2005GL024323.
- O. Stein, M. G. Schultz, I. Bouarar, H. Clark, V. Huijnen, A. Gaudel, M. George, and C. Clerbaux. On the wintertime low bias of Northern Hemisphere carbon monoxide found in global model simulations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(17) :9295–9316, Sept. 2014. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-14-9295-2014.
- W. R. Stockwell, P. Middleton, J. S. Chang, and X. Tang. The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 95(D10) :16343–16367, 1990. ISSN 2156-2202. doi:10.1029/JD095iD10p16343.

- W. R. Stockwell, F. Kirchner, M. Kuhn, and S. Seefeld. A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 102 (D22) :25847–25879, Nov. 1997. ISSN 01480227. doi:10.1029/97JD00849.
- A. Stohl, P. Bonasoni, P. Cristofanelli, W. Collins, J. Feichter, A. Frank, C. Forster, E. Gerasopoulos, H. Gäggeler, P. James, T. Kentarchos, H. Kromp-Kolb, B. Krüger, C. Land, J. Meloen, A. Papayannis, A. Priller, P. Seibert, M. Sprenger, G. J. Roelofs, H. E. Scheel, C. Schnabel, P. Siegmund, L. Tobler, T. Trickl, H. Wernli, V. Wirth, P. Zanis, and C. Zerefos. Stratosphere-troposphere exchange : A review, and what we have learned from STACCATO. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108 (D12), 2003. ISSN 2156-2202. doi:10.1029/2002JD002490.
- A. Stohl, C. Forster, A. Frank, P. Seibert, and G. Wotawa. Technical note : The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(9) :2461–2474, Sept. 2005. ISSN 1680-7316. doi:10.5194/acp-5-2461-2005. Publisher : Copernicus GmbH.
- G. Stratmann, H. Ziereis, P. Stock, C. Brenninkmeijer, A. Zahn, A. Rauthe-Schöch, P. Velthoven, H. Schlager, and A. Volz-Thomas. No and nøy in the upper troposphere : Nine years of caribic measurements onboard a passenger aircraft. *Atmospheric Environment*, 133 :93 – 111, 2016. ISSN 1352-2310. doi:10.1016/j.atmosenv.2016.02.035.
- J. L. Thomas, J.-C. Raut, K. S. Law, L. Marelle, G. Ancellet, F. Ravetta, J. D. Fast, G. Pfister, L. K. Emmons, G. S. Diskin, A. Weinheimer, A. Roiger, and H. Schlager. Pollution transport from North America to Greenland during summer 2008. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13(7) :3825–3848, Apr. 2013. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-13-3825-2013.
- V. Thouret, A. Marenco, J. A. Logan, P. Nédélec, and C. Grouhel. Comparisons of ozone measurements from the MOZAIC airborne program and the ozone sounding network at eight locations. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 103(D19) :25695–25720, 1998. ISSN 2156-2202. doi:10.1029/98JD02243.
- V. Thouret, J.-P. Cammas, B. Sauvage, G. Athier, R. Zbinden, P. Nédélec, P. Simon, and F. Karcher. Tropopause referenced ozone climatology and inter-annual variability (1994–2003) from the MOZAIC programme. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6 (4) :1033–1051, Mar. 2006. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-6-1033-2006.
- S. Turquety, J. A. Logan, D. J. Jacob, R. C. Hudman, F. Y. Leung, C. L. Heald, R. M. Yantosca, S. Wu, L. K. Emmons, D. P. Edwards, and G. W. Sachse. Inventory of boreal fire emissions for North America in 2004 : Importance of peat burning and pyroconvective injection. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D12), 2007. ISSN 2156-2202. doi:10.1029/2006JD007281.
- S. Turquety, L. Menut, B. Bessagnet, A. Anav, N. Viovy, F. Maignan, and M. Wooster. Apiflame v1.0 : high-resolution fire emission model and application to the euro-mediterranean region. *Geoscientific Model Development*, 7(2) :587–612, 2014. doi:10.5194/gmd-7-587-2014.

- H. Ueda, T. Fukui, M. Kajino, M. Horiguchi, H. Hashiguchi, and S. Fukao. Eddy Diffusivities for Momentum and Heat in the Upper Troposphere and Lower Stratosphere Measured by MU Radar and RASS, and a Comparison of Turbulence Model Predictions. *Journal of the Atmospheric Sciences*, 69(1) :323–337, July 2011. ISSN 0022-4928. doi:10.1175/JAS-D-11-023.1. Publisher : American Meteorological Society.
- M. Val Martin, R. A. Kahn, and M. G. Tosca. A Global Analysis of Wildfire Smoke Injection Heights Derived from Space-Based Multi-Angle Imaging. *Remote Sensing*, 10(10) : 1609, Oct. 2018. doi:10.3390/rs10101609. Number : 10 Publisher : Multidisciplinary Digital Publishing Institute.
- G. R. van der Werf, J. T. Randerson, L. Giglio, G. J. Collatz, P. S. Kasibhatla, and A. F. Arellano Jr. Interannual variability in global biomass burning emissions from 1997 to 2004. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(11) :3423–3441, 2006. doi:10.5194/acp-6-3423-2006.
- G. R. van der Werf, J. T. Randerson, L. Giglio, T. T. van Leeuwen, Y. Chen, B. M. Rogers, M. Mu, M. J. E. van Marle, D. C. Morton, G. J. Collatz, R. J. Yokelson, and P. S. Kasibhatla. Global fire emissions estimates during 1997–2016. *Earth System Science Data*, 9(2) :697–720, Sept. 2017. ISSN 1866-3516. doi:10.5194/essd-9-697-2017.
- M. J. E. van Marle, S. Kloster, B. I. Magi, J. R. Marlon, A.-L. Daniau, R. D. Field, A. Arneth, M. Forrest, S. Hantson, N. M. Kehrwald, W. Knorr, G. Lasslop, F. Li, S. Mangeon, C. Yue, J. W. Kaiser, and G. R. van der Werf. Historic global biomass burning emissions for CMIP6 (BB4CMIP) based on merging satellite observations with proxies and fire models (1750–2015). *Geoscientific Model Development*, 10(9) :3329–3357, Sept. 2017. ISSN 1991-9603. doi:10.5194/gmd-10-3329-2017.
- S. Veraverbeke, B. M. Rogers, M. L. Goulden, R. R. Jandt, C. E. Miller, E. B. Wiggins, and J. T. Randerson. Lightning as a major driver of recent large fire years in North American boreal forests. *Nature Climate Change*, 7(7) :529–534, July 2017. ISSN 1758-678X, 1758-6798. doi:10.1038/nclimate3329.
- A. Voulgarakis, M. E. Marlier, G. Faluvegi, D. T. Shindell, K. Tsigaridis, and S. Mangeon. Interannual variability of tropospheric trace gases and aerosols : The role of biomass burning emissions. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 120(14) :7157–7173, 2015. ISSN 2169-8996. doi:10.1002/2014JD022926.
- A. Wagner, A.-M. Blechschmidt, I. Bouarar, E.-G. Brunke, C. Clerbaux, M. Cupeiro, P. Cristofanelli, H. Eskes, J. Flemming, H. Flentje, M. George, S. Gilge, A. Hilboll, A. Inness, J. Kapsomenakis, A. Richter, L. Ries, W. Spangl, O. Stein, R. Weller, and C. Zerefos. Evaluation of the MACC operational forecast system – potential and challenges of global near-real-time modelling with respect to reactive gases in the troposphere. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(24) :14005–14030, Dec. 2015. ISSN 1680-7324. doi:10.5194/acp-15-14005-2015.
- M. L. Wesely. Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models. *Atmospheric Environment (1967)*, 23(6) :1293–1304, Jan. 1989. ISSN 0004-6981. doi:10.1016/0004-6981(89)90153-4.

- C. Wiedinmyer, S. K. Akagi, R. J. Yokelson, L. K. Emmons, J. A. Al-Saadi, J. J. Orlando, and A. J. Soja. The fire inventory from near (finn) : a high resolution global model to estimate the emissions from open burning. *Geoscientific Model Development*, 4(3) : 625–641, 2011. doi:10.5194/gmd-4-625-2011.
- J. E. Williams, B. Barret, I. Bouarar, B. Guillaume, B. Josse, F. Solomon, X. Yang, K. Law, C. Liousse, and V.-H. Peuch. An Overview of the AMMA Multi-Model Inter-comparison project. page 2, 2008.
- J. E. Williams, R. Scheele, P. van Velthoven, I. Bouarar, K. Law, B. Josse, V.-H. Peuch, X. Yang, J. Pyle, V. Thouret, B. Barret, C. Liousse, F. Hourdin, S. Szopa, and A. Cozic. Global Chemistry Simulations in the AMMA Multimodel Intercomparison Project. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 91(5) :611–624, Oct. 2009. ISSN 0003-0007. doi:10.1175/2009BAMS2818.1.
- D. L. Williamson and P. J. Rasch. Two-Dimensional Semi-Lagrangian Transport with Shape-Preserving Interpolation. *Monthly Weather Review*, 117(1) :102–129, 01 1989. ISSN 0027-0644. doi:10.1175/1520-0493(1989)117<0102 :TDSLWTW>2.0.CO ;2.
- World Meteorological Organization. Meteorology-a threedimensional science : Second session for the commission for aerology, 1957.
- Y. Xia, Y. Huang, and Y. Hu. On the Climate Impacts of Upper Tropospheric and Lower Stratospheric Ozone : On the climate impacts of UTLS ozone. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, Jan. 2018. ISSN 2169897X. doi:10.1002/2017JD027398.
- K. Yang and X. Liu. Ozone profile climatology for remote sensing retrieval algorithms. *Atmospheric Measurement Techniques*, 12(9) :4745–4778, Sept. 2019. ISSN 1867-1381. doi:10.5194/amt-12-4745-2019.
- J. J. Yienger and H. Levy. Empirical model of global soil-biogenic NO<sub>x</sub> emissions. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 100(D6) :11447–11464, 1995. ISSN 2156-2202. doi:10.1029/95JD00370.
- A. Zahn and C. A. M. Brenninkmeijer. New Directions : A Chemical Tropopause Defined. *Atmospheric Environment*, 37(3) :439–440, Jan. 2003. ISSN 1352-2310. doi:10.1016/S1352-2310(02)00901-9.
- A. Zahn, E. Christner, P. F. J. van Velthoven, A. Rauthe-Schöch, and C. A. M. Brenninkmeijer. Processes controlling water vapor in the upper troposphere/lowermost stratosphere : An analysis of 8 years of monthly measurements by the IAGOS-CARIBIC observatory : CARIBIC H<sub>2</sub>O in the UT/LMS. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 119(19) :11,505–11,525, Oct. 2014. ISSN 2169897X. doi:10.1002/2014JD021687.
- B. Zheng, F. Chevallier, Y. Yin, P. Ciais, A. Fortems-Cheiney, M. N. Deeter, R. J. Parker, Y. Wang, H. M. Worden, and Y. Zhao. Global atmospheric carbon monoxide budget 2000–2017 inferred from multi-species atmospheric inversions. *Earth System Science Data*, 11(3) :1411–1436, Sept. 2019. ISSN 1866-3516. doi:10.5194/essd-11-1411-2019.

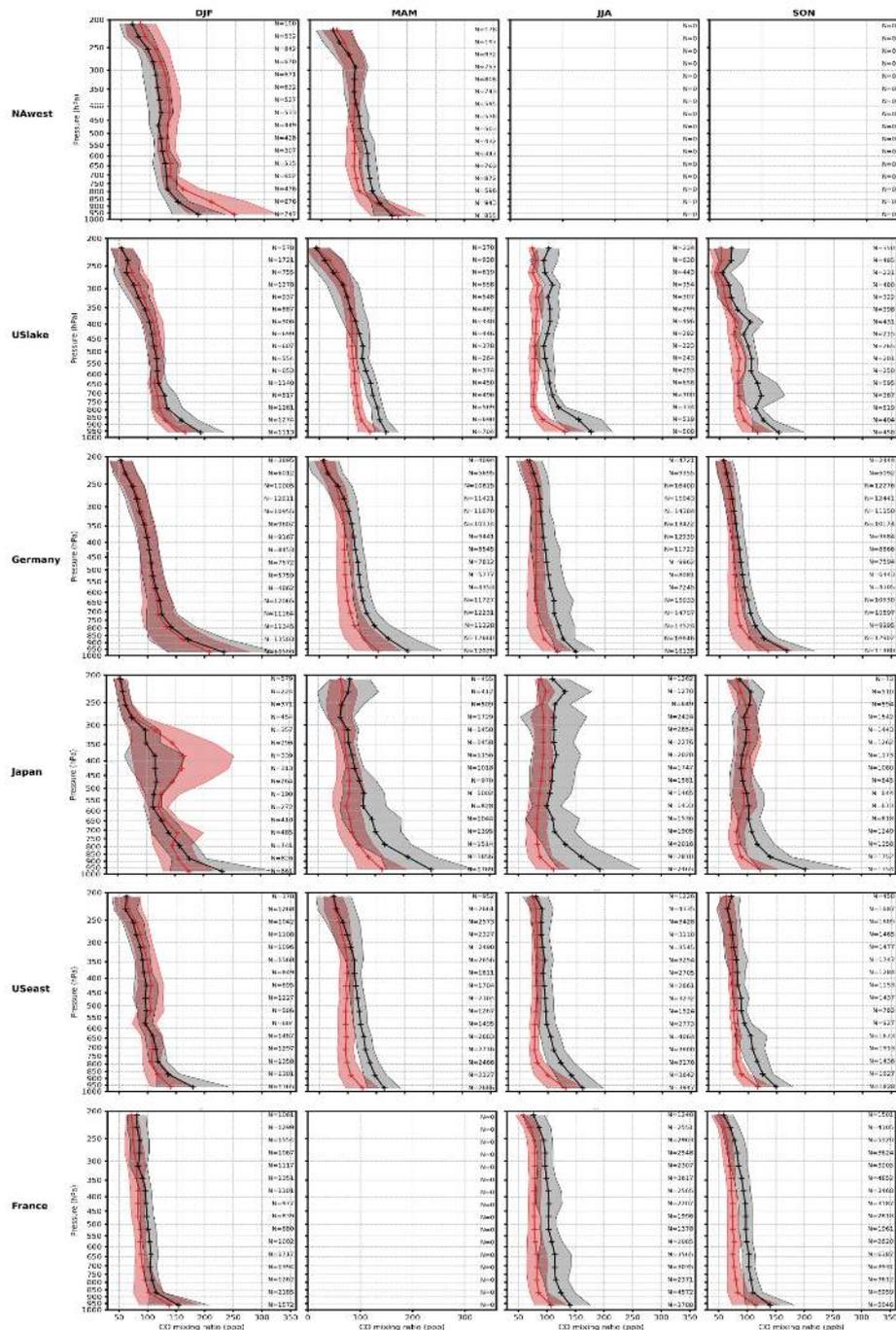
- L. Zhu, M. Val Martin, L. V. Gatti, R. Kahn, A. Hecobian, and E. V. Fischer. Development and implementation of a new biomass burning emissions injection height scheme (BBEIH v1.0) for the GEOS-Chem model (v9-01-01). *Geoscientific Model Development*, 11(10) :4103–4116, Oct. 2018. ISSN 1991-9603. doi:10.5194/gmd-11-4103-2018.
- J. R. Ziemke, S. Chandra, B. N. Duncan, M. R. Schoeberl, O. Torres, M. R. Damon, and P. K. Bhartia. Recent biomass burning in the tropics and related changes in tropospheric ozone : BIOMASS BURNING AND TROPOSPHERIC OZONE. *Geophysical Research Letters*, 36(15) :n/a–n/a, Aug. 2009. ISSN 00948276. doi:10.1029/2009GL039303.

---

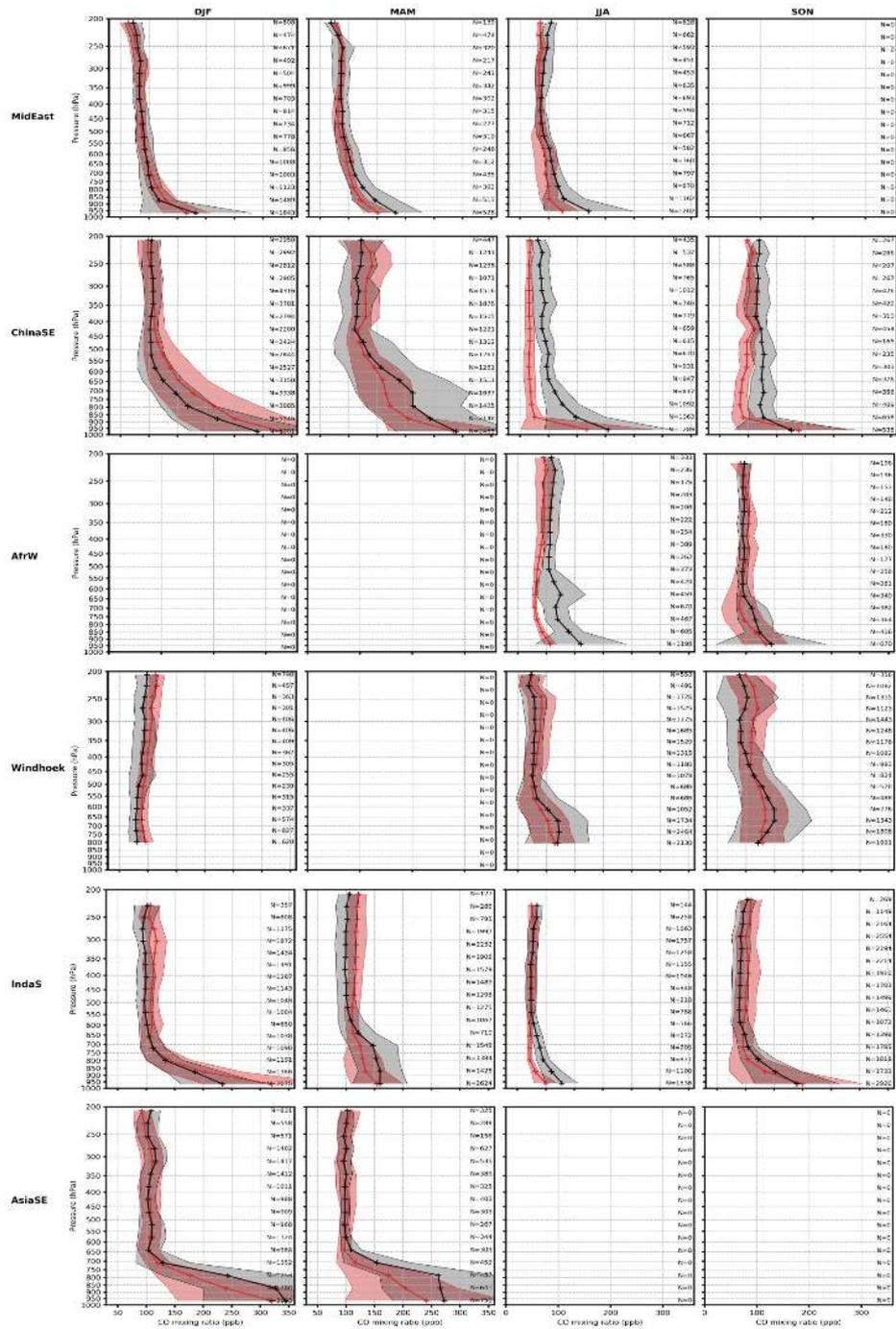
## Annexe A

Supplément de l'article

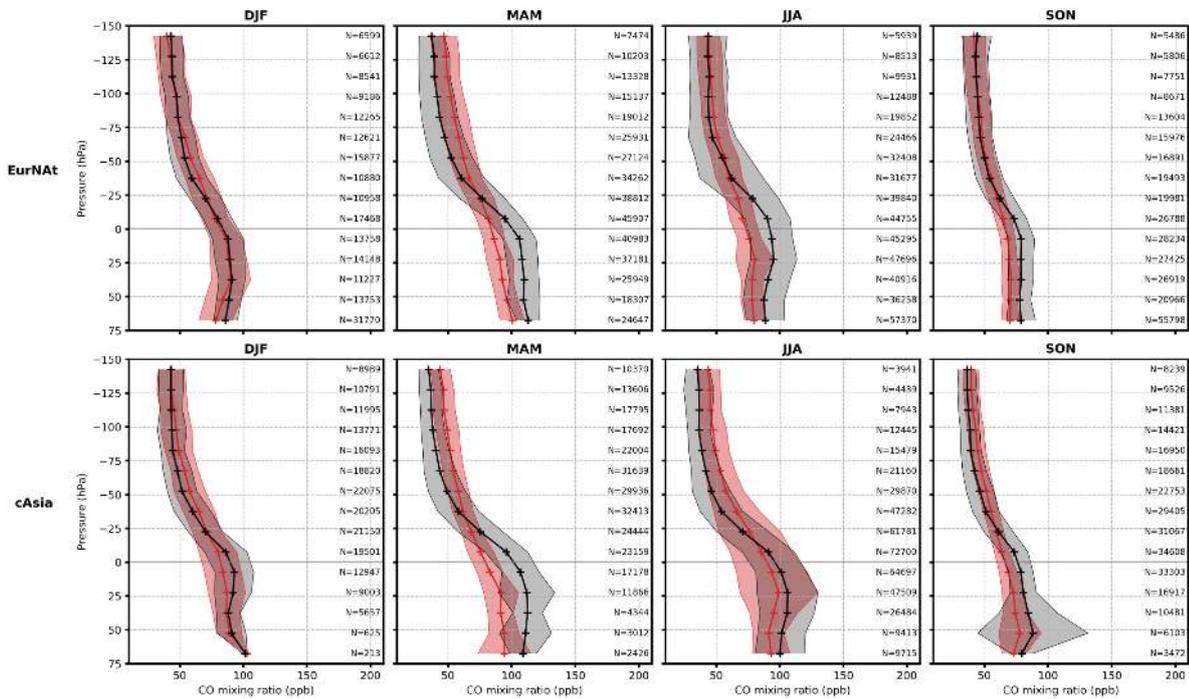
"The impact of biomass burning on upper tropospheric carbon monoxide : A study using MOCAGE global model and IAGOS airborne data."



**Figure A.1** – Comparison between IAGOS (in black) and MOCAGE INJH (in red) seasonal mean vertical CO profiles at the NAWest, USlake, Germany, Japan, USEast and France airport clusters defined in the manuscript. The shaded grey and red areas represent respectively the standard deviation around the IAGOS and the MOCAGE mean. The number of data points used for each each pressure level mean is indicated on the right side of each profile. Only profiles for which a significant mean could be calculated are displayed (more than 10 flight per season).



**Figure A.2** – Same as Fig. A.1, but for MidEast, ChinaSE, AfrW, Windhoek, IndiaS and AsiaSE airport clusters.



**Figure A.3** – Comparison between IAGOS (in black) and MOCAGE INJH (in red) 2013 mean vertical CO profiles in the two geographical areas EurNat and cAsia defined in the manuscript. Pressure is relative to the dynamical tropopause, defined as the 2 PVU iso-surface. The shaded grey and red areas represent respectively the standard deviation around the IAGOS and the MOCAGE mean. The number of data points used for each each pressure level mean is indicated on the right side of each profile.

## Annexe B

# Profils verticaux saisonniers pour l'ozone

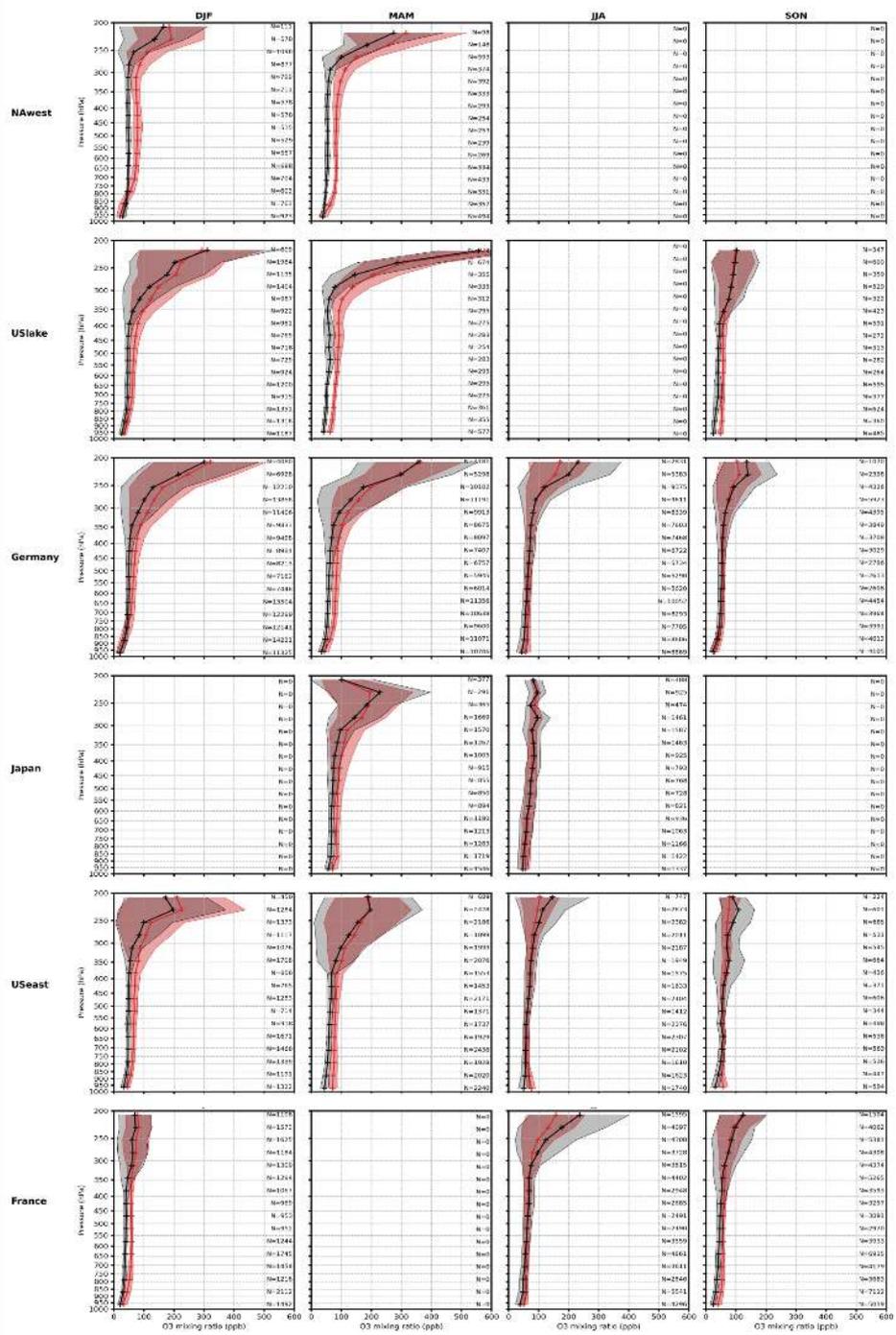


Figure B.1 – Comme la figure A.1, mais pour l'O<sub>3</sub>.

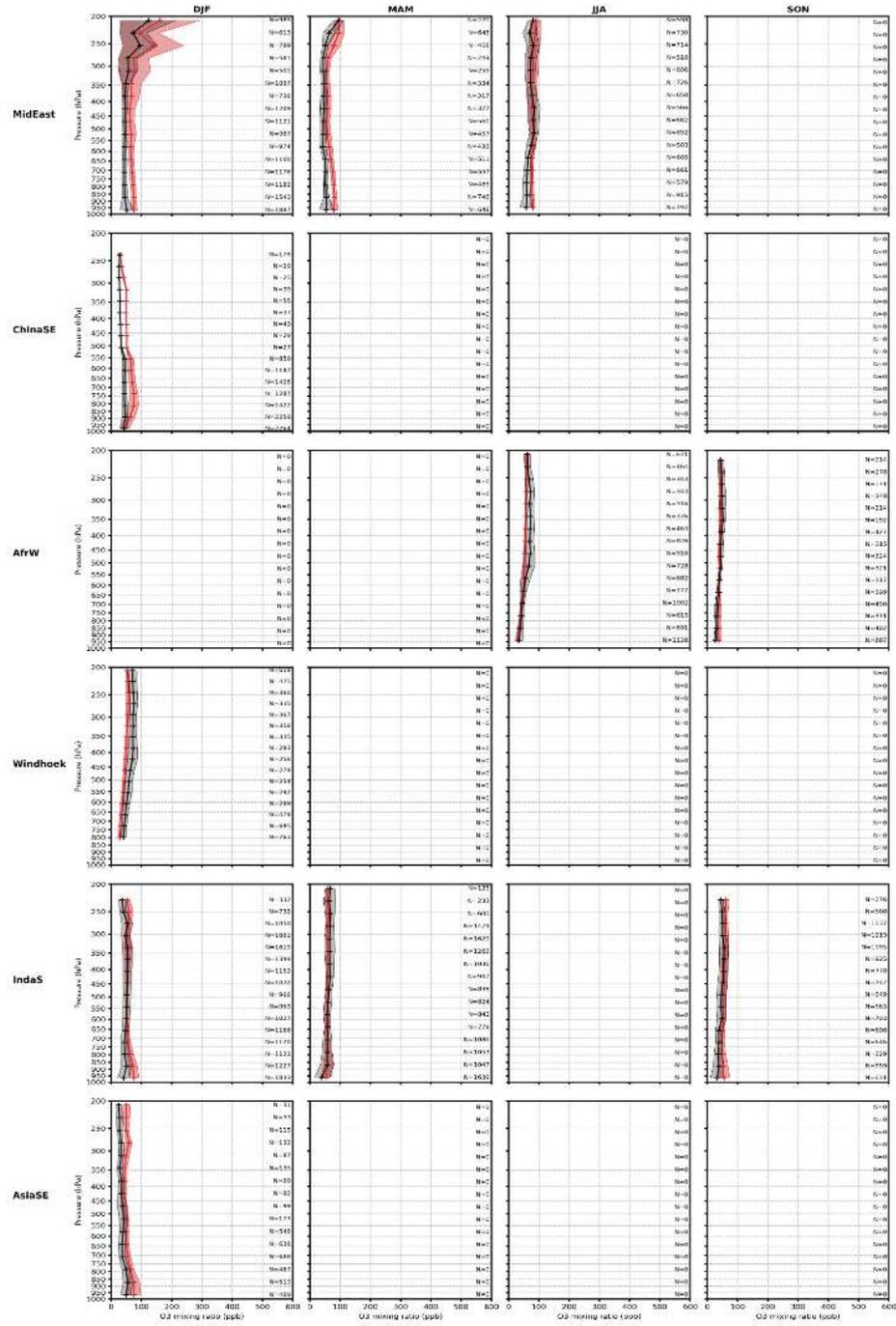


Figure B.2 – Comme la figure A.2, mais pour l'O<sub>3</sub>.

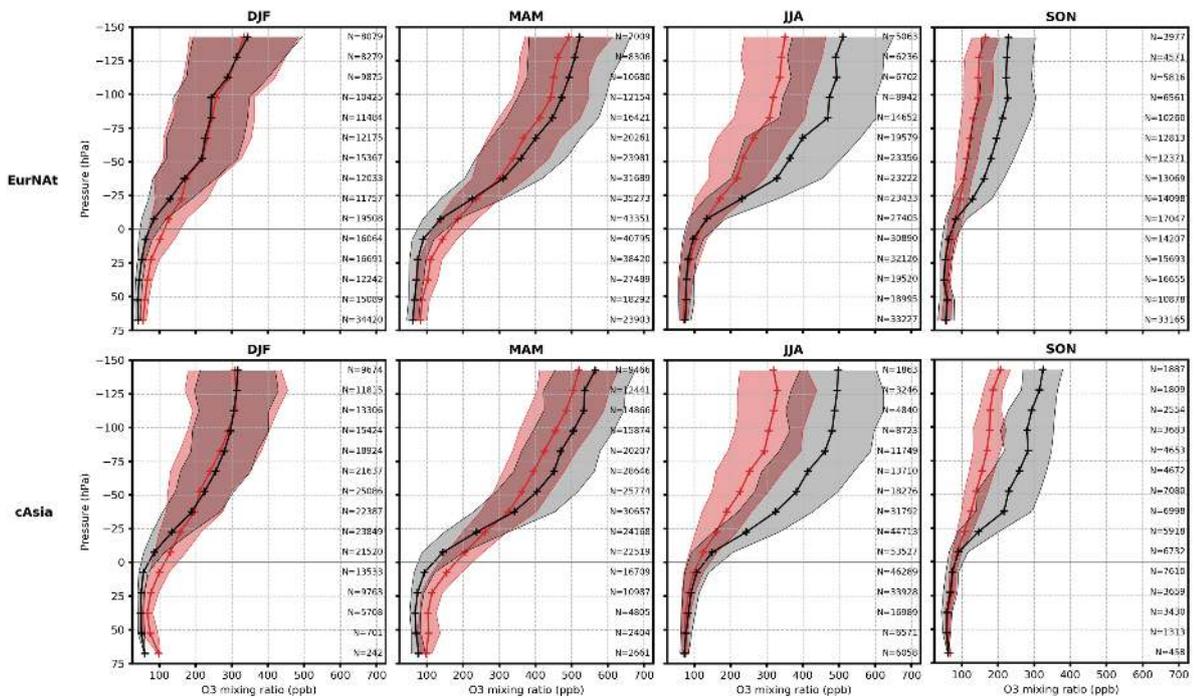


Figure B.3 – Comme pour la figure A.3, mais pour l'O<sub>3</sub>.