



**Université Libre de Bruxelles
Faculté des Sciences**

**Institut d'Aéronomie
Spatiale de Belgique**

Modélisation des émissions de composés organiques volatils par la végétation

**Thèse soutenue en vue de l'obtention du grade de
Docteur en Sciences**

Sabine WALLENS

Septembre 2004

Remerciements

Lorsqu'en 1998 j'ai effectué un stage à l'Institut d'Aéronomie Spatiale de Belgique (IASB) dans le cadre d'un DEA en Physique et Chimie de l'Atmosphère, Jean-François Müller cherchait une personne pour travailler avec lui. Il m'a offert l'opportunité de poursuivre mon apprentissage dans ce domaine. Je tiens profondément à le remercier pour avoir cru en moi sans relâchement et pour m'avoir accompagnée tout au long de ce travail. Je le remercie aussi pour son soutien et son humour, pour nos discussions, son expérience et son savoir.

Dès le début de ma recherche, j'ai également reçu le soutien de mon promoteur Guy Brasseur, qui m'a offert l'opportunité de travailler au National Center for Atmospheric Research (NCAR) à plusieurs reprises. J'y ai rencontré diverses personnes dont Alex Guenther et son équipe. Je les remercie pour leur expertise, leurs données et leur soutien dans mon travail, pour leur accueil et pour leur disponibilité à mon égard, notamment à chacune de mes visites au NCAR.

Je remercie également Paul Simon grâce à qui j'ai fait ce stage à l'IASB et qui m'a menée à cette thèse.

Je remercie les membres de mon comité d'accompagnement, MM Quinet et Herman qui m'ont suivie tout au long de ce travail, qui m'ont éclairée de leurs conseils avisés et qui ont fait le lien entre moi et l'ULB.

Je voudrais également remercier Laurens Ganzeveld du Max Planck Institute for Chemistry (Otto-Hahn-Institute) à Mainz pour m'avoir permis de comparer mes résultats aux siens et pour nos discussions fructueuses.

La réalisation de ce travail ne serait rien sans l'équipe informatique de l'IASB ; merci donc à vous Johan, Fabienne, Christian et Dennis. Merci aussi à tous les membres du secrétariat, Jeannine, Marguerite, Carine, Kristien et Denis. Merci aussi à Edwin qui a toujours su trouver toutes les références dont j'avais besoin.

L'institut est un endroit chaleureux et accueillant où il est agréable de travailler. Je tiens à remercier mes collègues de l'institut Manu, Jenny et Karen pour nos fous rires mais aussi pour tous leurs conseils. Merci à Christine, Didier, Pauline et les autres de l'IASB ou du NCAR, pour nos moments sportifs et de détente. Et puis merci aussi à toutes celles et ceux que j'aurais oubliés.

Je remercie tous mes amis qui m'ont encouragée, soutenue et qui m'ont offert des moments de détente inégalables. Merci particulièrement à Maud et à Martine, des amies si précieuses.

J'ai aussi eu la chance d'avoir eu le soutien de mes beaux-parents et d'Arty. Merci en particulier à Nicole d'avoir notamment relu et corrigé ce travail. Merci à maman d'avoir cru en moi et d'avoir toujours été là tout au long de ce travail et merci à tous les membres de ma famille.

Mais mes remerciements les plus chaleureux vont à mes amours Michael et ma fille Cassiopée. Ils m'ont apporté tout au long de ces années l'énergie nécessaire à la réalisation de ce travail. C'est avec une vive émotion que je le leur dédie.

Modélisation des émissions de composés organiques volatils par la végétation

Sabine WALLENS

Résumé

La thèse présentée ici porte sur le développement et l'utilisation d'un modèle détaillé de la canopée, le modèle MOHYCAN. Ce modèle calcule les émissions de composés organiques volatils par la végétation à l'aide d'algorithmes basés sur des études de terrain. Ces émissions étant dépendantes de la température de la feuille et/ou du rayonnement, MOHYCAN détermine les éclaircissements visible et infrarouge, direct et diffus, et calcule la température des feuilles à différents niveaux dans la canopée, en distinguant les feuilles au soleil des feuilles à l'ombre. Quatre sites de mesures (un dans la forêt tempérée de Harvard aux Etats-Unis, deux dans la savane africaine et un dans la forêt amazonienne au Brésil) ont été choisis pour évaluer les algorithmes d'émission et le modèle lui-même. L'atténuation du rayonnement dans la canopée est évaluée par des observations et comparée aux résultats d'un modèle simple. L'importance de la paramétrisation de la résistance stomatique, intervenant dans le calcul de la température de la feuille, est démontrée par la comparaison avec une paramétrisation alternative. Le facteur de stress hydrique, bien que mal contraint, est néanmoins souvent déterminant dans le calcul des émissions. L'influence du choix des profils verticaux des variables météorologiques et de l'indice de surface de feuille dans la canopée est analysée, de même que l'impact de l'hétérogénéité horizontale de la végétation. De manière générale, le modèle reproduit bien les variations temporelles observées des émissions en dépit de biais parfois très importants, particulièrement au site amazonien de Tapajós. Nous avons développé un nouvel inventaire global des émissions d'isoprène et de monoterpènes. Puisque son calcul dépend fortement du choix des bases de données pour les paramètres d'entrée du modèle, différentes climatologies des champs météorologiques et de la quantité de feuillage ont été comparées, de même que leur influence sur les émissions de composés biogéniques. La comparaison de notre inventaire à l'inventaire GEIA montre l'impact de la différence de traitement du transfert radiatif et de l'utilisation de la température de la feuille sur les émissions. Finalement, ces nouvelles distributions des émissions sont utilisées dans un modèle tridimensionnel de chimie et de transport, le modèle IMAGES, afin d'évaluer leur impact sur la composition chimique de la troposphère. Les émissions de composés organiques volatils ont une influence marquée sur les concentrations des espèces telles que le monoxyde de carbone, l'ozone, les oxydes d'azote, le radical hydroxyle, ainsi que sur le temps de vie d'espèces comme le méthane (un gaz à effet de serre).

Modelling of volatile organic compounds emitted by plants

Sabine WALLENS

Abstract

The MOHYCAN model, a detailed canopy model, is developed and used in this study. This model calculates the volatile organic compound emissions by plants using algorithms based on field studies. As these emissions depend on leaf temperature and light, MOHYCAN determines visible and infrared radiation, including direct and diffuse components, and calculates leaf temperature at different levels in the canopy, for sunlit and shade leaves. Four measurement sites (one in the temperate zone at Harvard Forest in the United States, two in the African savanna, and one in the Amazonian forest in Brazil) are chosen to evaluate the emission algorithms and the model itself. The radiation attenuation in the canopy is validated using observations and compared to the results of a simple model. The importance of the stomatal resistance parameterization, taking place into the leaf temperature calculation, is demonstrated by the comparison with an alternative parameterization. However, the poorly constrained water stress factor is found to play an important role in the emission calculation. The influence of the vertical profiles of meteorological variables and of the leaf area index in the canopy is analysed, as well as the impact of the horizontal heterogeneity of vegetation. In general, the model reproduces well the observed temporal variations of the emissions in spite of biases which are found to be very important in some cases, in particular at the Amazonian site. We have also developed a new global emissions inventory for isoprene and monoterpenes. Since its computation depends strongly on the choice of the databases used for the model input parameters, different climatologies for the meteorological fields and for the amount of foliage are compared, and their influence on the biogenic volatile organic compound emissions is determined. The comparison of our inventory with the GEIA inventory shows the impact of the difference in the radiative transfer scheme and the impact of using leaf temperature (instead of air temperature) in the emission algorithms. Finally, these new emission distributions are used as input in a tridimensional chemical transport model, the IMAGES model, in order to estimate their impact on the tropospheric chemical composition. The biogenic volatile organic compound emissions have a strong effect on the concentrations of the chemical species such as carbon monoxide, ozone, nitrogen oxides, the hydroxyl radical and on the lifetime of species like methane (a greenhouse gas).

Modellering van vluchtige organische samenstellingen uitgestoten door planten

Sabine WALLENS

Samenvatting

Deze thesis handelt over de ontwikkeling en het gebruik van het MOHYCAN model, een gedetailleerd model van de kruinlaag. Dit model berekent de emissies van vluchtige organische samenstellingen door planten met behulp van algoritmes gebaseerd op veldstudies. Aangezien deze emissies afhankelijk zijn van het licht en van de temperatuur van het blad, bepaalt MOHYCAN de zichtbare en infraroodstraling, inclusief directe en diffuse componenten, en berekent vervolgens de temperatuur van het blad op verschillende niveau's in de kruinlaag, voor zowel door de zon verlichte als beschaduwde bladeren. Vier meetsites (één in de gematigde zone van Harvard Forest in de Verenigde Staten, twee in de Afrikaanse savanne, en één in het Braziliaanse amazonewoud) werden gekozen om de emissie-algoritmes en het model zelf te evalueren. De afname van de straling in de kruinlaag werd gevalideerd met observaties en vergeleken met de resultaten van een eenvoudig model. Het belang van de parametrizatie van de weerstand ten gevolge van de huidmondjes, die gebeurt in de berekening van de bladtemperatuur, wordt aangetoond door vergelijking met een alternatieve parametrizatie. De waterstress-factor, hoewel moeilijk te parametrizeren, blijkt dikwijls bepalend voor de berekening van de emissies. De invloed van de keuze van enerzijds de verticale profielen van meteorologische variabelen en anderzijds de index van de bladoppervlakte werd geanalyseerd, evenals de impact van de horizontale heterogeniteit van de vegetatie. In het algemeen reproduceert het model de geobserveerde tijdsvariaties in de emissies goed, ondanks de systematische afwijkingen die in sommige gevallen (vooral in het amazonegebied) zeer belangrijk bleken. Verder werd een nieuwe globale emissie-inventaris ontwikkeld voor isopreen en monoterpenen. Deze berekening is sterk afhankelijk van de keuze van de databases, gebruikt voor de inputparameters van het model. Daarom worden verschillende klimatologieën voor de meteorologische velden en voor de hoeveelheid gebladerte vergeleken, en hun invloed op de emissies van biogene vluchtige samenstellingen bepaald. De vergelijking van onze inventaris met de GEIA inventaris toont de impact van het verschil in behandeling van het stralingstransport en ook de impact van het gebruik van de bladtemperatuur (in plaats van de luchttemperatuur) in de emissie-algoritmes. Tenslotte hebben we deze nieuwe emissieverdelingen gebruikt als input voor een driedimensionaal chemisch transportmodel, het model IMAGES, om de invloed op de troposferische chemische samenstelling in te schatten. De biogene vluchtige organische samenstellingen bleken een sterk effect te hebben op de concentraties van de chemische bestanddelen, zoals koolstofmonoxide, ozon, stikstofoxides, en het hydroxylradicaal, en ook op de levensduur van stoffen als methaan (een broeikasgas).

Table des matières

Remerciements	i
Résumé	iii
Abstract	v
Samenvatting	vii
Liste des figures	xvii
Liste des tableaux	xx
1 Introduction	1
1.1 Les problèmes environnementaux	1
1.2 L'atmosphère terrestre	3
1.2.1 Description générale	3
1.2.2 Composition de l'air	5
1.3 Les composés organiques	9
1.3.1 Généralités et rôle des composés organiques	9
1.3.2 Les composés organiques d'origine biogénique	10
1.4 Objectifs de la thèse	20
2 Modélisation des émissions des composés organiques volatils par la végétation	21
2.1 Introduction	21
2.2 Description des algorithmes d'émission	22
2.2.1 Le facteur de source, D	22
2.2.2 Le facteur d'émission standard, ε	23
2.2.3 Le facteur d'activité (γ)	24
2.3 Description du modèle de canopée	27

2.3.1	Le transfert du rayonnement solaire dans la canopée	28
2.3.2	Détermination de la température de la feuille dans la canopée . . .	40
2.3.3	Détermination des variables météorologiques nécessaires au calcul de la température de la feuille	50
2.3.4	Récapitulatif du modèle	53
3	Les campagnes de mesure	55
3.1	Techniques de mesure utilisées pour quantifier les flux de composés organiques volatils biogéniques	55
3.1.1	Techniques de mesure des flux dans la couche de surface	56
3.1.2	Techniques de mesure des flux dans la couche de mélange	61
3.1.3	Echantillonnage et méthodes analytiques	61
3.2	Sites de mesure et résultats du modèle MOHYCAN	62
3.2.1	Procédure pour la comparaison du modèle MOHYCAN avec les observations des campagnes	63
3.2.2	Harvard Forest, 1995	65
3.2.3	Campagne SAFARI 2000	74
3.2.4	Campagne LBA	86
3.3	Conclusions	90
4	Incertitudes des émissions modélisées aux sites étudiés	93
4.1	L'indice de surface de feuille	93
4.1.1	Profil vertical de l'indice de surface de feuille	94
4.1.2	Hétérogénéité horizontale de l'indice de surface de feuille	96
4.2	La température de l'air et l'humidité relative dans la canopée	98
4.3	Le rayonnement actif pour la photosynthèse	100
4.4	La résistance stomatique	102
4.5	L'algorithme d'isoprène	105
4.6	Conclusions	109
5	Inventaires globaux des émissions de composés organiques volatils par la végétation	111
5.1	L'inventaire global de référence de GEIA	112
5.2	Distributions globales des champs météorologiques	114
5.2.1	Climatologie CRU	114
5.2.2	Climatologie ISCCP	115
5.2.3	Climatologie de Leemans et Cramer, LC	116
5.2.4	Comparaison des climatologies CRU, ISCCP et de Leemans et Cramer (LC)	117
5.2.5	Détermination de l'éclairement visible	119
5.3	Caractéristiques de la végétation	122
5.3.1	Classification des écosystèmes - Les écosystèmes de la base de données de Olson	122
5.3.2	Les facteurs d'émission standard, ϵ	122
5.3.3	La densité foliaire et l'indice de surface de feuille	124

5.4	Procédure pour calculer les émissions	130
5.4.1	Variation diurne du rayonnement et séparation ciel clair/nuageux	130
5.4.2	Variations diurnes des autres paramètres météorologiques	133
5.4.3	Calcul des émissions de composés organiques volatils biogéniques	135
5.5	Inventaires des émissions	136
5.5.1	Influence du traitement du transfert radiatif sur les émissions	136
5.5.2	Inventaire MOHYCAN de référence	138
5.5.3	Effet de l'utilisation d'une climatologie alternative de l'indice de surface de feuille	142
5.5.4	Effet de l'utilisation de la climatologie ISCCP	143
5.5.5	Effet du stress hydrique	144
5.5.6	Effet de la résolution verticale du modèle	145
5.5.7	Sensibilité des émissions à la température de l'air	146
5.6	Conclusions	148
6	Impact des émissions biogéniques de composés organiques volatils sur la composition de la troposphère	149
6.1	Mécanismes réactionnels	149
6.1.1	1 ^{re} étape : réaction d'oxydation du composé organique volatil	152
6.1.2	2 ^e étape : réaction des radicaux alkyles R·	152
6.1.3	3 ^e étape : réactions des radicaux peroxydes RO ₂ ·	153
6.1.4	4 ^e étape : réactions des radicaux alkoxydes RO·	156
6.2	Le modèle IMAGES	157
6.3	Modélisation de l'impact des émissions de composés organiques volatils sur la composition atmosphérique	158
6.3.1	Impact des émissions de composés organiques volatils sur la composition chimique dans une atmosphère polluée	158
6.3.2	Impact des émissions de composés organiques volatils sur la composition chimique dans une atmosphère pré-industrielle (non polluée)	166
6.4	Conclusions	168
7	Conclusions générales	169
A	Liste des acronymes	173
B	Quelques définitions et informations utiles	179
C	Valeurs des paramètres et profil de la végétation utilisés dans le modèle MOHYCAN	185
D	Détermination de la convection dans l'échange de chaleur et de vapeur d'eau	189

Bibliographie

193

Liste des figures

1.1	Profil vertical de la température dans l'atmosphère terrestre	5
1.2	Distribution verticale typique de la concentration des constituants chimiques de l'atmosphère	7
1.3	Schéma de la biosynthèse des terpénoïdes	12
1.4	Arbre à VOC indiquant le potentiel à produire et émettre des composés organiques volatils	13
1.5	Biosynthèse des composés organiques volatils biogéniques	13
1.6	Facteurs dépendants de la lumière et/ou de la température dans les algorithmes d'émission	18
2.1	Schéma représentant la division en couche dans la canopée, utilisé dans le modèle MOHYCAN	28
2.2	Interception du rayonnement solaire pour des orientations différentes des feuilles	32
2.3	Schéma représentant la géométrie des couches pour le calcul des flux descendant et ascendant du rayonnement solaire	34
2.4	Dépendance spectrale des coefficients de réflexion et de transmission d'une feuille verte	35
2.5	Les différentes composantes du rayonnement solaire éclairant une feuille au soleil et une feuille à l'ombre	36
2.6	Schéma représentant les différentes composantes du modèle de canopée MOHYCAN	37
2.7	Les différentes composantes du rayonnement thermique affectant le bilan d'énergie d'une feuille	42
2.8	Géométrie caractéristique d'un stomate et de l'épiderme d'une feuille	46
2.9	Schéma électrique analogue montrant les résistances intervenant dans les termes de flux de chaleur sensible et de flux de chaleur latente de l'équilibre d'énergie d'une feuille	47
2.10	Profils verticaux typiques de la température dans une canopée	51

2.11 Profil vertical du vent au-dessus et dans une canopée	53
3.1 Illustration des échelles et des techniques de mesure utilisées pour développer et évaluer les modèles d'émissions biogéniques	56
3.2 Sites de mesure utilisés dans ce travail	63
3.3 Variation saisonnière de l'indice de surface de feuille de la forêt de Harvard : feuillus et conifères	66
3.4 Comparaison des flux d'isoprène, de l'éclairement visible et de la température à la forêt de Harvard : mesures et modèle MOHYCAN	68
3.5 Variation diurne des flux d'isoprène pour la période de juin à octobre 1995 pour la forêt de Harvard : mesures et modèle MOHYCAN	69
3.6 Evolution, entre juin et octobre 1995, des moyennes diurnes des flux d'isoprène à la forêt de Harvard : mesures et modèle MOHYCAN	69
3.7 Variation diurne de l'éclairement visible à 12.7 m à la forêt de Harvard : mesures et modèle MOHYCAN	70
3.8 Comparaison des éclairagements visibles à 12.7 m : mesures, modèle MOHYCAN et modèle simple en 8 couches à la forêt de Harvard	71
3.9 Réduction du rayonnement actif pour la photosynthèse dans la canopée en fonction de l'angle zénithal à la forêt de Harvard : pour un ciel clair et pour un ciel nuageux, modèle MOHYCAN	73
3.10 Atténuation du rayonnement actif pour la photosynthèse dans la canopée, pour différents angles zénithaux et différentes fractions diffuses : modèle MOHYCAN	74
3.11 Comparaison des réponses des émissions d' α -pinène aux facteurs environnementaux (lumière et température) dans les algorithmes G97 et G97a	76
3.12 Comparaison des flux d' α -pinène, de l'éclairement visible et de la température à Maun : mesures et modèle MOHYCAN	77
3.13 Variation diurne des flux d' α -pinène, de l'éclairement visible et de la température à Maun : mesures et modèle MOHYCAN	79
3.14 Plan du site de Skukuza	80
3.15 Variation diurne des flux d'isoprène à Skukuza : mesures et modèle MOHYCAN	82
3.16 Comparaison des flux d'isoprène, de l'éclairement visible et des températures à Skukuza : mesures, modèle MOHYCAN et modèle de Ganzeveld	84
3.17 Comparaison des flux d'isoprène à Skukuza : mesures, modèle MOHYCAN et modèle de Ganzeveld pour des fractions de végétation différentes	85
3.18 Comparaison des flux d'isoprène, d' α - et de β -pinène à Tapajós en juillet 2000 : mesures et modèle MOHYCAN	88
3.19 Comparaison des flux d'isoprène à Tapajós en avril 2001 : mesures et modèle MOHYCAN	89

4.1	Comparaison du profil mesuré de l'indice de surface de feuille à la forêt de Harvard pour l'année 1998	94
4.2	Plan du site de mesure des profils verticaux de l'indice de surface de feuille à Maun en 2001	95
4.3	Comparaison des 25 profils mesurés de fraction de l'indice de surface de feuille à Maun, du profil moyen correspondant et du profil caractérisant le type de végétation 4 du modèle MOHYCAN	96
4.4	Flux moyens d' α -pinène calculés pour les 25 carrés du site de mesure de l'indice de surface de feuille à Maun	97
4.5	Flux d' α -pinène et facteur de réponse C_L des émissions d' α -pinène au rayonnement visible en fonction de l'indice de surface de feuille dans le cas de Maun	99
4.6	Comparaison des résistances stomatiques $r_{s,PAR}$ et $r_{s'}$ en fonction de l'éclairement visible pour les types de végétation 1 et 4 du modèle MOHYCAN	105
4.7	Réponse des émissions de type isoprène à la température	107
4.8	Evolution des moyennes diurnes des flux d'isoprène sur toute la période de mesure (juin à octobre 1995) pour la forêt de Harvard : mesures et modèle MOHYCAN	108
5.1	GEIA : Distribution des émissions globales d'isoprène et de monoterpènes (janvier et juillet)	113
5.2	Comparaison des couvertures nuageuses provenant des différentes climatologies : CRU, ISCCP et de Leemans et Cramer (juillet)	118
5.3	Différence entre la température de l'air selon Leemans et Cramer, et celle selon CRU (juillet)	119
5.4	Comparaison des éclaircissements visibles d'après les trois climatologies considérées : CRU, ISCCP et G95 (juillet)	121
5.5	Localisation des écosystèmes d'Olson du Tableau 5.1.	123
5.6	Comparaison de la productivité primaire nette obtenue à l'aide des climatologies CRU, et de Leemans et Cramer	127
5.7	Distributions des estimations de la LAI : LAI-Myneni, LAI-G95 (CRU) et LAI-G95 (LC) (juillet)	129
5.8	Comparaison de l'indice de surface de feuille mesuré sur le terrain avec les estimations à partir des données par satellite	131
5.9	Illustration de la progression diurne de la température de l'air paramétrisée	134
5.10	MOHYCAN : Distribution des émissions globales d'isoprène (juillet), utilisant les mêmes données d'entrées que celles dans l'inventaire GEIA	137
5.11	Comparaison des valeurs mensuelles des flux d'isoprène estimés par MOHYCAN et dans GEIA, pour les écosystèmes de Olson	138
5.12	Inventaire MOHYCAN de référence : Distributions des émissions d'isoprène et des monoterpènes (juillet)	139

5.13	Distribution des différences relatives entre les émissions d'isoprène et de monoterpènes calculées dans l'inventaire MOHYCAN de référence et dans l'inventaire GEIA (juillet)	140
5.14	Inventaire MOHYCAN de référence : ΔT_{eff} et différences relatives entre les émissions d'isoprène calculées en T_f et celles calculées en T_{air} (juillet)	140
5.15	Distribution des différences relatives entre les émissions d'isoprène et de monoterpènes calculées avec la LAI-G95 (CRU) et celles calculées dans l'inventaire MOHYCAN de référence (juillet)	142
5.16	Distribution des différences relatives entre les émissions d'isoprène calculées en utilisant l'éclairement visible fourni par la climatologie ISCCP et celles de l'inventaire MOHYCAN de référence (juillet)	143
5.17	Distribution des différences relatives entre les émissions d'isoprène calculées en l'absence de stress hydrique et celles de l'inventaire MOHYCAN de référence (juillet)	144
5.18	Distribution de la différence entre la température effective du feuillage et la température de l'air en absence de stress hydrique (juillet)	145
5.19	Distribution de la différence relative entre les émissions d'isoprène calculées en divisant la canopée en 2 couches et celles calculées dans l'inventaire MOHYCAN de référence (8 couches) (juillet)	146
5.20	Distribution de l'augmentation des émissions d'isoprène résultant d'une augmentation de la température de l'air de 2°C (juillet)	147
6.1	Schéma général de l'oxydation d'une molécule organique	156
6.2	Distribution des rapports de mélange à la surface de l'isoprène calculés par le modèle IMAGES pour une atmosphère actuelle (janvier et juillet)	159
6.3	Distribution des changements du rapport de mélange à la surface du monoxyde de carbone (CO), dus aux émissions de composés organiques biogéniques : modèle IMAGES – atmosphère actuelle (juillet)	160
6.4	Distribution des changements de la colonne de formaldéhyde (CH ₂ O), dus aux émissions de composés organiques biogéniques : modèle IMAGES – atmosphère actuelle (juillet)	161
6.5	Distribution des changements du rapport de mélange à la surface du radical hydroxyle (OH·), dus aux émissions de composés organiques biogéniques : modèle IMAGES – atmosphère actuelle (juillet)	162
6.6	Distribution des changements des rapports de mélange à la surface de l'ozone (O ₃) et des oxydes d'azote (NO + NO ₂), dus aux émissions de composés organiques biogéniques : modèle IMAGES – atmosphère actuelle (juillet)	164
6.7	Distribution des moyennes zonales des changements de la concentration du radical hydroxyle (OH·), des rapports de mélange de l'ozone (O ₃) et des oxydes d'azote (NO + NO ₂), dus aux émissions de composés organiques biogéniques : modèle IMAGES – atmosphère actuelle (juillet)	165

6.8	Distribution des changements du rapport de mélange à la surface du monoxyde de carbone (CO), dus aux émissions de composés organiques biogéniques : modèle IMAGES – atmosphère pré-industrielle (juillet) . . .	166
6.9	Distribution des changements des rapports de mélange à la surface de l’ozone (O ₃) et des oxydes d’azote (NO + NO ₂), dus aux émissions de composés organiques biogéniques : modèle IMAGES – atmosphère pré-industrielle (juillet)	167
C.1	Profils de l’indice de surface de feuille et de la densité foliaire pour chaque type de végétation utilisé dans le modèle MOHYCAN	188
D.1	Illustration schématique de la circulation de l’air autour d’une feuille plane	190

Liste des tableaux

1.1	Composition chimique de l'atmosphère	8
1.2	Estimations des émissions globales d'hydrocarbures non-méthaniques . .	11
1.3	Catégories d'émission de composés organiques volatils non-méthaniques par la végétation et type d'émission correspondante	14
1.4	Principaux composés organiques volatils biogéniques	15
1.5	Exemples de monoterpènes émis par la végétation dans l'atmosphère . .	17
1.6	Estimations annuelles globales des émissions de composés organiques volatils	19
2.1	Facteurs d'émission standard pour l'isoprène et les monoterpènes pour la végétation commune d'Amérique du Nord et d'Europe	23
2.2	Valeurs typiques des coefficients d'extinction et de réflexion pour le rayonne- ment diffus	35
3.1	Campagnes de mesure étudiées et valeurs du rapport entre émissions calculées et émissions mesurées	91
4.1	Différences relatives entre les émissions de composés organiques vola- tils biogéniques calculées sans et avec les facteurs de stress	103
4.2	Impact, sur les émissions de composés organiques volatils biogéniques, de chaque facteur de stress pris séparément par rapport à une simulation où tous les facteurs de stress sont ignorés	103
4.3	Différences relatives entre les émissions moyennes de composés orga- niques volatils biogéniques calculées avec $\tau_{s,PAR}$ et avec $\tau_{s'}$ aux sites de mesure décrits au Chapitre 3	104
5.1	Quelques écosystèmes typiques de la classification de Olson	122
5.2	Estimations des émissions annuelles globales d'isoprène pour certains écosystèmes, selon GEIA et selon MOHYCAN	137

5.3	Estimations des émissions annuelles globales (inventaire MOHYCAN de référence)	141
5.4	Augmentation calculée des émissions annuelles de BVOC en réponse à une augmentation de la température de l'air de 2°C, pour cinq écosystèmes importants	147
6.1	Constantes des réactions de quelques hydrocarbures biogéniques importants avec le radical hydroxyle (OH·), l'ozone (O ₃) et le radical nitrate (NO ₃ ·)	153
C.1	Valeurs par défaut des différents paramètres utilisés dans le modèle MOHYCAN	186

CHAPITRE 1

Introduction

1.1 Les problèmes environnementaux

De nombreux changements environnementaux à l'échelle globale engendrés par les activités humaines (Cf. Encadré page suivante) affectent directement la composition chimique de l'atmosphère. Les changements importants incluent l'extension de la pollution de l'air à l'échelle globale, les augmentations des concentrations d'oxydants troposphériques (comme par exemple l'ozone), la diminution, voire le trou d'ozone stratosphérique, et le réchauffement global (résultant de ce qu'on appelle l'« effet de serre ») (*Brasseur et al.*, 1999). Depuis les révolutions agricole et industrielle, l'équilibre délicat entre les processus physiques, chimiques et biologiques du système-Terre a été perturbé du fait, par exemple, de la croissance quasi-exponentielle de la population du monde, de l'utilisation de grandes quantités de combustibles fossiles et des rejets associés de composés carbonés dans l'atmosphère, et de l'intensification des pratiques agricoles incluant l'usage fréquent de fertilisants. L'augmentation observée des quantités de dioxyde de carbone (CO_2) dans l'atmosphère résulte principalement de la combustion de carburants fossiles, bien que la destruction de la biomasse soit une importante source secondaire (*IPCC*, 2001). De plus, les concentrations atmosphériques sont influencées par les échanges de carbone avec l'océan et la biosphère continentale. La modification progressive et la fertilisation de la biosphère terrestre auraient causé l'augmentation observée dans l'atmosphère d'oxyde nitreux (N_2O), un gaz à effet de serre et une source d'espèces réactives dans la stratosphère. Le méthane (CH_4), en grande partie d'origine biologique, contribue aussi à l'effet de serre et joue un rôle important dans la photochimie de la troposphère et de la stratosphère. Sa concentration atmosphérique a aussi connu une nette croissance en réponse à l'augmentation de ses émissions à la surface terrestre. Les augmentations observées de l'abondance de l'ozone troposphérique (O_3), qui contribue à la détérioration de la qualité de l'air, résultent de

processus photochimiques complexes impliquant les émissions industrielles et biologiques des oxydes d'azote (NO_x), du monoxyde de carbone, du méthane et des autres composés organiques.

L'étude de l'ozone dans la basse atmosphère est d'importance capitale pour la santé humaine. L'ozone est un fort absorbant du rayonnement ultra-violet et contribue aussi à l'effet de serre. Bien que l'ozone stratosphérique nous protège du rayonnement ultra-violet, l'ozone à basse altitude peut engendrer des problèmes au niveau des voies respiratoires. Les populations à risques sont surtout les enfants en bas-âge, les personnes asthmatiques et les personnes âgées (*Brasseur et al.*, 1999). Les émissions anthropiques de soufre résultant principalement de la combustion du charbon dans les régions très peuplées et industrialisées de l'Hémisphère Nord, et l'augmentation qui s'en suit de l'abondance des aérosols dans la troposphère, ont contribué à la pollution régionale et ont probablement refroidit la surface dans ces régions en renvoyant une fraction de l'énergie solaire (*Charlson et al.*, 1992). Finalement, l'augmentation rapide des quantités atmosphériques de chlorofluorocarbures, produits industriels, a conduit à une diminution observée de l'ozone stratosphérique et à la formation, lors de chaque printemps depuis la fin des années 1970, d'un « trou d'ozone » au-dessus de l'Antarctique (*Farman et al.*, 1985; *Solomon et Brasseur*, 1997; *WMO/UNEP*, 2003).

Exemples de problèmes environnementaux globaux

- Dégradation de la qualité de l'air : pollution globale résultant des combustions industrielles et du brûlage de la biomasse
- L'augmentation d'oxydants troposphériques tels que l'ozone et leur impact sur la biosphère et la santé humaine
- Les changements dans la capacité oxydante de l'atmosphère et dans le temps de résidence de gaz en trace anthropiques
- L'impact climatique et environnemental des changements dans l'utilisation des terres incluant la déforestation tropicale, la destruction de zones humides, etc.
- Les perturbations des cycles biogéochimiques du carbone, de l'azote, du phosphore et du soufre
- Les pluies acides
- Les changements climatiques (réchauffement global) résultant de l'augmentation des émissions de CO_2 et autres gaz à effet de serre
- Les impacts climatiques (refroidissement régional) des aérosols soufrés résultant des émissions anthropiques des émissions de SO_2
- La diminution de l'ozone stratosphérique, l'augmentation conséquente des niveaux de rayonnement UV-B solaire à la surface, et les impacts sur la biosphère et la santé humaine

L'impact de ces changements sur le système-Terre et en particulier sur l'état chimique de l'atmosphère n'est pas encore totalement élucidé mais peut être significatif

dans la plupart des cas. Les changements des quantités atmosphériques des gaz radiativement actifs pourraient conduire à une dérive substantielle du climat terrestre, incluant des changements de température, de précipitation et de fréquence d'événements extrêmes (ex.: les ouragans). La réduction de la colonne¹ d'ozone conduit à une augmentation de la radiation UV-B à la surface avec des effets potentiellement nocifs sur les organismes vivants, notamment le phytoplancton marin dans les océans, et une augmentation des cancers de la peau chez l'homme. Les dommages engendrés sur les écosystèmes et les problèmes de santé résultent également de la pollution atmosphérique régionale et globale. Les pluies acides auraient supprimé la vie dans plusieurs lacs d'Amérique du Nord et d'Europe, et en conjonction avec l'augmentation des niveaux d'ozone à la surface terrestre (*Seinfeld et Pandis, 1998; Brasseur et al., 1999*), auraient endommagé les forêts dans certaines parties du monde. Pour quantifier l'importance de l'influence humaine, il faut quantifier avec précision les sources naturelles de polluants, d'une part parce qu'il faut pouvoir les comparer aux sources anthropiques, et d'autre part, parce qu'il existe des interactions importantes entre les gaz émis par les activités humaines et ceux d'origine naturelle. Pour les composés organiques volatils non-méthaniques, parmi les sources naturelles, la végétation représente probablement la plus grande part (*Isidorov et al., 1985; Rasmussen et Khalil, 1988; Isidorov, 1992; Fuentes et al., 1995; Seufert, 1997; Geron et al., 1997; Kesselmeier et Staudt, 1999*).

Dans ce travail, nous nous sommes plus particulièrement attachés à l'étude des émissions d'hydrocarbures par la végétation et de leur impact sur la composition chimique de la troposphère. Les sections suivantes décriront respectivement la structure de l'atmosphère, la composition de l'air et les sources de polluants. La dernière partie de ce chapitre décrira particulièrement les composés organiques volatils qui sont au centre de notre recherche.

1.2 L'atmosphère terrestre

1.2.1 Description générale

L'atmosphère terrestre, fine couche fragile entourant la Terre, joue un rôle important du fait de son interaction avec l'environnement dans lequel nous vivons. Elle est constituée d'un mélange de gaz, que nous appelons air, lié à la Terre par gravité. La Terre et son atmosphère échangent, en permanence, de l'énergie, de la quantité de mouvement et de la matière. La pression de l'air (p), de l'ordre de 1000 hPa (ou mb) près de la surface (z_0), décroît quasi-exponentiellement avec l'altitude (z)

$$p(z) = p(z_0) \exp\left(-\frac{z - z_0}{H}\right) \quad (1.1)$$

où l'échelle de hauteur en pression

¹Quelques définitions utiles sont données dans l'Annexe B.

$$H = \frac{RT}{g}$$

de l'ordre de 8 km, peut-être calculée à partir des valeurs de la constante universelle des gaz parfaits R ($287 \text{ J K}^{-1} \text{ kg}^{-1}$), de l'accélération gravitationnelle g et de la température T (exprimée en kelvin) ($T(\text{K}) = T(^{\circ}\text{C}) + T_0$ où $T_0 = 273.15 \text{ K}$). La masse sèche totale de l'atmosphère (moyenne annuelle) est estimée à $5.13 \times 10^{18} \text{ kg}$ (*Trenberth et al.*, 1987).

L'atmosphère est généralement décrite en termes de couches caractérisées par un gradient vertical de température (Figure 1.1) (*Quinet*, 1995; *Brasseur et al.*, 1999; *Kockarts*, 2000). La *troposphère* s'étend de la surface terrestre à la tropopause située à une altitude approximative de 18 km dans les régions tropicales, 12 km aux latitudes moyennes et 6 à 8 km près des pôles. Dans cette couche, la température diminue avec l'altitude pour atteindre une température moyenne de l'ordre de -55°C à la tropopause. On observe parfois, au sein de la troposphère, des couches relativement minces, de quelques centaines de mètres, où la température cesse de décroître ou même croît. On parle alors d'inversion thermique. La pression à la tropopause est de l'ordre de 100 hPa aux Tropiques et 300 hPa aux hautes latitudes. La troposphère contient environ 85-90% de la masse totale de l'atmosphère. Cette couche est souvent dynamiquement instable à cause des rapides échanges verticaux d'énergie et de masse associés à l'activité convective. Globalement, le temps qui caractérise le mélange des espèces chimiques dans la troposphère est de l'ordre de quelques semaines. C'est dans cette couche qu'apparaissent des phénomènes typiques tels que le passage de fronts, la formation des nuages et des orages et que se forment les systèmes synoptiques qui conditionnent largement le temps aux latitudes moyennes. Ces perturbations atmosphériques permettent des échanges verticaux rapides (quelques heures) à l'échelle locale.

La couche limite planétaire est la région de la troposphère où les effets liés aux échanges entre la surface de la Terre et l'atmosphère sont importants. Son épaisseur est de l'ordre de 1 km, mais varie considérablement avec l'heure de la journée et les conditions météorologiques. Au-delà de cette couche, la troposphère est dite « libre ». L'échange de composés chimiques entre la surface et la troposphère libre dépend directement de la stabilité de cette couche limite. Au-dessus de la troposphère s'étend la *stratosphère*, couche où l'atmosphère devient très stable parce que la température croît avec l'altitude pour atteindre environ 0°C vers 50 km. Ce niveau de température maximum est appelé la stratopause. La stratosphère contient environ 90% de l'ozone atmosphérique. Le temps de résidence typique de matière injectée dans la basse stratosphère est de l'ordre de 1 à 3 ans. La couche située entre 50 et 90-100 km d'altitude est appelée *mésosphère* et sa limite supérieure est la mésopause. Dans cette dernière région, la température décroît à nouveau avec l'altitude pour atteindre environ 130-135 K aux latitudes plongées dans le jour polaire et, environ 190 K aux latitudes plongées dans la nuit polaire (*Hedin*, 1991; *Chabrilat*, 2001). La mésopause est généralement située entre 95 et 100 km d'altitude (*Chabrilat*, 2001). Cette couche est très fréquemment instable dynamiquement en raison des rapides mélanges verticaux et du déferlement des ondes de gravités (*Chabrilat*, 2001). Au-dessus de 100 km, dans la région appelée *thermosphère*, la température augmente d'abord très rapidement au point d'atteindre le jour

des valeurs de 500 à 1500 K selon le niveau d'activité solaire. Le niveau à partir duquel la température cesse d'augmenter porte le nom de thermopause. Notons enfin que vers 1000 km, lorsque le libre parcours moyen est tel que les particules décrivent des trajectoires ballistiques, l'atmosphère ne se conduit plus à strictement parler comme un milieu continu et la notion de température cinétique perd son sens.

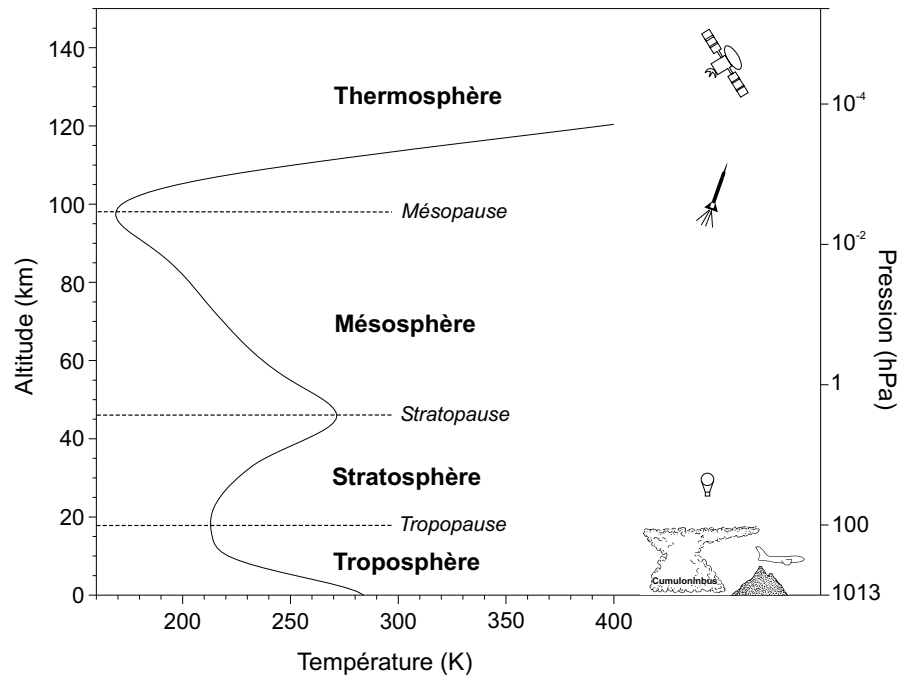


FIG. 1.1: Profil vertical de la température entre la surface et 100 km d'altitude, comme défini par U.S. Standard Atmosphere (1976) (NOAA, 1976), et couches associées de l'atmosphère. Notez que le niveau de la tropopause est représenté pour des conditions typiques des latitudes moyennes. Les nuages Cumulonimbus dans les régions tropicales s'étendent jusqu'à la tropopause située à environ 18 km d'altitude (Brasseur *et al.*, 1999; Kockarts, 2000).

1.2.2 Composition de l'air

L'atmosphère de la Terre est un mélange d'une multitude de constituants chimiques. Les plus abondants d'entre eux sont l'azote N_2 (78% en volume) et l'oxygène O_2 (21% en volume). Ces gaz, ainsi que les gaz nobles (argon, néon, hélium, krypton, xénon), ont des temps de vie photochimiques très longs et sont, par conséquent, bien mélangés au-dessous de 100 km d'altitude. Les constituants mineurs, tels que la vapeur d'eau, le dioxyde de carbone, l'ozone et beaucoup d'autres encore, jouent également un rôle important en dépit de leur très faible concentration : ils influencent la transmission des rayonnements solaire et terrestre dans l'atmosphère et jouent donc un rôle climatique ; ils constituent des composants-clés des cycles biogéochimiques ; de plus, ils déterminent la « capacité oxydante » de l'atmosphère et par conséquent, les temps

de vie des gaz en trace d'origines biogénique et anthropique. Le Tableau 1.1 donne différentes informations sur les gaz en trace importants de l'atmosphère, tandis que la Figure 1.2 montre une distribution approximative avec l'altitude du rapport de mélange² des principaux constituants chimiques. Parmi les gaz en trace, certains, comme par exemple les hydrocarbures, sont des précurseurs d'ozone. Ils réagissent chimiquement pour former, sous certaines conditions, de l'ozone (*Atkinson, 1990; Fehsenfeld et al., 1992*). Pour étudier l'ozone, il est primordial d'établir le bilan global des espèces chimiques troposphériques, d'établir l'inventaire de leurs émissions, d'identifier et de quantifier les productions et les pertes chimiques, les dépôts, et les échanges entre la troposphère et la stratosphère.

Etant donné la grande variabilité des gaz en trace et l'insuffisance des réseaux de mesure, les scientifiques ont recours aux « CTM³ », modèles de chimie et transport dans l'atmosphère (ex.: IMAGES (*Müller et Brasseur, 1995*), MOZART (*Brasseur et al., 1998; Hauglustaine et al., 1998; Horowitz et al., 2003*), etc.), pour quantifier la concentration de ces composés. Ces modèles de chimie et de transport (CTM) schématisent notre compréhension de la chimie atmosphérique. Les différents composés en trace étant très dépendants les uns des autres, il est nécessaire de les inclure simultanément dans les CTM pour prendre en compte leurs interactions chimiques. Les CTM sont des outils importants pour étudier les processus qui contrôlent la composition de l'atmosphère. Les modèles globaux sont utilisés pour prédire comment les perturbations engendrées par l'homme peuvent altérer le climat et la composition chimique de l'atmosphère. A l'échelle régionale, les modèles sont utilisés pour étudier la qualité de l'air et, plus particulièrement, pour identifier les contributions de diverses sources d'émission et pour définir des scénarios de réduction de la pollution atmosphérique. Ce procédé est relativement simple pour les polluants qui sont émis directement dans l'atmosphère. Ce n'est pas le cas de l'ozone, qui n'est pas émis directement, et dont la formation fait intervenir de nombreuses autres espèces. Des études numériques ont montré qu'une stratégie efficace de contrôle de l'ozone demande une compréhension à la fois des émissions anthropiques et des émissions biogéniques de ses composés précurseurs, même si seulement les émissions anthropiques sont considérées pour la réduction des émissions.

Différentes études ont évalué l'impact des émissions de composés organiques non-méthaniques sur différents composés chimiques. *Poisson et al. (2000)*, par exemple, ont estimé les effets de ces composés sur la composition chimique de la troposphère. Ils ont calculé que l'oxydation de ces composés augmente les concentrations de CO en surface d'environ 40 à 60% sur les continents et légèrement moins sur les océans. Les concentrations de CO dans la troposphère libre augmentent de 30 à 60%. Quant à *Grarnier et al. (2000)*, ils estiment que l'oxydation de l'isoprène et des terpènes contribue à environ 10% et 2% respectivement des quantités troposphériques globales de monoxyde de carbone, avec une contribution maximale en Amérique du Sud et en Afrique. Différents scénarios (avec et sans émission d'isoprène ou d'émission d'hydrocarbures non-méthaniques) montrent des changements dans les concentrations d'ozone. L'oxy-

²Cf. Annexe B.

³Une liste des acronymes est donnée dans l'Annexe A.

dition des hydrocarbures non-méthaniques entraîne (1) 20 à 80% d'augmentation des concentrations d'ozone dans les régions où les concentrations de NO_x sont élevées, avec un maximum au-dessus des régions industrielles et des régions où se pratique le brûlage de la biomasse, (2) 20 à 30% d'augmentation des concentrations d'ozone au-dessus des océans et (3) 10 à 60% d'augmentation de ces concentrations à plus haute altitude avec un maximum au-dessus des régions tropicales (*Poisson et al.*, 2000). *Wang et Shallcross* (2000) évaluent l'effet de l'oxydation de l'isoprène sur l'ozone à une augmentation de 4 ppbv au-dessus des océans et de 8 à 12 ppbv au-dessus des continents aux latitudes moyennes. *Houweling et al.* (1998) déterminent une augmentation de la production photochimique nette d'ozone d'environ 40% et une augmentation d'environ 17% de la colonne d'ozone troposphérique suite à l'oxydation des hydrocarbures non-méthaniques. Un scénario dans lequel les émissions actuelles de ces composés sont annulées montre une diminution des concentrations d'ozone inférieure à 15% (*Wang et al.*, 1998). Les effets sur les concentrations de OH et NO_x sont aussi importants. En moyenne globale, les concentrations de OH augmenteraient d'environ 20% en l'absence d'hydrocarbures non-méthaniques (*Wang et al.*, 1998). En présence de ces hydrocarbures, les concentrations de OH diminueraient de 20 à 60% dans la couche limite planétaire au-dessus des continents et elles augmenteraient de 10 à 20% au-dessus des océans (*Poisson et al.*, 2000). Les concentrations de NO_x diminuent d'environ 30% dans la basse troposphère à grande distance des sources industrielles et urbaines et augmentent de 40 à 70% au-dessus des continents et jusqu'à 50% au-dessus des océans (*Wang et al.*, 1998; *Houweling et al.*, 1998). Le temps de vie du méthane, quant à lui, augmente d'environ 15% et passe de 6.5 à 7.4 ans (*Poisson et al.*, 2000) suite à l'oxydation des hydrocarbures non-méthaniques.

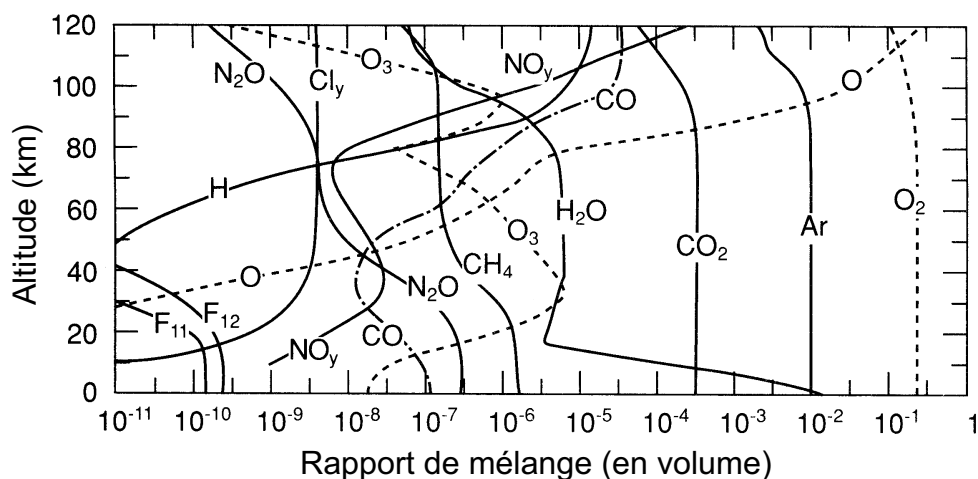


FIG. 1.2: Distribution verticale typique de la concentration des constituants chimiques de l'atmosphère ($\text{F}_{11} = \text{CFCl}_3$ et $\text{F}_{12} = \text{CF}_2\text{Cl}_2$) (*Brasseur et al.*, 1999).

TAB. 1.1: Composition chimique de l'atmosphère (*Brasseur et al.*, 1999).

Constituant	Formule chimique	Rapport de mélange en volume dans l'air sec	Principales sources et remarques
Azote	N ₂	78.084%	Biologique
Oxygène	O ₂	20.948%	Biologique
Argon	Ar	0.934%	Inerte
Dioxyde de carbone	CO ₂	360 ppmv	Combustion, océan, biosphère
Néon	Ne	18.18 ppmv	Inerte
Hélium	He	5.24 ppmv	Inerte
Méthane	CH ₄	1.7 ppmv	Biogénique et anthropique
Hydrogène	H ₂	0.55 ppmv	Biogénique, anthropique et photochimique
Oxyde nitreux	N ₂ O	0.31 ppmv	Biogénique et anthropique
Monoxyde de carbone	CO	50-200 ppbv	Photochimique et anthropique
Ozone (troposphérique)	O ₃	10-500 ppbv	Photochimique
Ozone (stratosphérique)	O ₃	0.5-10 ppmv	Photochimique
Hydrocarbures non-méthaniques		5-20 ppbv	Biogénique et anthropique
Halocarbures		3.8 ppbv	85% anthropique
Espèces azotées	NO _y	10 pptv-1 ppmv	Sol, éclairs, anthropique
Ammoniaque	NH ₃	10 pptv-1 ppbv	Biogénique
Ion nitrate	NO ₃ ⁻	1 pptv-10 ppbv	Photochimique, anthropique
Ion ammonium	NH ₄ ⁺	10 pptv-10 ppbv	Photochimique, anthropique
Radical hydroxyle	OH	0.1-10 pptv	Photochimique
Radical peroxyde	HO ₂	0.1-10 pptv	Photochimique
Peroxyde d'hydrogène	H ₂ O ₂	0.1-10 ppbv	Photochimique
Formaldéhyde	CH ₂ O	0.1-1 ppbv	Photochimique
Dioxyde de soufre	SO ₂	10 pptv-1 ppbv	Photochimique, volcanique, anthropique
Sulfure de diméthyle	CH ₃ SCH ₃	10-100 pptv	Biogénique
Disulfure de carbone	CS ₂	1-300 pptv	Biogénique, anthropique
Sulfure de carbonyle	OCS	500 pptv	Biogénique, volcanique, anthropique
Sulfure d'hydrogène	H ₂ S	5-500 pptv	Biogénique, volcanique
Ion sulfate	SO ₄ ²⁻	10 pptv-10 ppbv	Photochimique, anthropique

1.3 Les composés organiques

1.3.1 Généralités et rôle des composés organiques

La classe des composés organiques volatils (« VOC ») inclut des espèces de comportements physico-chimiques très différents (*Fall*, 1999). Le méthane constitue un cas exceptionnel parmi les composés organiques volatils en raison de son temps de résidence (environ 10 ans) atmosphérique élevé. Les autres composés, que l'on nomme collectivement les hydrocarbures non-méthaniques (« NMHC ») ou composés organiques volatils non-méthaniques (« NMVOC »), possèdent tous des temps de vie photochimiques qui n'excèdent pas quelques mois. Les hydrocarbures purs contenant uniquement du carbone (C) et de l'hydrogène (H) (c-à-d : les alcanes, les alcènes, les alcynes et les aromatiques) représentent des catégories importantes de composés organiques volatils. Cependant, les composés organiques volatils contenant de l'oxygène, du chlore ou d'autres éléments en plus du carbone et de l'hydrogène, jouent également un rôle important. Notons, par exemple, les aldéhydes, les éthers, les alcools, les cétones, les esters, les alcanes et alcènes chlorés, les chlorofluorocarbures (« CFC ») et les hydrochlorofluorocarbures (« HCFC »).

Le rôle et l'importance pour la chimie atmosphérique des composés organiques produits par les activités humaines ont été établis, il y a environ 60 ans, par Haagen-Smit dans une étude du smog de Los Angeles (*Derwent*, 1995). Ce chimiste a identifié le rôle-clé de l'oxydation des hydrocarbures en présence du rayonnement solaire et des oxydes d'azote (NO_x) comme une source photochimique d'ozone et d'autres oxydants comme par exemple le radical hydroxyl OH (voir aussi *Atkinson* (1990); *Fehsenfeld et al.* (1992)). Depuis lors, le smog photochimique a été détecté dans presque tous les grands centres urbains et industriels du monde, à des niveaux qui dépassent souvent les valeurs critiques tolérables pour la santé humaine.

Les composés organiques volatils, autres que le méthane, sont plus réactifs que celui-ci. Le radical hydroxyle OH étant généralement le principal oxydant des composés organiques volatils, ceux-ci tendent à faire diminuer sa concentration. De ce fait, les composés organiques volatils influencent le temps de vie d'autres espèces chimiques telles que le méthane (CH_4). Les diverses réactions chimiques des composés organiques volatils conduisent alors à une plus grande accumulation de méthane et d'autres composés. Ils interviennent ainsi de manière indirecte sur le forçage climatique de la planète (Cf. Section 1.1). Une conséquence supplémentaire de l'oxydation de certains composés organiques volatils (en particulier les monoterpènes) est la formation d'aérosols (particules) organiques secondaires dont certains sont reconnus comme pouvant affecter la santé humaine, la visibilité atmosphérique et la formation des nuages. Pour de plus amples détails sur la chimie des hydrocarbures, nous renvoyons le lecteur au Chapitre 6.

Les composés organiques volatils peuvent être classés en deux catégories :

- les composés organiques volatils naturels ou biogéniques produits par la biosphère terrestre et marine. Nous les noterons « BVOC » (« B » pour biogénique). L'importance de ces composés organiques émis par la biosphère naturelle a été

soulignée, dans les années 60, par Rasmussen (*Derwent*, 1995).

- les composés organiques volatils d'origine anthropique produits par les activités humaines liées à l'industrie, y compris l'utilisation de combustibles fossiles (pétrole, essence, ...). Nous les noterons AVOC (« A » pour anthropique).

Les hydrocarbures biogéniques et anthropiques sont émis dans l'atmosphère, avec des flux excédant $1000 \text{ Tg C an}^{-1}$ (Tableau 1.2).

Le Tableau 1.2 présente une estimation récente des quantités émises classées par catégorie. Bien que les émissions anthropiques dominent dans les régions urbaines et industrielles, les émissions naturelles comptent pour plus de la moitié du total des émissions de NMHC aux Etats-Unis et pour plus des trois quarts globalement (*Lamb et al.*, 1987; *Müller*, 1992; *Guenther et al.*, 1995). Les sources de ces composés sont variables dans l'espace et dans le temps, et les estimations de ces émissions restent incertaines. Cependant, de récentes estimations des sources de NMHC sont présentées au Tableau 1.2. Les sources anthropiques sont principalement liées à l'utilisation d'énergie et à l'industrie chimique. Dans les pays industrialisés, la combustion de carburants fossiles (incluant les automobiles), les pertes du gaz naturel transporté dans les systèmes de distribution, et les traitements industriels de produits chimiques et de déchets représentent des sources majeures de NMHC anthropiques. Dans les parties moins développées du monde, le brûlage de biomasse est la composante dominante des émissions d'hydrocarbures. Un faible pourcentage des émissions naturelles provient de sources océaniques, mais celles-ci sont négligeables vis-à-vis des émissions provenant de la végétation, en particulier des arbres (*Sharkey et Yeh*, 2001).

1.3.2 Les composés organiques d'origine biogénique

Mécanismes de production et d'émissions de composés organiques volatils biogéniques

Les composés organiques volatils biogéniques (BVOC) sont synthétisés dans les plantes grâce au carbone assimilé lors de la photosynthèse, processus physiologique par lequel les végétaux qui contiennent de la chlorophylle sont capables de capter l'énergie lumineuse et de la transformer en énergie chimique afin de réaliser la nutrition carbonée à partir du CO_2 atmosphérique. Ce processus est accompagné d'un dégagement d'oxygène (O_2). La Figure 1.3 nous montre schématiquement la formation des terpénoïdes.

Le métabolisme des plantes conduit à la production et à l'émission d'une grande variété de composés organiques volatils. La Figure 1.4 illustre un hypothétique « arbre à VOC » qui émet tous les principaux composés organiques volatils dérivés des plantes ainsi que les composés organiques volatils des essences florales. En réalité, différentes familles de plantes émettent différents sous-ensembles de composés organiques. L'arbre à VOC souligne aussi le fait que les composés organiques volatils biogéniques sont produits dans différents tissus et compartiments de la plante par divers processus physiologiques. Certains composés organiques volatils s'accumulent dans les feuilles, les branches ou les troncs et sont relâchés après l'endommagement des feuilles ou des

TAB. 1.2: Estimations des émissions globales d'hydrocarbures non-méthaniques (*Brasseur et al.*, 1999).

Sources d'émissions	Flux (Tg C an⁻¹)
<i>Anthropiques (AVOC) :</i>	
Transport	22
Combustion de fuels fossiles (hors transport)	4
Procédés industriels incluant la production de gaz naturel	17
Brûlage de la biomasse, feux de forêt, incinération	45
Solvants organiques	15
<i>Sous-total des émissions anthropiques</i>	<i>103</i>
<i>Naturelles (BVOC) :</i>	
<i>Océaniques :</i>	
Hydrocarbures légers	5-10
C ₉ -C ₂₈ <i>n</i> -alcanes	1-26
<i>Terrestres :</i>	
Production microbienne	6
Emissions par la végétation	
isoprène	500
monoterpènes	125
autres	520 ^a
<i>Sous-total des émissions naturelles</i>	<i>~1170</i>
Emissions totales	~1273

^aextrêmement incertain

branches ou après la coupe des arbres (*Loreto et al.*, 2000). L'émission d'autres composés organiques volatils (par exemple l'isoprène) est directement liée à l'action des enzymes de la plante. On pense que les émissions de composés organiques volatils sont un agent de dissuasion contre des organismes pathogènes et contre les herbivores (*De Moraes et al.*, 2001). D'autres part, les composés organiques volatils qui s'accumulent dans les fleurs attirent les pollinisateurs. La principale source d'émission de composés organiques volatils est le feuillage. La Section 1.3.2 donne une estimation des émissions par les différentes sources.

Le Tableau 1.3 donne quelques indications à propos du rôle associé à chaque composé organique volatil biogénique. Le but de ce travail n'étant pas de décrire en détail les mécanismes de formation, nous invitons le lecteur à consulter *Fall* (1999) pour de plus amples informations.

La Figure 1.5 illustre la biosynthèse de deux classes de composés organiques volatils biogéniques : les hémiterpènes, composés de 5 carbones comme l'isoprène, et les monoterpènes, composés de 10 carbones (Cf. aussi la section suivante).

En réduisant la quantité de carbone qui est fixée par la végétation, les émissions

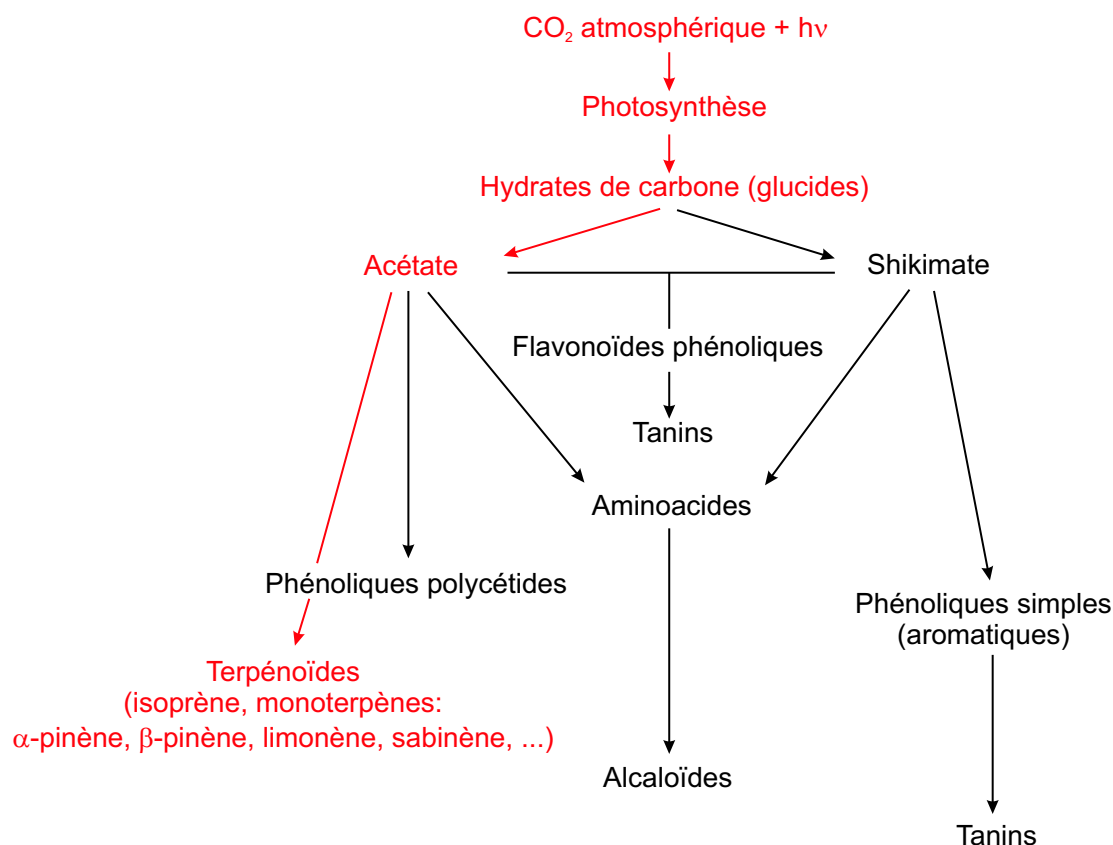


FIG. 1.3: Schéma simplifié de la biosynthèse de plusieurs classes de produits naturels dont les terpénoïdes (*Ting*, 1982).

de composés organiques volatils affectent la productivité de la plante. Bien que les émissions comptent pour approximativement 2% de l'échange total en carbone (6900 Tg C par an) entre la biosphère et l'atmosphère, elles ne sont pas considérées dans le cycle global du carbone. Les émissions de composés organiques volatils peuvent avoir des effets directs et indirects sur le cycle du carbone. Les effets directs sont causés par l'émission de carbone assimilé par les plantes sous forme de ces composés (*Sharkey et al.*, 1991; *Lerdau et al.*, 1997). Les effets indirects, quant à eux, sont plutôt liés à l'oxydation de ces composés biogéniques sous forme de CO ou de CO₂ dans la basse atmosphère.

Catégories de composés organiques volatils biogéniques et émissions globales

Le Tableau 1.4 résume les connaissances actuelles qui concernent les principaux composés organiques volatils biogéniques et indiquent les sources principales, les estimations des émissions globales et leur temps de résidence dans l'atmosphère (*Fall*, 1999). Pour être complet, ce tableau inclut aussi le méthane, le plus simple et plus abondant des hydrocarbures biogéniques émis. Les incertitudes sur les émissions globales

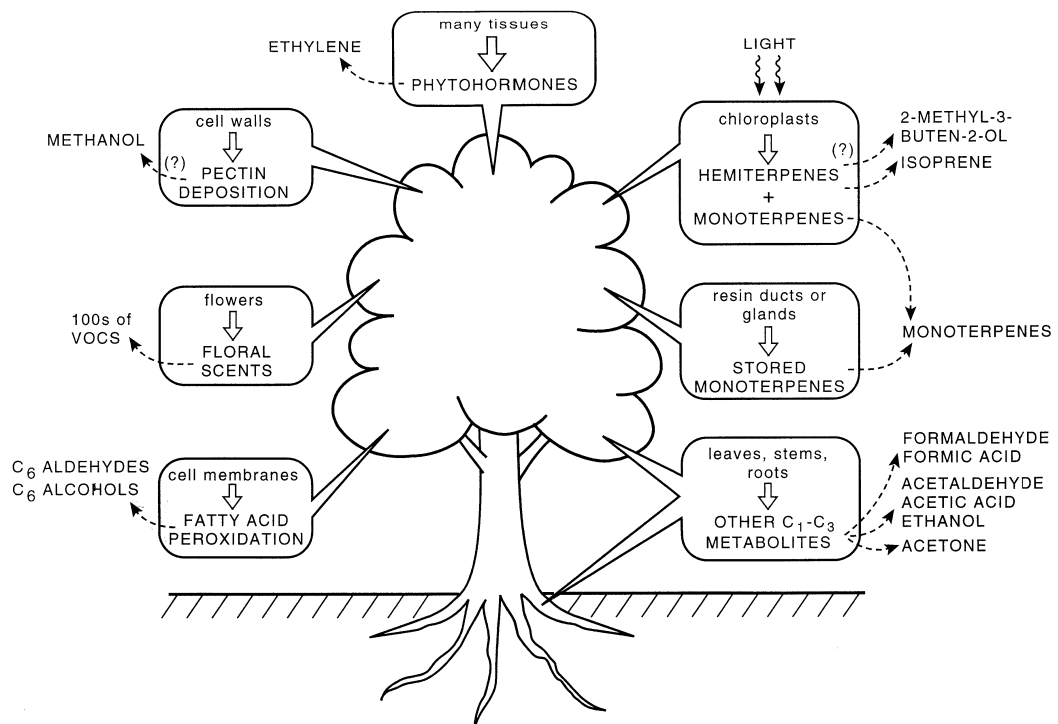


FIG. 1.4: Cet « arbre à VOC » montre que le métabolisme des plantes produit et émet une grande variété de composés organiques volatils (Fall, 1999).

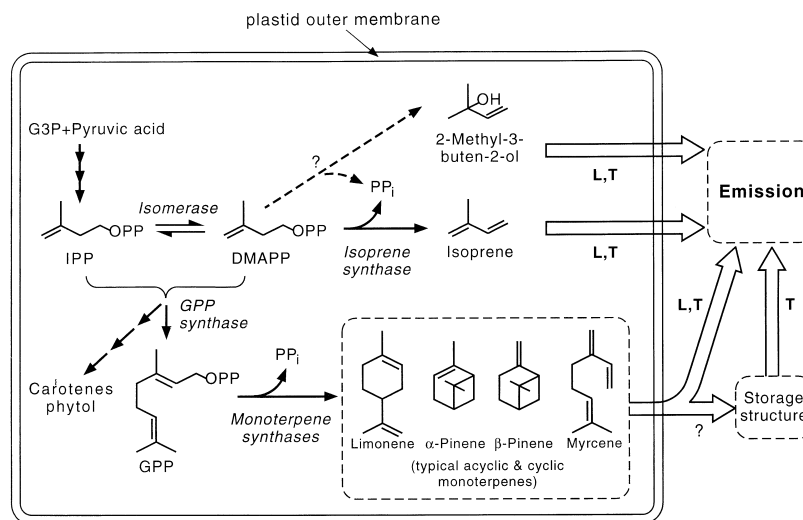


FIG. 1.5: Illustration de la biosynthèse des hémiterpènes (C₅) et des monoterpènes (C₁₀). Pour de plus amples explications sur les termes de cette figure, nous renvoyons le lecteur aux travaux de Fall (1999).

TAB. 1.3: Catégories d'émission de composés organiques volatils non-méthaniques (NMVOC) par la végétation et type d'émission correspondante (*Guenther et al.*, 2000).

Composés (exemples)	Rôle	Mécanisme qui limite l'émission
Isoprène, MBO, α -pinène	Incertain	Enzyme dépendante de la lumière
α -pinène, myrcène	Défense (tissus spécialisés)	Relâché à partir de réservoirs de stockage
Famille des hexénals	Défense (tissus non-spécialisés)	Peroxydation des acides gras
Ethène	Croissance Régulation	Enzyme
Méthanol, acétone	Incertain	Incertain
Linalool, xylène	Attractif	Développement de la fleur
Acide acétique	Incertain	Incertain

des 4 premières espèces du Tableau 1.4 (le méthane, l'isoprène, la famille des monoterpènes et le sulfure de diméthyle (« DMS »)) n'excèdent pas un facteur 3 (*Fall*, 1999). La connaissance des niveaux ambiants de ces composés, leur chimie, leur biogenèse et leur taux d'émission est le fruit d'un intérêt intense et de nombreuses campagnes de mesure sur le terrain et d'études en laboratoire. Pour les autres hydrocarbures du Tableau 1.4, il y a beaucoup moins de certitude quant à leur émission globale, en partie parce que (1) les émissions d'une partie de ces autres composés organiques biogéniques n'ont été identifiées que récemment et (2) il y a des difficultés associées à l'échantillonnage et à l'analyse de ces composés. Suivant les recommandations d'un groupe international de chercheurs (GEIA), ces composés additionnels sont groupés en deux catégories : les autres composés organiques volatils réactifs (notés en anglais « ORVOC »), avec des temps de vie dans l'atmosphère inférieurs à un jour, et les autres composés organiques volatils moins réactifs (en anglais « OVOC »), avec des temps de vie supérieurs à un jour (*Guenther et al.*, 1995). On peut inclure, parmi les autres composés organiques volatils réactifs, l'acétaldehyde, le 2-méthyle-3-butène-2-ol (« MBO », alcool de la famille des hémiterpènes comme l'isoprène), et la famille des hexénals, des aldéhydes et des alcools. Parmi les autres composés organiques volatils moins réactifs, il y a le méthanol, l'éthanol, l'acide formique, l'acide acétique et l'acétone.

Dans ce travail, nous considérons les hydrocarbures émis par la végétation et, plus particulièrement, l'isoprène et la famille des monoterpènes. Ces derniers font partie de la famille des alcènes, comprenant au moins une liaison double. De par cette double liaison, la réactivité de ces hydrocarbures dans l'atmosphère est accrue.

L'isoprène L'isoprène est de loin le plus émis des composés organiques volatils. Les flux émis sont de l'ordre de 175 à 503 Tg de carbone par an (Tableau 1.4 et Section

TAB. 1.4: Principaux composés organiques volatils biogéniques (BVOC) (*Fall, 1999*).

<i>Espèces</i>	<i>Sources naturelles principales</i>	<i>Emissions annuelles globales (Tg C)</i>	<i>Temps de vie dans l'atmosphère (jour)</i>
Méthane	zones humides (par ex.: rizières)	319-412	4000
Isoprène	Plantes	175-503	0.2
Famille des monoterpènes	Plantes	127-480	0.1-0.2
Sulfure de diméthyle (DMS)	Phytoplanctons marins	15-30	<0.9
Ethylène	Plantes, sol, océans	8-25	1.9
Autres VOC réactifs (ORVOC)	Plantes	~260	<1
Autres VOC moins réactifs (OVOC)	Plantes, sol	~260	>1

1.3.2) et les régions tropicales représentent une source importante d'isoprène (Cf. Chapitre 5). Les modèles de chimie et transport, les CTM, ont permis entre autres d'étudier le rôle de l'isoprène dans la chimie atmosphérique, aussi bien à l'échelle globale qu'à l'échelle régionale. Parmi ceux-ci, citons IMAGES (*Müller et Brasseur, 1995*) et MOZART (*Brasseur et al., 1998; Hauglustaine et al., 1998; Horowitz et al., 2003*). Le Chapitre 6 montre une utilisation du modèle IMAGES.

L'isoprène est un composé à 5 carbones (C_5H_8), dont la structure est 2-méthyle-1,3-butadiène (Figure 1.5), qui est émis en grande quantité par les arbres à feuilles caduques. L'émission d'isoprène par des plantes ligneuses telles que les caroubiers, les peupliers et les saules a été découverte par Sanadze vers 1957 (*Sanadze, 1957*) et a été confirmée plus tard par *Rasmussen (1970)*. Sanadze et ses collaborateurs ont établi un lien entre la production d'isoprène et la photosynthèse, les courbes de réponse de l'isoprène à la lumière et à l'assimilation de CO_2 photosynthétique étant très similaires (*Sanadze, 1991*). L'isoprène est produit dans beaucoup de familles de plantes. Notons que le potentiel d'émission d'isoprène est variable parmi une même famille de plantes, comme par exemple les chênes (genre *Quercus*) : tous les chênes d'Amérique de Nord sont de forts émetteurs d'isoprène tandis que les chênes européens sont plutôt non-émetteurs d'isoprène et, curieusement, la plupart émettent des monoterpènes, dont les émissions sont dépendantes de la lumière (*Seufert et al., 1997*).

De nombreuses campagnes de mesure ont été menées aux Etats-Unis (ROSE, Metter, BOREAS, SOS, Harvard Forest, Oak-Ridge, ..., Cf. Chapitre 3) mais aussi en Europe (BEMA). Cependant, il existe encore de grandes incertitudes sur les émissions de ce composé dans les régions tropicales. Récemment, diverses campagnes ont été réalisées pour tenter de quantifier les flux d'émissions dans ces régions tropicales (LBA, SAFARI2000, EXPRESSO, Cf. Chapitre 3). Les émissions d'isoprène par un grand nombre de plantes d'Amérique du Nord et d'Europe ont été mesurées sur le

terrain et en serre. Les grands émetteurs d'isoprène incluent les espèces : *Casuarina* (« Bois de fer »), *Eucalyptus*, *Populus* (peupliers et trembles) et *Quercus* (chênes). Les flux d'isoprène sont habituellement exprimés en $\mu\text{g C g}_{\text{ms}}^{-1} \text{h}^{-1}$ où g_{ms} signifie gramme de matière sèche. *Guenther et al.* (1994) et *Steinbrecher* (1997) ont assemblé ces données et en ont déduit les taux d'émission standard ε , définis comme étant les taux d'émission pour une quantité donnée de lumière (rayonnement actif pour la photosynthèse (« PAR »)) de $1000 \mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$ et pour une température de feuille de 30°C . Ils les ont classés en 4 catégories : (1) négligeable : <0.1 , (2) faible : 14 ± 7 , (3) modérée : 35 ± 17.5 et (4) élevée : 70 ± 35 . La variabilité du taux d'émission d'isoprène n'est pas connue ni expliquée avec certitude. Ce taux d'émission ne dépend pas seulement des valeurs instantanées de l'intensité lumineuse et de la température de la feuille mais aussi de l'environnement dans lequel la végétation croît et du développement de la feuille. La production et l'émission d'isoprène ne sont pas limitées aux plantes supérieures, de petites quantités d'isoprène pouvant être émises par divers organismes comme les bactéries, les champignons, le phytoplancton marin, l'être humain et d'autres mammifères (*Fall*, 1999) (Cf. Tableau 1.6 les estimations chiffrées de ces émissions).

La famille des monoterpènes Une autre classe importante de composés organiques volatils biogéniques est la famille des composés à 10 carbones connue sous le nom des *monoterpènes*. Ces derniers sont émis par un grand nombre d'arbres et de broussailles et, plus particulièrement, par les conifères. Ce sont les monoterpènes qui donnent les senteurs caractéristiques aux pins, à la menthe et à l'eucalyptus. En comparaison avec l'isoprène, les monoterpènes ont été beaucoup moins mesurés et étudiés. Certaines régions ont cependant fait l'objet d'études approfondies (citons les campagnes BOREAS au Canada, Huhus et Hyttiala en Finlande). Etant donné que la chimie des monoterpènes est encore mal connue, leur rôle reste encore peu étudié dans les CTM globaux. Cependant, des études en laboratoire et de modélisation ont démontré un aspect important : les monoterpènes sont sources d'aérosols (*Kavouras et al.*, 1998; *Kulmala et al.*, 1998; *Griffin et al.*, 1999; *Kulmala et al.*, 2000; *Andersson-Sköld et Simpson*, 2001; *Capouet et al.*, 2004).

Les monoterpènes ($\text{C}_{10}\text{H}_{16}$) sont l'assemblage de 2 unités d'isoprène (C_5H_8). Plus de 1000 structures de monoterpènes sont connues (*Fall*, 1999; *Guenther et al.*, 1994; *Geron et al.*, 2000), qui incluent des structures acycliques et cycliques. La Figure 1.5 montre des exemples typiques de monoterpènes acycliques, monocycliques et bicycliques trouvés dans une feuille de menthe. Le Tableau 1.5 montre des exemples de monoterpènes émis par la végétation dans l'atmosphère. Généralement, les monoterpènes, produits dans la plante, s'accumulent dans des « réservoirs à monoterpènes » et sont stockés dans des structures spécialisées telles que les conduits de résines (pins), les « bulles à résine » (sapins), les « excroissances glandulaires » (menthes) ou les « cavités de stockage » de la feuille (eucalyptus). En général, les émissions de monoterpènes ne sont pas dépendantes de la lumière mais il existe certaines exceptions comme par exemple les émissions par les chênes (*Quercus ilex* en méditerranée (*Loreto et al.*, 1996a,c,b)) ou par certains pins (*Staudt et al.*, 2000). Comme pour l'isoprène, les taux d'émission standard ε sont très variables d'une espèce à l'autre. Dans le cas

des monoterpènes, *Guenther et al.* (1994) les ont classés en 5 catégories ($\mu\text{g C g}_{\text{ms}}^{-1} \text{h}^{-1}$) : (1) négligeable : <0.1 , (2) très faible : 0.2 ± 0.1 , (3) faible : 0.6 ± 0.3 , (4) modérée : 1.6 ± 0.8 et (5) élevée : 3 ± 1.5 .

TAB. 1.5: Exemples de monoterpènes émis par la végétation dans l'atmosphère (*Guenther et al.*, 1994).

<i>Principaux</i>	<i>Fréquents</i>	<i>Occasionnels</i>
Δ^3 -carène	α -Thujène	α -Fenchène
δ -limonène	Tricyclène	β -Fenchène
Myrcène	Terpinolène	δ -Fenchène
α -pinène	α -Terpinène	ε -Fenchène
β -pinène	β -Terpinène	Bornylène
Sabinène	γ -Terpinène	Alloocimène
Camphène	<i>p</i> -Cymène	Méthyl chavicol
1,8-Cinéole	α -Phellandrène	<i>p</i> -Cymen-8-ol
β -Phellandrène	<i>trans</i> -Ocimène	Linalool
	<i>cis</i> -Ocimène	2-Méthyl-6-méthylène-1,7-octadiène-3-one
	2-Carène	Pinocarvone
		Verbenone
		Fenchone
		Thujone
		Camphor

Calcul des émissions

L'estimation du rôle de la végétation sur les émissions de composés organiques volatils biogéniques est rendue compliquée par un certain nombre de facteurs. Les taux d'émission de ces hydrocarbures varient de plusieurs ordres de grandeur entre les différents types de composés biogéniques. Mais la nature des espèces émises - isoprène, monoterpènes ou autres - est particulière à chaque espèce végétale. Donc, l'estimation précise du flux de ces divers composés pour une région donnée requiert une connaissance détaillée de la composition en espèces de la végétation, des caractéristiques d'émission et de la quantité de biomasse (masse de matière sèche par surface au sol) des feuilles pour chacune des espèces. De plus, ces flux émis par la végétation sont très sensibles à la température. Les émissions d'isoprène augmentent avec la température jusqu'à une température optimale (environ 40°C, voir Figure 1.6) tandis que les émissions de monoterpènes, souvent beaucoup plus faibles que les émissions d'isoprène, augmentent exponentiellement avec la température sans optimum. Les émissions d'isoprène montrent aussi une dépendance à l'intensité de la lumière. Ces dépendances, en lumière et température, ont été déterminées expérimentalement (*Guenther et al.*, 1993; *Guenther*, 1997) et sont illustrées à la Figure 1.6. Ces

informations ont été intégrées dans des modèles d'émissions de composés organiques volatils biogéniques aux échelles régionale et globale (*Guenther et al.*, 1995) (Cf. Chapitre 2 pour une description détaillée de ces dépendances en lumière et en température, G93 et G97).

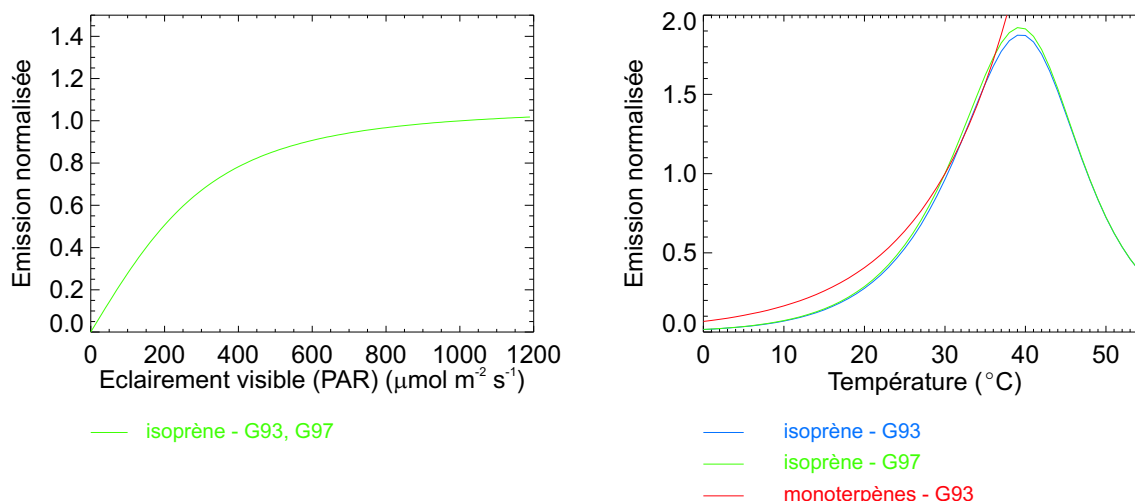


FIG. 1.6: A droite, réponse des émissions d'isoprène (courbe bleue (G93) (*Guenther et al.*, 1993) et courbe verte (G97) (*Guenther*, 1997)) et de monoterpènes (courbe rouge (G93) (*Guenther et al.*, 1993)) aux changements de température. A gauche, réponse des émissions d'isoprène aux changements de rayonnement actif pour la photosynthèse, basée sur le travail de *Guenther et al.* (1993); *Guenther* (1997) (G93,G97).

Bien que la lumière et la température soient les principaux facteurs qui contrôlent les émissions de composés organiques volatils biogéniques de la végétation, de récentes études ont montré que l'âge de la feuille et l'environnement dans lequel la végétation croît affectent l'émission de ces composés (*Pétron*, 1998; *Pétron et al.*, 2001; *Guenther et al.*, 2000). De plus, l'émission de certains composés organiques volatils particuliers a été corrélée à la floraison et à la rupture des bourgeons. Des facteurs supplémentaires qui peuvent influencer de manière importante les émissions naturelles incluent le contenu en azote de la plante, la quantité d'eau disponible, la présence d'insectes, les maladies et autres stress, mais ces mécanismes ne sont pas encore bien compris.

L'isoprène est principalement émis par le feuillage végétal et, plus particulièrement, par la canopée (étage sommital d'une forêt ou d'une grande étendue végétale). *Guenther et al.* (1995) ont estimé que les émissions annuelles globales sont d'environ 500 Tg de carbone, qui sont scindées en deux catégories : (1) le feuillage de la canopée (460 Tg C par an) et (2) le sol (40 Tg C par an). Outre la production enzymatique dépendante de la lumière, il existe aussi un taux d'émission non-enzymatique d'isoprène à partir du feuillage qui se produit dans le noir. Ceci a été observé sur plusieurs types de plantes, mais n'a pas été étudié en détail parce que les taux d'émission ont été considérés comme négligeables. Les flux annuels globaux d'isoprène sont d'un ordre de grandeur similaire à ceux du méthane mais l'isoprène est plus de 4 ordres de grandeur plus

TAB. 1.6: Estimations annuelles globales des émissions de composés organiques volatils, basées sur les travaux de *Guenther* (1999).

Source	Isoprène	Monoterpènes	Méthane	Autres VOC^a
	(Tg C)			
Feuillage de la canopée	460	115	<1	500
Couvert du sol terrestre et sol lui-même	40	13	175	50
Fleurs	0	2	0	2
Océans et eaux douces	1	<0.001	15	10
Animaux, êtres humains et insectes	0.003	<0.001	100	0.003
Anthropiques (incluant le brûlage de la biomasse)	0.01	1	220	93
Total	~500	~130	~510	~650

^aLes autres VOC incluent tous les composés organiques volatils autres que le méthane, l'isoprène et les monoterpènes

réactif. Ces deux composés comptent pour plus de la moitié des flux totaux de composés organiques volatils.

Guenther et al. (1995) ont comparé les résultats de 7 estimations globales des taux d'émission d'isoprène de la végétation qui s'échelonnent de 175 à 500 Tg de carbone par an. La première estimation globale des émissions, de 350 Tg C, a été proposée par *Zimmerman* (1979) et est environ 30% plus faible que les estimations reportées par *Guenther et al.* (1995), de 500 Tg C. *Guenther et al.* (1995) ont estimé que les écosystèmes boisés, qui représentent moins de la moitié de toutes les surfaces terrestres, contribuent pour environ 75% de toutes les émissions foliaires d'isoprène.

Les estimations des émissions annuelles globales de monoterpènes par le feuillage s'échelonnent de 115 à 480 Tg C (*Guenther et al.* (1995)). Les émissions de monoterpènes peuvent provenir également d'autres sources (Tableau 1.6). Le taux total d'émission (127 Tg C par an) estimé par *Guenther et al.* (1995) a été séparé en deux composantes dans la table 1.6 : (1) à partir du feuillage (115 Tg C) et (2) à partir des troncs, des tiges et du sol de la forêt (13 Tg C).

Comme indiqué dans le Tableau 1.6, la somme des taux d'émission des autres composés organiques volatils est estimée à environ un tiers du taux annuel global des émissions de VOC (incluant le méthane) et à environ la moitié des émissions de NM-VOC. *Guenther et al.* (1995) ont estimé les émissions annuelles globales à 260 Tg C pour les ORVOC (autres composés organiques volatils réactifs) et également à 260 Tg C pour les OVOC (autres composés organiques volatils moins réactifs). Mentionnons encore que ces autres composés organiques peuvent être émis par d'autres sources que le feuillage, comme par exemple les océans et les microbes du sol.

1.4 Objectifs de la thèse

Notre objectif principal est de réduire les incertitudes sur les émissions de composés organiques volatils biogéniques (BVOC) par un travail approfondi de modélisation et par la confrontation des algorithmes d'émission avec des données expérimentales. De façon plus spécifique, nos objectifs sont les suivants.

- Développer un modèle de canopée incluant le calcul du transfert radiatif, de la température de la feuille et des émissions de composés organiques volatils biogéniques (Cf. Chapitre 2).
- Évaluer les algorithmes d'émission, et donc les facteurs de dépendance en lumière et en température, proposés par *Guenther et al.* (1993), *Guenther* (1997) et *Guenther et al.* (1999) à l'aide de campagnes de mesure appropriées (Cf. Chapitres 3 et 4).
- Établir un nouvel inventaire de ces émissions à échelle globale (Cf. Chapitre 5) et quantifier l'impact du nouveau modèle de canopée sur les émissions globales. Pour ce faire, nous avons comparé nos résultats à l'inventaire global de référence des émissions de composés organiques volatils biogéniques (« GEIA ») (*Guenther et al.*, 1995).
- Utiliser cet inventaire comme entrée dans un modèle de chimie et de transport dans l'atmosphère (Cf. Chapitre 6) afin de comprendre et de quantifier l'impact des émissions d'hydrocarbures biogéniques sur la composition de l'atmosphère, et en particulier sur les concentrations de certains composés troposphériques tels que l'ozone (O_3), le monoxyde de carbone (CO), etc.

CHAPITRE 2

Modélisation des émissions des composés organiques volatils par la végétation

2.1 Introduction

La première étape dans le procédé d'estimation des émissions est de calculer leur ordre de grandeur. L'étape suivante est de compiler une base de données des estimations d'émission, qui est connue comme « inventaire d'émission » (Cf. Chapitre 5). *Zimmerman* (1979) a généré le premier inventaire d'émission d'hydrocarbures biogéniques en divisant les Etats-Unis selon plusieurs biomes et zones de latitude, et en estimant les émissions pour les quatre saisons dans chacune de ces zones. Une décennie plus tard, l'intérêt dans le développement d'inventaires des émissions, notamment pour l'Europe (*Simpson et al.*, 1999), s'est considérablement accru et divers programmes de recherche ont été entrepris (par exemple l'étude des émissions de composés organiques volatils biogéniques (BVOC) dans les régions méditerranéennes (projet BEMA) ; dans les régions boréales (projet BIPHOREP) et autres (projet ECOVOC)). Outre les inventaires régionaux, des inventaires globaux ont également vu le jour. Citons entre autres les inventaires produits par *Müller* (1992) et par GEIA (*Guenther et al.*, 1995).

Un outil plus performant que l'inventaire de type statique décrit plus haut est représenté par les modèles dynamiques d'émission, qui peuvent répondre aux changements de l'environnement, de l'utilisation du sol, et d'autres facteurs. Ce type de modèle est nécessaire pour pouvoir prédire les émissions pour des scénarios spécifiques (ex.: une augmentation du niveau de CO₂, ou encore un changement dans l'utilisation du sol (déforestation)).

Le point de départ des modèles d'émission réside dans les études biochimiques et écologiques des processus contrôlant les émissions biogéniques. Ces études peuvent identifier les facteurs contrôlant les émissions et suggèrent une structure pour les algo-

rithmes d'émission. D'une manière générale, les modèles calculent les taux d'émissions F comme le produit

$$F = \varepsilon\gamma D \quad (2.1)$$

où

ε , le facteur d'émission standard, représente le taux d'émission pour un niveau d'activité donné (c-à-d pour une intensité lumineuse (PAR¹) de 1000 $\mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$ et une température de 30°C (303.15 K)),

γ , le facteur d'« activité », représente le niveau d'activité, c-à-d la dépendance aux facteurs environnementaux (lumière, température, ...) qui influencent l'émission, et

D est le facteur de densité de la source.

Jusqu'à présent, les émissions de composés organiques volatils biogéniques ont été paramétrisées sur base de seulement quelques facteurs environnementaux (*Guenther et al.*, 1993) (Cf. équation 2.1 et ci-après). Cependant, l'influence de diverses conditions environnementales (non considérées précédemment) est aussi étudiée, comme par exemple les niveaux de CO₂ et d'autres gaz. Notons qu'en étudiant les bases moléculaires et biochimiques de la synthèse des terpénoïdes, il est maintenant possible d'utiliser ces connaissances pour établir des prédictions détaillées des émissions de ces terpénoïdes en réponse aux conditions ambiantes. Les deux modèles récents (« BIM » modèle d'émission biochimique pour l'isoprène et « SIM » modèle basé sur la synthèse de l'isoprène (*Zimmer et al.*, 2000; *Lehning et al.*, 2001) pourront sans doute, dans l'avenir, être utilisés comme base pour de nouveaux développements. Le modèle couplé SIM-BIM a été appliqué à un petit nombre d'espèces (*Zimmer et al.*, 2003). L'application de ce modèle à d'autres espèces végétales requerrait des détails, spécifiques aux espèces, concernant les propriétés biochimiques d'enzymes particuliers qui sont actuellement mal connus. Ces développements ne font donc pas l'objet de cette thèse.

Dans les sections suivantes, les méthodes pour estimer les facteurs ε , γ et D sont décrites en détail pour l'isoprène, les monoterpènes et autres composés organiques (Section 2.2).

2.2 Description des algorithmes d'émission

2.2.1 Le facteur de source, D

Le facteur de source du feuillage d'une étendue végétale est la densité foliaire D_f , c-à-d la masse de feuille sèche par mètre carré de surface au sol ($\text{g}_{\text{fs}} \text{m}^{-2}$). Alternativement, on aurait pu utiliser la surface de feuille. La plupart des études utilisent la masse sèche de feuille parce qu'elle est relativement simple à mesurer. Le feuillage dans l'enclos est coupé, séché et pesé. Les distributions de feuillage obtenues à partir de mesures par satellite améliorent les estimations de ces quantités de feuilles. De

¹Rayonnement actif pour la photosynthèse, Cf. Annexe B.

plus amples détails sur la détermination de ce facteur seront donnés dans les chapitres suivants (Chapitres 3, 4 et 5).

2.2.2 Le facteur d'émission standard, ε

Les facteurs d'émission standard moyens par écosystème représentent les facteurs d'émission dans les conditions environnementales standard, à savoir, une température de feuille de 30°C (303.15 K) et une intensité lumineuse (PAR) de 1000 $\mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$. Ils sont exprimés généralement en $\mu\text{g C g}^{-1} \text{h}^{-1}$ et peuvent être estimés en utilisant deux approches différentes.

La première approche intègre les estimations du facteur d'émission standard pour chacune des espèces composant l'écosystème considéré. Ce facteur d'émission standard, pour chaque espèce de plante, est estimé en utilisant les méthodes de mesure en enclos : des feuilles ou des branches sont placées dans un sac ou une cuvette et les émissions sont estimées par un calcul d'équilibre de masse. Le facteur d'émission standard est déterminé en divisant le taux d'émission par la quantité de feuillage et par le facteur d'activité. Le facteur d'émission standard de l'écosystème est alors la moyenne pondérée des facteurs d'émission standard associés à chacune des espèces végétales. A titre d'illustration, le Tableau 2.1 donne les facteurs d'émission standard pour l'isoprène et pour les monoterpènes pour des plantes d'Amérique du Nord et d'Europe, basés sur les travaux de *Guenther et al.* (1994); *Simpson et al.* (1995); *Kesselmeier et al.* (1996).

TAB. 2.1: Facteurs d'émission standard pour l'isoprène et les monoterpènes pour la végétation commune d'Amérique du Nord et d'Europe^a.

Genus	Nom commun	Isoprene^b	Monoterpènes^b
<i>Quercus</i>	Chênes de l'Europe du Nord	70	0.2
<i>Quercus</i>	Chênes en Méditerranée	0	20
<i>Quercus</i>	Chênes d'Amérique du Nord	70	0.2
<i>Picea</i>	Epicéas (ou épinettes) de Sitka	10	3
<i>Picea</i>	Sapins (Epicéas) communs de Norvège	2	3
<i>Abies</i>	Sapins d'Amérique du Nord	0	3
<i>Fagus</i>	Bouleaux d'Amérique de Nord	0	0.6
<i>Juniperus</i>	Genévriers d'Amérique du Nord	0	0.6
<i>Liquidambar</i>	Copalmes d'Amérique	70	3
<i>Pinus</i>	Pins d'Amérique du Nord	0	3
<i>Populus</i>	Peupliers, Trembles	70	0
<i>Ulmus</i>	Ormes	0	0

^aBasés sur les travaux de *Guenther et al.* (1994), *Simpson et al.* (1995) et *Kesselmeier et al.* (1996).

^bValeurs en $\mu\text{g C g}^{-1} \text{h}^{-1}$ dans les conditions environnementales, au niveau de la feuille, de température : 30°C (303.15 K) et de lumière (PAR) : 1000 $\mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$.

L'incertitude associée à la plupart des études de mesure en enclos ne peut être évaluée à partir des informations publiées. Il en résulte qu'il est très difficile de combiner les facteurs d'émission standard de diverses études dans une seule base de données détaillée et complète.

La seconde approche utilise les techniques micrométéorologiques (Cf. Chapitre 3) ou de modélisation inverse (*Guenther et al.*, 1996) pour estimer directement les taux d'émission, à partir desquels les facteurs d'émission standard moyens par écosystème peuvent être estimés si la densité foliaire et le facteur d'activité sont connus.

Les deux approches sont utilisées pour estimer les facteurs d'émission standard qui sont associés aux types de végétation ou d'écosystème contenus dans les bases de données régionales et globales d'écosystème. Par exemple, la base de données globales des écosystèmes à une résolution de 0.5° établie par *Olson* (1992) comprend environ 60 biomes². On peut encore mentionner *Loveland et al.* (1991) qui a développé une base de donnée des écosystèmes à une résolution de 1 km pour l'Amérique du Nord, basée sur des données par satellite et qui comprend plusieurs centaines de types d'écosystèmes. Cet effort a été étendu pour inclure tous les continents et constitue une avancée potentiellement significative pour la modélisation des émissions biogéniques à échelle globale (*Guenther* (1999)).

2.2.3 Le facteur d'activité (γ)

L'isoprène

De nombreux facteurs influencent les taux d'émission d'isoprène. Des études ont corrélé les variations à long terme et à court terme des émissions d'isoprène avec l'activité de l'« isoprène synthase », enzyme responsable de la biosynthèse de l'isoprène (*Kuzma et Fall*, 1993; *Monson et al.*, 1992). Les variations d'humidité, de concentration de CO₂ et de la conductance stomatique (Cf. ci-dessous) jouent un rôle mineur dans le contrôle des variations à court terme des émissions d'isoprène (*Guenther et al.*, 1991; *Fall et Monson*, 1992). Le flux de PAR (rayonnement actif pour la photosynthèse) et la température de la feuille ont longtemps été reconnus comme facteurs importants dans le contrôle des émissions d'isoprène à partir du feuillage. Différents travaux ont été menés pour essayer de modéliser les taux d'émission d'isoprène. Les tout premiers efforts de modélisation, incluant les travaux de *Zimmerman* (1979); *Lamb et al.* (1987), ont supposé une croissance exponentielle des émissions avec la température et ont considéré que l'isoprène était émis seulement durant le jour. D'autres auteurs ont aussi mis en évidence l'influence de la température sur les émissions d'isoprène et ont tenté de les modéliser (*Tingey et al.*, 1979; *Tingey*, 1981; *Evans et al.*, 1985; *Chameides et al.*, 1988; *Pierce et Waldruff*, 1991b; *Guenther et al.*, 1991, 1993). Les études de *Lamb et al.* (1993) incluent des méthodes pour calculer, toutes les heures, l'intensité de la lumière basée sur les angles d'élévation solaire et sur la couverture nuageuse. Ces études incluent également un modèle simple de l'environnement de la canopée pour le

²Cf. Chapitre 5 pour plus de détails sur cette base de données.

calcul de la température de la feuille et des variations de la lumière avec la profondeur de la canopée. Dans les sections suivantes, nous décrirons un nouveau modèle détaillé de l'environnement de la canopée permettant de calculer le transfert du rayonnement solaire et la température de la feuille dans la canopée.

Guenther et al. (1993); *Guenther* (1997) ont développé des algorithmes numériques qui simulent les dépendances en lumière (C_L) et en température (C_T) des émissions d'isoprène par différents types de végétation.

L'influence de la lumière sur l'activité des émissions est estimée comme

$$C_L = \frac{\alpha C_{L1} Q_{PAR}}{\sqrt{1 + \alpha^2 Q_{PAR}^2}} \quad (2.2)$$

où

α (=0.0027) et C_{L1} (=1.066) sont des coefficients empiriques et, Q_{PAR} [$\mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$] est le flux de PAR³ (ou éclaircissement visible).

Les variations des émissions d'isoprène avec la température sont estimées comme

$$C_T = \frac{\exp\left(C_{T1} \frac{(T_f - T_s)}{RT_f T_s}\right)}{C_{T3} + \exp\left(C_{T2} \frac{(T_f - T_M)}{RT_f T_s}\right)} \quad (2.3)$$

où

C_{T1} (=95000 J mol⁻¹), C_{T2} (=230000 J mol⁻¹), C_{T3} (=1 (*Guenther et al.*, 1993) et =0.961 (*Guenther*, 1997)) et T_M (=314 K) sont des coefficients empiriques,

T_f [K] est la température de la feuille,

T_s [K] est la température de la feuille dans les conditions standard (=30°C ou 303.15 K) et

R (=8.31 J K⁻¹ mol⁻¹) est la constante universelle des gaz parfaits.

La relation entre l'émission et le flux de PAR et la température est illustrée à la Figure 1.6.

Le facteur d'activité est alors :

$$\gamma = C_L C_T \quad (2.4)$$

Les algorithmes se référant à *Guenther et al.* (1993) seront notés « G93 » et ceux à *Guenther* (1997) « G97 ».

L'âge de la feuille, son contenu en azote ou en eau et d'autres facteurs peuvent aussi influencer les émissions d'isoprène. Ces processus sont particulièrement importants pour déterminer des variations d'un jour à l'autre des émissions. Les recherches sur ces processus ont fourni certaines indications sur la régulation des taux d'émission d'isoprène mais n'ont pas encore abouti à des algorithmes numériques fiables qui pourraient être utilisés pour décrire les variations saisonnières des émissions. Plusieurs chercheurs (*Monson et al.*, 1994; *Kempf et al.*, 1996) ont observé que les variations

³Cf. Annexe B

du facteur d'activité et de la quantité de feuillage ne peuvent expliquer entièrement les variations rapides observées au printemps et en automne. Certains auteurs (*Guenther et al.*, 1999; *Pétron*, 1998; *Pétron et al.*, 2001) ont essayé de déterminer des algorithmes d'émission tenant compte de divers autres facteurs d'activité pour des écosystèmes bien précis. Ces algorithmes sont difficilement utilisables pour d'autres écosystèmes.

Les monoterpènes

Les émissions par le feuillage représentent environ 90% du taux annuel global d'émission de monoterpènes. Les variations à court terme des émissions de monoterpènes ont été attribuées aux changements de la température de la feuille (*Dement et al.*, 1975; *Tingey*, 1981; *Juuti et al.*, 1990; *Guenther et al.*, 1991, 1993), de l'humidité relative de l'air (*Dement et al.*, 1975), du contenu en eau des feuilles (*Lamb et al.*, 1985) et de l'intensité lumineuse (*Steinbrecher et al.*, 1988). Le rôle de l'humidité relative et du contenu en eau des feuilles dans le contrôle des variations à court terme des émissions de monoterpènes n'est pas clair et aucune description quantitative des relations entre les émissions de monoterpènes et ces variables environnementales n'est disponible. Dans certains cas, les émissions de monoterpènes peuvent être limitées par une production enzymatique qui dépend de la lumière (*Loreto et al.*, 1996a) et le facteur d'activité décrit précédemment pour les émissions d'isoprène peut être appliqué (*Kesselmeier et al.*, 1996). Dans la plupart des cas, les monoterpènes sont émis à partir de réservoirs de stockage. Les émissions dépendent de ces quantités stockées, de la volatilité de ces composés, de leur diffusion (en phase gazeuse) dans l'air ambiant à travers les stomates et des conditions environnementales (*Tingey et al.*, 1991; *Lerdau*, 1991). Le facteur d'émission est lié à la taille des réservoirs de stockage, qui est contrôlée par plusieurs facteurs, incluant la génétique, les conditions de croissance et les blessures. Le facteur d'activité, γ , consiste en une exponentielle croissante des émissions avec la température (*Tingey et al.*, 1980) :

$$\gamma = \exp(\beta[T_f - T_s]) \quad (2.5)$$

où T_f est la température de la feuille [K]. *Guenther et al.* (1993) ont rassemblé les estimations empiriques du coefficient β et recommandent la valeur de 0.09 K^{-1} . L'algorithme utilisé ici, en référence à *Guenther et al.* (1993), sera noté « G93 ».

Les autres composés organiques volatils

L'estimation des émissions des autres composés organiques volatils (VOC) est difficile étant donné que les processus biologiques responsables de leur production et de leur émission sont encore mal connus. Une des raisons à cela est que nombre de ces composés sont difficiles à identifier et à quantifier. Une autre raison est que les modèles photochimiques n'incluent pas les mécanismes de réaction pour ces composés et donc la demande des estimations des émissions des autres composés organiques s'est faite moins pressante. Le facteur d'activité γ utilisé pour les estimations des émissions de

monoterpènes (équation 2.5) est utilisé pour calculer les émissions des autres composés organiques.

2.3 Description du modèle de canopée

Les émissions de composés organiques volatils biogéniques au-dessus d'une canopée (feuillage d'un type de végétation ou d'un écosystème) seront calculées à l'aide de l'équation 2.1. Etant donnée la dépendance en lumière et en température des émissions, il est évident que des feuilles qui sont directement exposées au soleil émettent davantage de composés organiques volatils biogéniques que celles situées à l'ombre. De manière à représenter le mieux possible les quantités émises par une canopée, un modèle détaillé (« MOHYCAN » : MOdèle pour le calcul des émissions des HYdrocarbures par la CANopée) représentant l'environnement de la canopée a été développé. Ce modèle permet, en différents endroits de la canopée, de déterminer les différents paramètres de l'équation 2.1 (la densité foliaire D_f , le facteur d'émission standard ε , la température de la feuille et le PAR pour le facteur d'activité γ) nécessaires au calcul des flux d'émission des composés organiques biogéniques. Dans la suite de ce chapitre, nous décrirons ce modèle de canopée, les équations régissant le calcul de l'intensité lumineuse et la détermination de la température de la feuille dans la canopée.

La hauteur de la canopée est divisée en plusieurs couches. Le nombre de couches dépend de l'échelle spatiale considérée. Pour une échelle locale, comme par exemple la situation d'un site de mesure (Cf. à cet effet le Chapitre 3), on préférera un grand nombre de couches, ce qui permettra un calcul plus détaillé. Par contre, pour établir un inventaire global des flux d'émission de composés organiques volatils biogéniques, le temps de calcul devient une contrainte et il faudra déterminer le nombre minimal de couches qui garantisse une précision suffisante sur le calcul des flux d'émission (Cf. Chapitre 5).

Un écosystème terrestre ou un biome est une combinaison de différents types de végétation. Pour chaque type de végétation, le modèle de canopée peut être appliqué. Pour déterminer les flux d'émission de l'écosystème entier, il suffit alors de recombinaison les flux d'émission obtenus pour chacun des types de végétation. Sept types de végétation sont utilisés pour construire un écosystème donné et sont :

1. les résineux sempervirents,
2. les résineux à aiguilles caduques,
3. les feuillus sempervirents,
4. les feuillus à feuilles caduques,
5. les broussailles,
6. les herbes et
7. les cultures.

Considérons un type de végétation et désignons par n le nombre de couches sur la hauteur de la canopée. La Figure 2.1 illustre schématiquement la division en couches de la canopée et les rayonnements incidents au-dessus de la canopée.

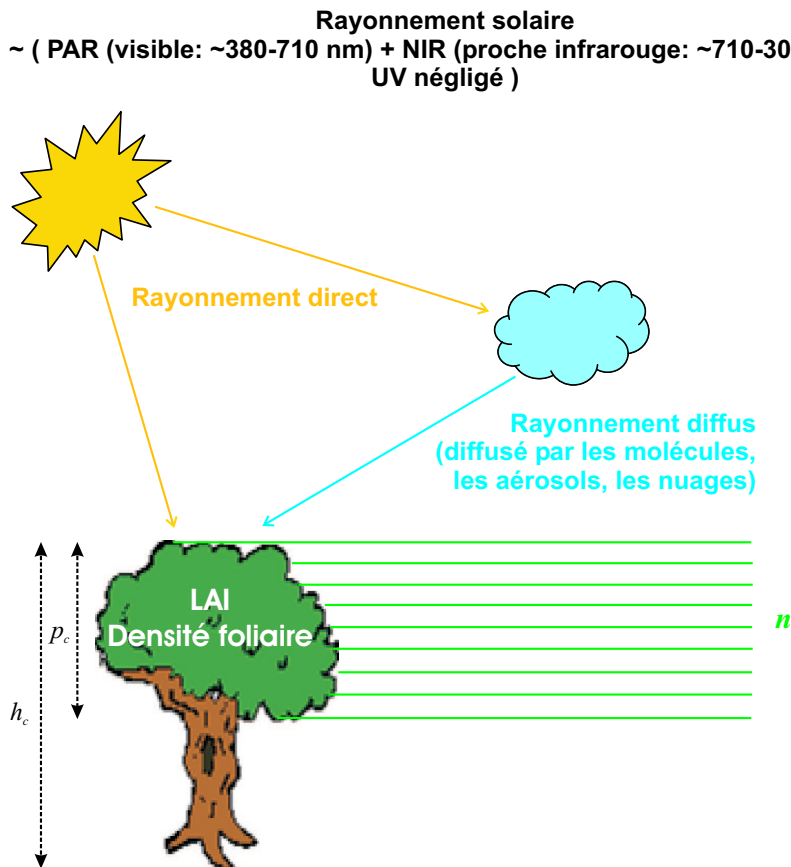


FIG. 2.1: Schéma représentant la canopée : les rayonnements incidents ainsi que la division en couches utilisée dans le modèle MOHYCAN : n est le nombre de couches dans le modèle de canopée, h_c est la hauteur totale de la canopée et p_c est sa profondeur (c-à-d la distance depuis le sommet de la canopée jusqu'à sa base). L'Annexe C donne les valeurs par défaut de ces paramètres pour chaque type de végétation du modèle.

2.3.1 Le transfert du rayonnement solaire dans la canopée

Le rayonnement solaire global est celui reçu sur une surface horizontale, en l'occurrence une feuille, dans un angle solide 2π . La mesure de ce rayonnement est appelée *éclairage* et est exprimée en $W m^{-2}$. Le rayonnement solaire est la somme de deux rayonnements distincts : (1) le rayonnement solaire direct est celui provenant de l'angle solide du disque solaire reçu sur une surface perpendiculaire à l'axe de l'angle solide et (2) le rayonnement solaire diffus est celui reçu sur une surface horizontale dans un angle

solide 2π à l'exception de l'angle solide sous-tendu par le disque solaire. Le rayonnement solaire direct diffère donc du rayonnement solaire diffus car le premier vient d'une seule direction tandis que le second est dispersé dans toutes les directions. Le rayonnement solaire diffus peut encore être séparé en deux composantes : (1) le rayonnement solaire diffusé par l'atmosphère, plus particulièrement par les constituants gazeux, les nuages et les aérosols (noté « diffus_a ») et (2) le rayonnement solaire réfléchi ou transmis par n'importe quelle surface, en particulier, par les feuilles (noté « diffus_f »).

L'énergie du rayonnement solaire est comprise à 99% dans l'intervalle, appelé rayonnement solaire,

$$0.250 < \lambda < 4 \mu\text{m}$$

où elle se distribue, d'après *Quinet (1997); Iqbal (1983)*, comme suit :

4 ^a -9 ^b %	dans l'UV	0.250 < λ < 0.380-0.400 μm
45 ^a -55 ^b %	dans le visible (VIS ou PAR)	0.380-0.400 < λ < 0.760-0.770 μm
51 ^a -36 ^b %	dans le NIR	0.760-0.770 < λ < 4 μm

^aCiel clair

^bCiel nuageux

Signalons que la limite entre le visible et le proche infrarouge est prise à $\sim 0.700 \mu\text{m}$ par certains auteurs (*Goudriaan et van Laar, 1994; Salisbury, 1996*). Dans la suite de notre travail, nous négligerons le rayonnement UV et nous adoptons la définition du PAR de *Goudriaan et van Laar (1994); Salisbury (1996)*, à savoir des longueurs d'onde comprises entre ~ 0.400 et $\sim 0.700 \mu\text{m}$. Nous supposons également le PAR comme étant égal à la partie visible du rayonnement solaire.

Le rayonnement solaire, source d'énergie lumineuse, arrive au sommet de la canopée et est intercepté par cette dernière selon une loi exponentielle similaire à la loi de Beer-Lambert (*Ross, 1975; Waggoner, 1975; Norman, 1979; Campbell, 1981; Goudriaan et van Laar, 1994; Leuning et al., 1995; Larcher, 1995*).

Chaque composante PAR et NIR est déterminée séparément en chaque couche j de la canopée pour une feuille au soleil et pour une feuille à l'ombre. La théorie qui a permis de développer le modèle MOHYCAN est basée sur l'étude de l'interception et de la diffusion du rayonnement par une canopée (*Goudriaan, 1977; Ross, 1975, 1981; Weiss et Norman, 1985; Goudriaan et van Laar, 1994; Leuning et al., 1995*).

Considérons une canopée constituée de feuilles individuelles, surplombant le sol. Le théorème sera décrite en plusieurs étapes. D'abord les feuilles seront supposées horizontales et noires pour éviter les complications dues à la réflexion et à la transmission des feuilles. Ensuite, ces contraintes seront relâchées une à une pour considérer le cas général des feuilles non horizontales et pouvant réfléchir et transmettre le rayonnement solaire incident.

Feuilles noires et horizontales

La surface de la projection (par des rayons parallèles) d'une feuille horizontale sur le sol (supposé également horizontal) est toujours égale à sa propre surface, quelle que

soit la direction de la projection. Une couche de feuilles horizontales ne se recouvrant pas, de surface égale à ΔL_c (m_{feuille}^2 par m_{sol}^2), intercepte donc une fraction ΔL_c du rayonnement incident.

Pour un grand nombre de couches superposées de même épaisseur ($\Delta L_{c,i} = \Delta L_c$, avec $i = 1, n$), avec des feuilles disposées aléatoirement, la fraction transmise est $1 - \Delta L_c$, couche après couche :

$$\varphi \downarrow_n = \varphi \downarrow_0 (1 - \Delta L_c)^n \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.6)$$

où

$\varphi \downarrow_n$ [W m^{-2}] est le flux descendant après n couches et

$\varphi \downarrow_0$ [W m^{-2}] est le flux descendant au-dessus de la canopée.

Le flux descendant ($\varphi \downarrow$) peut aussi être exprimé en terme de quantité de surface de feuille présente au-dessus du niveau considéré. Cet indice de surface de feuille L_c est constitué de n couches de ΔL_c chacune et donc, L_c est égal à $n\Delta L_c$. Si on remplace n dans l'équation 2.6 par le rapport $L_c/\Delta L_c$, on a

$$\varphi \downarrow = \varphi \downarrow_0 (1 - \Delta L_c)^{L_c/\Delta L_c} \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.7)$$

Quand $\Delta L_c \ll 1$ (et le nombre de couches n devient très grand), cette expression tend vers :

$$\varphi \downarrow = \varphi \downarrow_0 \exp(-L_c) \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.8)$$

où L_c représente la surface de feuille au-dessus du niveau considéré et varie entre 0 et L_t , la LAI totale (indice de surface de feuille⁴). Dès lors, L_c est la LAI cumulée depuis le sommet de la canopée jusqu'au niveau considéré et le rayonnement qui atteint le sol peut être obtenu en substituant la valeur de la LAI totale, L_t , dans l'équation 2.8.

Feuilles noires mais non nécessairement horizontales

Supposons maintenant que les feuilles possèdent toutes les orientations possibles. Dans cette situation, la surface de l'ombre projetée par la feuille sur la surface du sol n'est généralement pas égale à la surface de la feuille elle-même, ce qui signifie qu'une fraction du rayonnement intercepté par une couche de surface de feuille ΔL_c n'est plus égale à ΔL_c mais est proportionnelle à celle-ci. Le facteur de proportionnalité, κ , dépend de la direction du rayonnement et de l'orientation des feuilles. Dans le cas du rayonnement direct (une seule direction) et pour une orientation homogène des feuilles dans la

⁴Cf. Annexe B.

canopée, la fraction du rayonnement interceptée reste la même, couche après couche et vaut :

$$\varphi \downarrow = \varphi \downarrow_0 (1 - \kappa \Delta L_c)^{L_c / \Delta L_c} \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.9)$$

conduisant à

$$\varphi \downarrow = \varphi \downarrow_0 \exp(-\kappa L_c) \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.10)$$

Cette équation de décroissance exponentielle est aussi la solution de l'équation différentielle en $\varphi \downarrow$:

$$\frac{d\varphi \downarrow}{dL_c} = -\kappa \varphi \downarrow \quad [\text{W m}_{\text{feuille}}^{-2}] \quad (2.11)$$

Le coefficient κ est habituellement appelé *coefficient d'extinction*.

La valeur de κ dépend de l'orientation des feuilles et de la direction du rayonnement incident (Figure 2.2). Il est possible de calculer la valeur de ce coefficient pour différentes orientations des feuilles. L'approche la plus détaillée utilise des modèles numériques (Goudriaan, 1977; Ross, 1981; Goudriaan et van Laar, 1994; Leuning et al., 1995). De tels modèles requièrent une connaissance détaillée de l'architecture de la canopée, qui n'est généralement pas disponible. Dans ce travail, nous supposons une orientation sphérique (ou isotrope), la plus utilisée des distributions angulaires de feuille. Dans cette distribution, les feuilles n'ont pas d'orientation privilégiée, en d'autres termes, les éléments de surface de feuille ont la même distribution que ceux d'une sphère. Dans ce cas et pour un angle d'élévation solaire β_s du rayonnement direct, la valeur du coefficient κ n'est plus égale à 1 comme dans le cas des feuilles horizontales mais vaut :

$$\kappa = \frac{G}{\sin \beta_s} \quad (2.12)$$

où G est la fonction de l'orientation des feuilles (Wang et Baldocchi, 1989). Dans le cas d'une distribution sphérique,

$$G = 0.5 \quad (2.13)$$

Dans le cas du rayonnement diffus, toutes les directions de la lumière sont présentes et chacune sera interceptée à un taux différent. Le rayonnement incident sous un angle β_s faible sera intercepté presque immédiatement au sommet de la canopée tandis qu'un rayonnement vertical incident pénétrera plus profondément dans la canopée. La valeur du coefficient d'extinction κ , dans le cas du rayonnement diffus, peut être approchée à partir d'un ensemble de coefficients κ différents associés à un ensemble de profils du rayonnement sous des angles d'élévation solaire différents. La valeur moyenne obtenue vaut 0.8.

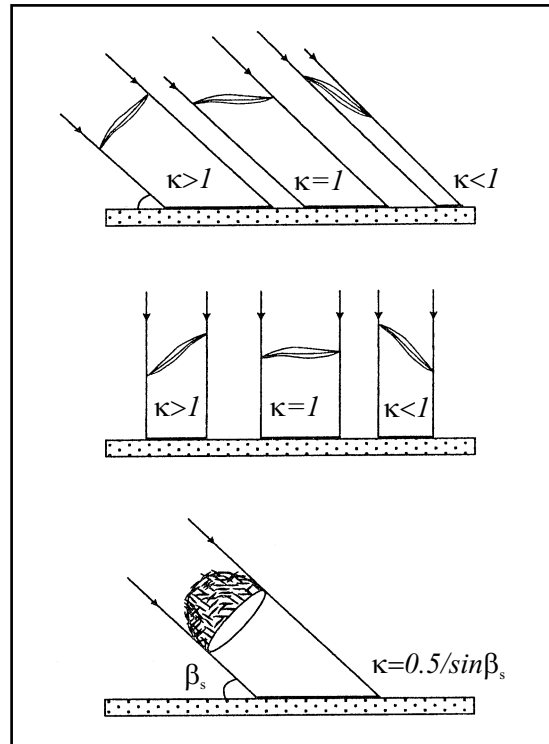


FIG. 2.2: L'interception du rayonnement est affectée par l'orientation de la feuille, mais de différente façon selon l'angle d'élévation solaire β_s : $\beta_s = 90^\circ$ (au milieu), $\beta_s < 90^\circ$ (en haut). Pour une distribution angulaire sphérique des feuilles (en bas), $\kappa = 0.5 / \sin \beta_s$.

Feuilles horizontales mais non noires

Lorsque les feuilles ne sont pas noires, du rayonnement peut être transmis et additionné au flux descendant. Dès lors, le rayonnement peut pénétrer plus profondément dans la canopée et le coefficient d'extinction sera plus petit que 1 (valeur de κ pour des feuilles noires et horizontales). De plus, le rayonnement peut être réfléchi (vers le haut). Donc, à côté du flux descendant ($\varphi \downarrow$), le flux ascendant ($\varphi \uparrow$) doit être introduit. Nous supposons que le feuillage est suffisamment dense pour pouvoir négliger l'influence du sol sur le flux ascendant ($\varphi \uparrow$). Nous appellerons diffusion du rayonnement par les feuilles, la réflexion et la transmission du rayonnement par les feuilles. La solution générale, pour n couches, peut être obtenue en résolvant l'ensemble d'équations différentielles des flux descendant et ascendant. Notons les flux descendant et ascendant au niveau de la couche j par $\varphi \downarrow (j)$ et $\varphi \uparrow (j)$ respectivement (Figure 2.3), le coefficient de réflexion de la feuille par ρ_f et le coefficient de transmission de la feuille par τ_f . Les équations pour les rayonnements descendant et ascendant à la $j^{\text{ième}}$ couche s'écrivent :

$$\varphi \downarrow (j) = (1 - \Delta L_c) \varphi \downarrow (j - 1) + \Delta L_c (\tau_f \varphi \downarrow (j - 1) + \rho_f \varphi \uparrow (j)) \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.14a)$$

$$\varphi \uparrow (j) = (1 - \Delta L_c) \varphi \uparrow (j + 1) + \Delta L_c (\rho_f \varphi \downarrow (j) + \tau_f \varphi \uparrow (j + 1)) \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.14b)$$

Dans ces équations, le premier terme $(1 - \Delta L_c)$ décrit la transmission à travers l'espace entre les feuilles, tandis que le terme avec τ_f décrit la transmission à travers la feuille elle-même. Le dernier terme (avec ρ_f) décrit la réflexion par les feuilles.

Pour trouver la solution de ce système d'équations, nous supposons que pour chaque couche, les flux descendant et ascendant sont réduits par le même facteur M (indépendant de j). Ecrivons alors :

$$\varphi \downarrow (j + 1) = M \varphi \downarrow (j) \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.15a)$$

$$\varphi \uparrow (j + 1) = M \varphi \uparrow (j) \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.15b)$$

La méthode est considérablement simplifiée en supposant que $\tau_f = \rho_f$. D'un point de vue physique, c'est une bonne approximation. La somme des coefficients de réflexion et de transmission est appelée le coefficient de diffusion de la feuille et est noté σ_f . En combinant les équations 2.14 et 2.15, nous trouvons le rapport ρ_{can} du flux ascendant au flux descendant :

$$\rho_{can} = \frac{\varphi \uparrow (j)}{\varphi \downarrow (j)} = \frac{(M - 1 + \Delta L_c)}{(1 - M(1 - \Delta L_c))} \quad (2.16)$$

L'hypothèse d'un facteur de réduction constant M (indépendant de j) est équivalente à l'hypothèse d'une extinction exponentielle. Le coefficient d'extinction κ est lié à M par :

$$M = \exp(-\kappa \Delta L_c) \quad (2.17)$$

Pour des petites valeurs de ΔL_c , cette expression tend vers :

$$M = 1 - \kappa \Delta L_c \quad (2.18)$$

En combinant cette équation avec les équations 2.16, 2.14 et 2.15 et si la simplification $\tau_f = \rho_f = 0.5 \sigma_f$ est utilisée, alors nous obtenons :

$$\kappa = \sqrt{1 - \sigma_f} \quad (2.19)$$

L'expression pour κ peut être substituée dans l'équation 2.18 et ensuite dans l'équation 2.16. Le rapport du flux ascendant au flux descendant est indépendant de j et représente le coefficient de réflexion de la canopée ρ_{can} . Il peut alors être écrit comme :

$$\rho_{can} = \frac{(1 - \sqrt{1 - \sigma_f})}{(1 + \sqrt{1 - \sigma_f})} \quad (2.20)$$

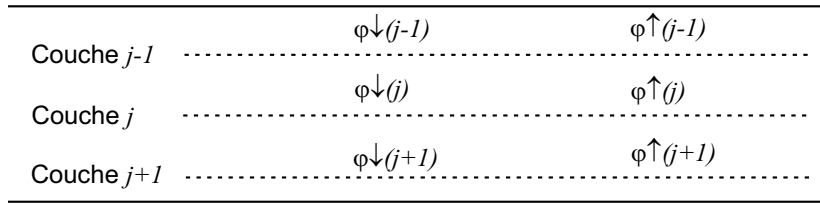


FIG. 2.3: Schéma représentant la géométrie des couches pour le calcul des flux descendant et ascendant du rayonnement solaire (*Goudriaan et van Laar, 1994*).

Supposons maintenant que $\tau_f \neq \rho_f$. Pour des petites valeurs de ΔL_c , les coefficients d'extinction (κ) et de réflexion de la canopée (ρ_{can}) sont donnés par (*Goudriaan et van Laar, 1994*) :

$$\kappa = \sqrt{(1 - \tau_f)^2 - (\rho_f)^2} \quad (2.21)$$

$$\rho_{can} = \frac{(1 - \tau_f - \kappa)}{\rho_f} \quad (2.22)$$

Feuilles non noires et non nécessairement horizontales

Dans cette situation générale, les feuilles ne sont pas limitées à la position horizontale et peuvent transmettre et réfléchir le rayonnement incident. L'extinction du rayonnement ne suit plus strictement une loi exponentielle. Cependant, les modèles numériques (*Goudriaan, 1977; Ross, 1981*) montrent que le coefficient d'extinction apparent κ est raisonnablement approché par

$$\kappa = \kappa_{noire} \sqrt{1 - \sigma_f} \quad (2.23)$$

où κ_{noire} est le coefficient d'extinction pour les feuilles noires. κ_{noire} est donné par l'équation 2.12 dans le cas du rayonnement direct et κ_{noire} vaut 0.8 dans le cas du rayonnement diffus.

Les coefficients κ_{noire} et ρ_{can} dépendent de l'angle d'incidence du rayonnement. Lorsque celui-ci vient d'une direction verticale, il pénètre plus profondément et peu de rayonnement diffusé par les feuilles s'échappe de la canopée. Le coefficient de réflexion qui en résulte est plus petit que celui pour un rayonnement incident avec un angle d'incidence proche de l'horizon. Une expression précise de ce coefficient ρ_{can} n'est pas possible mais une approximation raisonnable, pour une distribution sphérique et pour le rayonnement direct, est donnée par (*Goudriaan, 1977; Leuning et al., 1995*) :

$$\rho_{can,spher,dir} = 1 - \exp \left[\frac{-2 \rho_{can,horiz} \kappa_{noire,dir}}{(1 + \kappa_{noire,dir})} \right] \quad (2.24)$$

où

$\kappa_{noire,dir}$ est le coefficient d'extinction pour des feuilles noires et pour le rayonnement direct,

$\rho_{can,horiz}$ est le coefficient de réflexion de la canopée en accord avec l'équation 2.20. Pour le rayonnement diffus, on aura :

$$\rho_{can,spher,dif} = \frac{2}{1 + 1.6 \sin \beta_s} \rho_{can,horiz} \quad (2.25)$$

Les valeurs typiques utilisées dans le modèle MOHYCAN sont données au Tableau 2.2 et à l'Annexe C.

TAB. 2.2: Valeurs typiques des coefficients d'extinction (κ) et de réflexion (ρ_{can}) pour le rayonnement diffus.

	<i>Feuilles noires</i>	<i>Feuilles non-noires</i>	
		<i>PAR</i>	<i>NIR</i>
$\kappa_{spher,dif}$	0.8	0.715	0.358
$\rho_{can,spher,dif}$	0	0.057	0.389

Distribution spectrale des feuilles

Les coefficients de réflexion et de transmission possèdent une dépendance remarquablement semblable avec la longueur d'onde (Figure 2.4). Comme il est montré sur cette figure, le proche infrarouge est beaucoup plus aisément transmis et réfléchi par les feuilles que le rayonnement visible (400-700 nm).

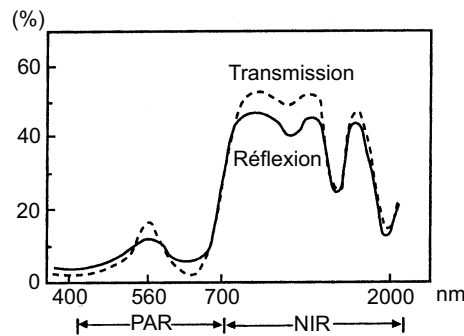


FIG. 2.4: Dépendance spectrale typique des coefficients de réflexion et de transmission d'une feuille verte, supposée en bonne santé (Goudriaan et van Laar, 1994).

Le coefficient de diffusion, σ_f , dans le visible vaut environ 0.2 (10% pour la réflexion et 10% pour la transmission), contre environ 0.8 (40% pour la réflexion et 40% pour la transmission) dans le proche infrarouge. Le Tableau 2.2 donne les valeurs des coefficients d'extinction et de réflexion de la canopée.

« Clustering »

Le phénomène de « clustering » se produit lorsque les feuilles se regroupent pour former des amas. Dans ces conditions, les feuilles se font de l'ombre les unes aux autres dans cet amas (« cluster »). Expérimentalement, la valeur du coefficient d'extinction est déterminée comme étant plus faible que la valeur théorique. Un facteur correctif, nommé facteur de « cluster⁵ », multiplie le coefficient d'extinction κ pour tenir compte de ce phénomène.

Distribution de l'absorption de la lumière sur une canopée de feuilles

La lumière est un paramètre indispensable dans le calcul des émissions de composés organiques volatils biogéniques ; non seulement pour la dépendance directe des émissions au rayonnement actif pour la photosynthèse (PAR) mais aussi pour la détermination de la température de la feuille (équations 2.1, 2.2, 2.3, 2.4 et 2.5) qui dépend de la quantité totale absorbée du rayonnement solaire (PAR+NIR). Il y a deux sources principales d'inégalité d'illumination des feuilles : (1) l'extinction graduelle du rayonnement avec la profondeur de la canopée et (2) la présence de feuilles au soleil et des feuilles à l'ombre.

La Figure 2.5 illustre les différentes composantes du rayonnement solaire tombant sur une feuille. Distinguons les feuilles au soleil et les feuilles à l'ombre. Seules les feuilles au soleil reçoivent du rayonnement solaire direct.

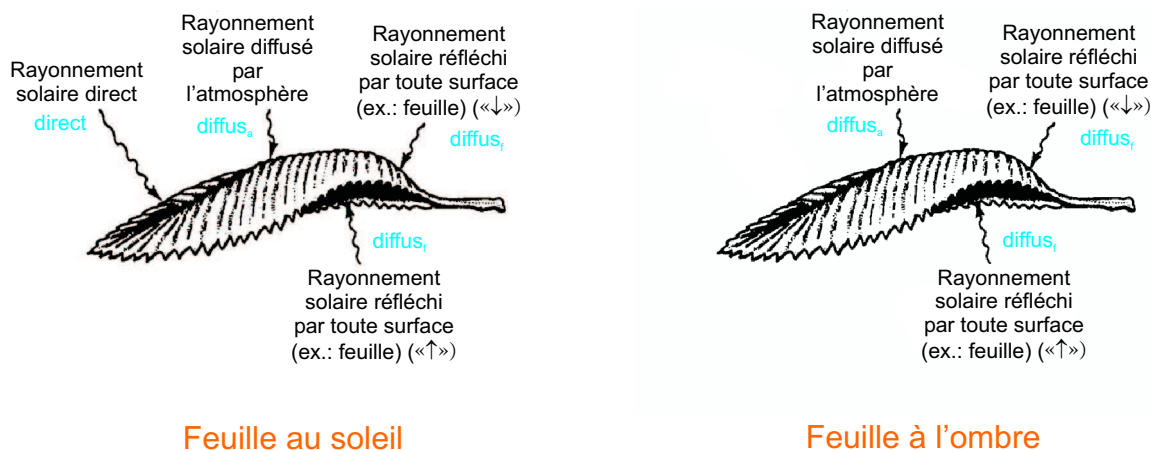


FIG. 2.5: Les différentes composantes du rayonnement solaire éclairant une feuille au soleil et une feuille à l'ombre (Shaw et Decker, 1979).

La Figure 2.6 schématise le modèle de canopée. Dans chaque couche, on va calculer l'éclairement énergétique par unité de surface pour les composantes visible (PAR) et proche infrarouge (NIR) du rayonnement solaire tombant sur une feuille au soleil et sur une feuille à l'ombre.

⁵Cf. Annexe C pour les valeurs du facteur de cluster adoptées dans MOHYCAN.

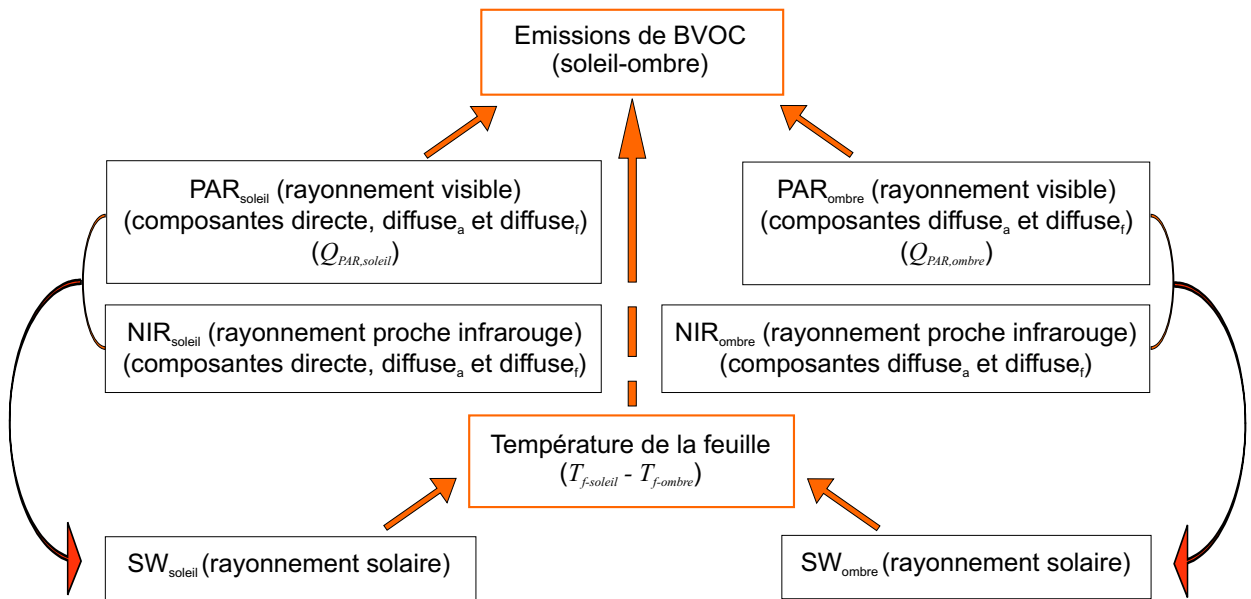


Fig. 2.6: Schéma représentant les différentes composantes du modèle de canopée MOHYCAN.

Les fractions directe et diffuse au sommet de la canopée du rayonnement solaire sont déterminées à l'aide d'un modèle qui calcule le transfert radiatif depuis le sommet de l'atmosphère jusqu'à la surface terrestre, dit modèle « 2-Stream ». Il est basé sur le modèle de calcul de photolyse de *Madronich et Flocke* (1998), lui-même basé sur l'approximation « delta-Eddington » développée par *Joseph et al.* (1976). Le modèle 2-Stream compte 71 niveaux dans la verticale et 130 intervalles spectraux. Il a été utilisé pour calculer l'éclairement visible (PAR) à la surface terrestre ainsi que les fractions diffuses dans le visible (PAR) et le NIR pour toute une série d'angles zénithaux et d'épaisseurs optiques des nuages. Les nuages sont supposés s'étendre entre 2 et 6 km d'altitude, avec un albédo de simple diffusion et un paramètre d'asymétrie égaux à 1 et 0.86, respectivement (*Chang et al.*, 1987; *Müller*, 1993). Afin de déterminer l'épaisseur optique nuageuse à partir d'une mesure de l'éclairement visible (PAR), celle-ci est comparée aux valeurs modélisées pour l'angle zénithal de la mesure et pour différentes épaisseurs optiques nuageuses. Les fractions diffuses sont alors déduites de cette épaisseur optique. La couverture nuageuse (entre 0 et 1) est calculée simplement en divisant l'épaisseur optique ainsi déterminée par l'épaisseur optique maximale qui a été fixée à 20 dans notre étude.

Le rayonnement diffus (diffusé par l'atmosphère)

Comme exposé précédemment, la dépendance du rayonnement à la profondeur de la canopée (exprimée en surface de feuille cumulée (LAI cumulée (L_c)) est pratiquement exponentielle, à la fois pour le flux ascendant et le flux descendant, respectivement $\varphi \uparrow$ et $\varphi \downarrow$. L'absorption du rayonnement par un couche ΔL_c est égale à la différence entre

les flux entrants et les flux sortants. L'absorption par unité de surface de feuille, Q_{dif} , est :

$$Q_{dif} = \kappa(\varphi \downarrow - \varphi \uparrow) \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.26)$$

ou, en combinant les équations 2.16 et 2.10,

$$Q_{dif} = \kappa\varphi \downarrow_{0,dif} (1 - \rho_{can}) \exp(-\kappa L_c) \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.27)$$

En fait, cette équation décrit l'extinction du rayonnement avec la profondeur de la canopée, que le rayonnement soit direct ou diffus. La distinction est signifiée en ajoutant l'indice « dif » ou « dir ». Le coefficient d'extinction pour le rayonnement diffus $\kappa_{spher,dif}$ est obtenu en utilisant l'équation 2.23, qui conduit à la valeur de 0.715 pour le visible (PAR). La valeur correspondante du coefficient de réflexion est calculée à l'aide de l'équation 2.25. Les mêmes équations s'appliquent à l'extinction du rayonnement proche infrarouge (NIR), avec les valeurs appropriées du coefficient de diffusion de la feuille. Il est à noter que ces valeurs doivent encore être corrigées pour tenir compte de l'effet de clustering. La canopée est divisée en n couches de même épaisseur mais d'indices de surface de feuille (LAI) différents. Les éclaircissements et les températures sont calculées à mi-hauteur de chaque couche. Des profils de LAI (Cf. Figure C.1) et des valeurs typiques de la LAI totale pour chacun des 7 types de végétation du modèle MOHYCAN sont donc utilisés pour déterminer la LAI cumulée (depuis le sommet de la canopée jusqu'à mi-hauteur de la couche) dans le calcul de l'extinction du rayonnement. L'Annexe C (Tableau C.1) présente les différentes valeurs des différents paramètres utilisés dans le modèle MOHYCAN.

Le rayonnement direct

Dans le cas du rayonnement direct, il existe non seulement une inégalité de distribution du rayonnement avec la profondeur de la canopée mais aussi, à chaque niveau, entre les feuilles au soleil et les feuilles à l'ombre. Comme les feuilles n'ont *a priori* pas de préférence pour une position au soleil ou à l'ombre, la fraction de surface de feuille au soleil, à chaque niveau, est égale à la fraction de lumière directe à ce même niveau. L'extinction du rayonnement direct est uniquement déterminée par l'interception ; la diffusion par les feuilles génère de la lumière diffuse uniquement. Dès lors, le coefficient d'extinction pour les feuilles noires (Eq.: 2.12) doit être utilisé pour déterminer la fraction de surface de feuille au soleil, f_{soleil} , à la profondeur L_c :

$$f_{soleil} = \exp(-\kappa_{noire,dir} L_c) \quad (2.28)$$

Les profils de la fraction de surface de feuille au soleil et du rayonnement direct ont une forme identique, puisqu'ils suivent une loi exponentielle avec le coefficient d'extinction $\kappa_{noire,dir}$.

La somme des flux du rayonnement direct et du rayonnement diffus (diffusé par les feuilles) s'atténue à un plus faible taux que le rayonnement direct seul. Nous avons vu

précédemment que le coefficient d'extinction pour le rayonnement total est donné par l'équation 2.23. La différence entre ces deux profils représente le rayonnement diffus généré par la diffusion par les feuilles. Ce rayonnement diffus est présent à la fois pour les feuilles au soleil et les feuilles à l'ombre. Nous calculons ce rayonnement comme suit. Le taux d'absorption total moyen à la profondeur L_c , moyenné sur les feuilles au soleil et les feuilles à l'ombre, est donné par :

$$\bar{Q} = \varphi \downarrow_{0,dir} (1 - \rho_{can}) \kappa \exp(-\kappa L_c) \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.29)$$

où

$\varphi \downarrow_{0,dir}$ est le flux descendant du rayonnement direct,
 κ est le coefficient d'extinction donné par l'équation 2.23 pour le rayonnement direct et
 ρ_{can} , le coefficient de réflexion de la canopée, pour le rayonnement direct, est donné par l'équation 2.24.

Cette absorption moyenne est la somme de l'absorption du rayonnement direct uniquement pour les feuilles au soleil et de l'absorption du rayonnement diffus pour les feuilles au soleil et à l'ombre. Le premier terme, le taux d'absorption du rayonnement direct des feuilles au soleil, est égal à :

$$Q_{soleil,dir} = \varphi \downarrow_{0,dir} (1 - \sigma_f) \kappa_{noire} \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.30)$$

\bar{Q} est plus grand que $f_{soleil} Q_{soleil,dir}$. La différence représente l'absorption du rayonnement diffusé par les feuilles.

Le rayonnement diffusé par l'atmosphère, décrit précédemment et donné par l'équation 2.27, s'ajoute au rayonnement diffusé par les feuilles. Ensemble, ils forment le rayonnement diffus total. L'absorption de ce rayonnement est donnée par :

$$Q_{total,dif} = Q_{dif,atm} + (\bar{Q} - (f_{soleil} Q_{soleil,dir})) \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.31)$$

où le premier terme $Q_{dif,atm}$ représente l'absorption du rayonnement diffusé par l'atmosphère et est donné par l'équation 2.27, et le second terme représente le rayonnement diffusé par les feuilles.

Pour les feuilles à l'ombre, cette équation suffit pour calculer les rayonnements, visible (PAR) et proche infrarouge (NIR), absorbés par ces feuilles. Leur contribution aux émissions de composés organiques volatils biogéniques, au niveau considéré, doit être multipliée par leur proportion présente à ce niveau, la fraction de feuilles à l'ombre f_{ombre} . Celle-ci est donnée par :

$$f_{ombre} = 1 - f_{soleil} \quad (2.32)$$

Pour les feuilles au soleil, il faut ajouter l'absorption du rayonnement direct (Eq.: 2.30) multipliée par la fraction de feuille au soleil f_{soleil} .

Pour déterminer le facteur C_L (Eq.: 2.2), les équations précédentes sont appliquées au rayonnement visible (PAR), en utilisant les valeurs appropriées des coefficients de réflexion ρ_f et de transmission τ_f par les feuilles pour déterminer la valeur du coefficient de diffusion σ_f . Dans l'expression de C_L , ce n'est pas la quantité de lumière absorbée qui doit être calculée mais la quantité de lumière arrivant sur les feuilles. Les équations précédentes doivent être corrigées par le facteur $(1 - \sigma_f)$.

Pour la détermination de la température de la feuille, les équations précédentes (Eq.: 2.27 à 2.32) sont appliquées aux rayonnements visible (PAR) et proche infrarouge (NIR) pour calculer le rayonnement solaire (PAR+NIR) total absorbé par une feuille au soleil ou par une feuille à l'ombre.

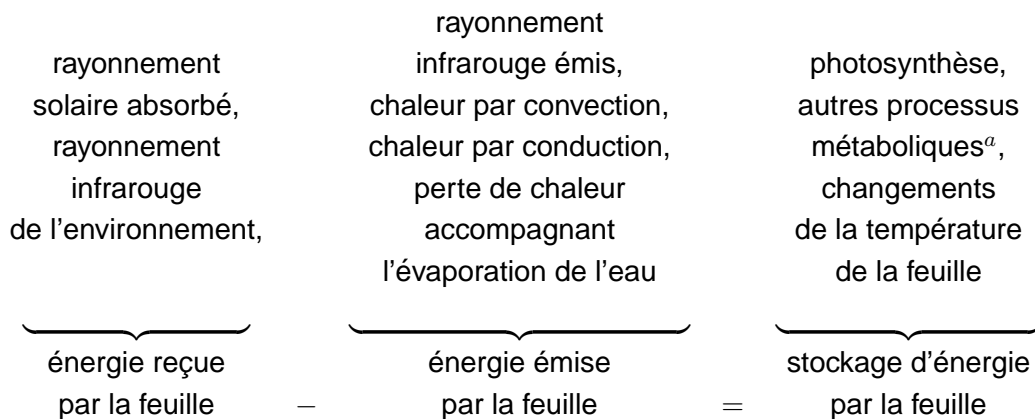
Dans la section suivante, nous déterminerons la température de la feuille, dans chaque couche, par équilibre d'énergie au niveau de la feuille.

2.3.2 Détermination de la température de la feuille dans la canopée

La température de la feuille est le second paramètre physique important dont dépendent les émissions de composés organiques volatils. Dans cette section, nous décrivons les différentes équations permettant de déterminer avec précision la température de la feuille à chaque niveau de la canopée. Cette détermination est basée sur un principe fondamental : l'équilibre d'énergie au niveau de la feuille (*Gates et Papias, 1971; Rauner, 1976; Dickinson, 1983; Gates, 1985; Goudriaan et van Laar, 1994; Leuning et al., 1995*). Le premier principe de la thermodynamique reconnaît que la chaleur est de l'énergie et que celle-ci se conserve au cours des transformations du système. Les sources et les pertes d'énergie (de chaleur) doivent donc être égales. Pour une feuille, cet équilibre est atteint par ajustement de sa température.

Une feuille verte de la canopée échange de l'énergie et des gaz avec son environnement. Si une feuille reçoit plus d'énergie qu'elle n'en consomme, elle chauffe. Par contre, si elle en perd plus qu'elle n'en reçoit, elle se refroidit. L'énergie est échangée entre la feuille et son environnement principalement par rayonnement, convection, conduction et transpiration (ou évaporation) de l'eau : la feuille utilise donc la plus grande partie du rayonnement solaire incident pour l'échange de chaleur et d'eau avec son environnement. Dans le contexte de l'énergie totale échangée, la perte ou le gain d'énergie via le métabolisme et la conduction à travers le pétiole de la feuille est petit comparée au total. La contribution de la respiration et de la photosynthèse au bilan de chaleur d'une feuille est généralement inférieure à 3% du total. D'autres mécanismes possibles d'échange de chaleur entre la feuille et son environnement, tels que les interactions avec des champs magnétiques, électriques ou gravitationnels, sont généralement négligeables.

Les différents termes de l'équilibre d'énergie d'une feuille sont les suivants :



^atels que la respiration ou la photorespiration

Les divers termes de cet équilibre diffèrent grandement. Les énergies de stockage sont relativement petites et seront négligées dans la suite de ce travail (*Gates et Papian, 1971; Nobel, 1983; Gates, 1985; Monteith et Unsworth, 1990; Goudriaan et van Laar, 1994*). Les échanges de chaleur par convection et par conduction des feuilles seront désignés par le terme de chaleur *sensible* tandis que ceux associés à l'évaporation ou à la condensation de l'eau sont connus sous le nom de chaleur *latente*.

L'équilibre d'énergie au niveau de la feuille s'écrit alors comme :

$$Q_{net} - Q_{SH} - Q_{LH} = 0 \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.33)$$

où

Q_{net} est le rayonnement net absorbé par la feuille [W m^{-2}],

Q_{SH} est le flux de chaleur sensible [W m^{-2}] et

Q_{LH} est le flux de chaleur latente de vaporisation [W m^{-2}].

Ces trois termes sont des fonctions de la température de la feuille que nous allons décrire dans les sous-sections suivantes. L'équation 2.33 sera résolue itérativement, par la méthode de Newton-Raphson.

Le rayonnement net absorbé, Q_{net}

Le rayonnement net Q_{net} est le bilan entre le rayonnement solaire absorbé par la feuille et le rayonnement thermique émis par cette dernière :

$$Q_{net} = Q_{SW} + Q_{LW} \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.34)$$

où

Q_{SW} est le rayonnement solaire, de courte longueur d'onde, absorbé par la feuille [W m^{-2}] et

Q_{LW} est le bilan rayonnement thermique ou infrarouge (IR), de grande longueur d'onde (3-20 μm), reçu par la feuille [W m^{-2}].

Le rayonnement solaire, Q_{SW} Le rayonnement solaire absorbé (décrit dans la section précédente) est la somme des rayonnements visible (PAR) et proche infrarouge (NIR) :

$$Q_{SW} = Q_{PAR} + Q_{NIR} \quad [W m^{-2}] \quad (2.35)$$

Il va donc de soi que nous continuerons à faire la distinction entre feuilles au soleil et feuilles à l'ombre.

Le rayonnement thermique, Q_{LW} La feuille émet du rayonnement thermique selon la loi de Stefan-Boltzmann (σT^4). L'énergie thermique Q_{LW} est le bilan des différentes composantes du rayonnement thermique agissant sur une feuille.

Lorsqu'une feuille est dans la position horizontale, il y a un côté exposé vers l'hémisphère supérieur et le deuxième côté fait face au sol. Chaque côté émet et reçoit du rayonnement : (1) la feuille émet son propre rayonnement thermique ($2\sigma T_f^4$, le facteur 2 indiquant que les deux côtés de la feuille sont pris en compte) et (2) la feuille reçoit les rayonnements thermiques venant de l'atmosphère, du sol et des feuilles avoisinantes (composantes « \uparrow » et « \downarrow »). Généralement, toutes les feuilles (au soleil ou à l'ombre, traitées séparément) ont des températures similaires et donc, leur échange thermique mutuel s'équilibre. Autrement dit, les échanges thermiques avec les feuilles avoisinantes sont négligeables. De plus, nous traitons la canopée et le sol comme un tout.

La Figure 2.7 illustre les différentes composantes du rayonnement thermique reçu et émis par une feuille.

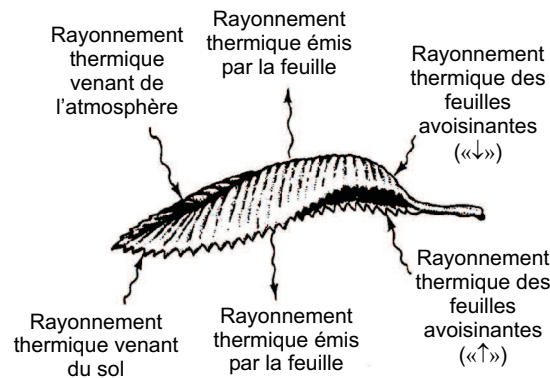


FIG. 2.7: Les différentes composantes du rayonnement thermique affectant le bilan d'énergie d'une feuille (*Shaw et Decker, 1979*).

Ce bilan peut être écrit comme :

$$Q_{LW} = -Q_{LW,f} + Q_{LW,atm} \quad [W m^{-2}] \quad (2.36)$$

où

$Q_{LW,f}$ décrit le rayonnement thermique émis par la feuille vers l'atmosphère [$W m^{-2}$] et $Q_{LW,atm}$ représente le flux thermique venant de l'atmosphère [$W m^{-2}$].

Le premier terme de cette équation s'écrit comme :

$$Q_{LW,f} = \varepsilon_f \sigma T_f^4 \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.37)$$

où

σ est la constante de Stefan-Boltzmann ($= 5.67051 \times 10^{-8} \text{ W m}^{-2} \text{ K}^{-4}$)

ε_f est l'émissivité de la feuille. La valeur de ce paramètre pour les différents types de végétation utilisés dans le modèle MOHYCAN est donnée à l'Annexe C.

De manière analogue, le rayonnement thermique atmosphérique au voisinage du sol peut également être décrit par la loi de Stefan-Boltzmann. Le deuxième terme de l'équation 2.36 s'écrit alors comme

$$Q_{LW,atm} = \varepsilon_{atm} \sigma T_{eff,atm}^4 \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.38)$$

où

ε_{atm} est l'émissivité de l'atmosphère,

$T_{eff,atm}$ est la température effective de l'atmosphère [K].

L'émissivité atmosphérique ε_{atm} peut être liée à la tension de vapeur d'eau dans l'air (*Brunt, 1932; Hatfield et al., 1983*) ou à la température de l'air (*Swinbank, 1963; Idso, 1981; Hatfield et al., 1983*). Pour un ciel clair, ε_{atm} est donnée par *Brunt (1932)* :

$$\varepsilon_{atm} = 0.52 + 0.065 \sqrt{e_{air}} \quad (2.39)$$

où e_{air} est la tension de vapeur [hPa] de l'air au-dessus de la canopée. Dans ces conditions, $T_{eff,atm}$ est la température de l'air au-dessus de la canopée (T_{air}).

Dans le cas d'un ciel nuageux, le déficit net, Q_{LW} (Eq.: 2.36), est beaucoup plus petit (un dixième de l'émission pour un ciel clair) parce que les nuages irradient de manière plus efficace : les nuages absorbent et réémettent le rayonnement infrarouge. Une simple dépendance linéaire avec la fraction nuageuse est alors utilisée pour déterminer le bilan thermique Q_{LW} dans l'équation 2.36.

Tout comme le rayonnement solaire, le rayonnement thermique venant de l'atmosphère est intercepté par la canopée. Plus la feuille est située profondément dans la canopée, plus elle est protégée de l'atmosphère, plus froide, par les autres feuilles, c-à-d, plus l'échange thermique entre la feuille et l'atmosphère est atténué. Cet échange thermique diminue suivant la loi exponentielle décrite pour le rayonnement solaire pour des feuilles noires. Il s'écrit comme

$$Q_{LW} = (\varepsilon_f \sigma T_f^4 - \varepsilon_{atm} \sigma T_{eff,atm}^4) \kappa_{noire,dif} \exp(-\kappa_{noire,dif} L_c) \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.40)$$

où

$\kappa_{noire,dif}$ est le coefficient d'extinction pour le rayonnement diffus et une distribution sphérique. $\kappa_{noire,dif} = 0.8$ et cette valeur doit encore être corrigée par le facteur de « cluster⁶ » associé au type de végétation considéré.

⁶Cf. Annexe C.

Le flux de chaleur sensible, Q_{SH}

Le terme de flux de chaleur sensible dans l'équation 2.33 est la perte de chaleur induite par la différence en température entre la feuille et l'air. Ce terme s'écrit comme (Nobel, 1983; Monteith et Unsworth, 1990; Goudriaan et van Laar, 1994; Leuning et al., 1995) :

$$Q_{SH} = \rho c_p \frac{\Delta T}{r_{b,h}} \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.41)$$

où

ρ est la densité de l'air [kg m^{-3}] à la température T_{air} et pour une humidité relative de l'air RH^7 ,

c_p est la chaleur massique [$\text{J kg}^{-1} \text{K}^{-1}$] de l'air à pression constante (Dufour et van Mieghem, 1975)

ρc_p est de l'ordre $1200 \text{ J m}^{-3} \text{K}^{-1}$ à 293.15 K

ΔT est la différence entre la température de la feuille et la température de l'air ($T_f - T_{air}$) [K] et

$r_{b,h}$ est la résistance à la chaleur, due à la couche limite d'air autour de la feuille⁸ [s m^{-1}] (« b » pour « boundary » (pour la couche limite) et « h » pour « heat » (pour la chaleur)) (Cf. Figure 2.9).

Nous supposons que la feuille et la tige ont la même température et qu'en général, seule une différence de température existe à travers la couche limite d'air adjacente à la surface de la feuille. En effet, la friction entre l'air en mouvement et la feuille conduit à la formation d'une couche limite d'air adhérent autour de la feuille, et à travers laquelle de la chaleur et de la masse sont échangées (Nobel, 1983; Monteith et Unsworth, 1990; Leuning et al., 1995).

L'échange de chaleur sensible entre la feuille et l'environnement se fait d'abord par conduction à travers la couche limite, puis par mélange par convection dans l'air en mouvement.

La *conduction* dépend de la différence de température : la chaleur est *conduite* d'un corps vers un corps plus froid en contact avec lui par collisions moléculaires.

La *convection* implique le mouvement turbulent de l'air. Il y a deux types de convection : (1) la convection *libre* et la convection *forcée*. La convection libre (ou naturelle) procède par l'ascension d'air chaud au-dessus des surfaces chauffées ou par descente d'air froid en dessous des surfaces refroidies. La convection forcée est le transfert de chaleur à travers la couche limite d'une surface exposée au vent, procédant à un taux qui dépend de sa vitesse.

La résistance $r_{b,h}$ est donc due à cette fine couche d'air attachée à la surface de la feuille par viscosité. Cette couche devient de plus en plus fine lorsque la vitesse du vent augmente, résultant en un échange de chaleur plus intense. Nous allons donc déterminer cette résistance $r_{b,h}$ en fonction du régime de convection. La résistance $r_{b,h}$

⁷Cf. Annexe B.

⁸La notion de couche limite d'air autour de la feuille est exposée brièvement à l'annexe D.

peut s'écrire comme :

$$r_{b,h} = \frac{1}{2} \frac{d_f}{(D_{th}Nu)} \quad [\text{s m}^{-1}] \quad (2.42)$$

où

d_f caractérise la dimension de la feuille [m],

D_{th} est la diffusivité thermique moléculaire de l'air⁹ [$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$] et

Nu est le nombre de Nusselt, défini en fonction de la nature de la convection (forcée ou libre)¹⁰.

Le facteur 1/2 dans l'équation 2.42 est introduit pour tenir compte des deux côtés de la feuille : les résistances des côtés supérieur et inférieur de la feuille agissent en parallèle.

Pour caractériser les dimensions de la feuille, nous définissons d_f comme :

$$d_f = 0.6 L_f + 0.4 l_f \quad [\text{m}] \quad (2.43)$$

où

L_f est la longueur de la feuille [m] et l_f est sa largeur [m]. Des valeurs de L_f et l_f sont attribuées pour chaque type de végétation du modèle MOHYCAN¹¹.

Le flux de chaleur latente, Q_{LH}

La transpiration conduit à une perte de chaleur par évaporation de l'eau d'une feuille. Cette évaporation coûte approximativement 2500 J par g d'eau. L'eau s'échappe de la feuille principalement par les stomates. En effet, pour permettre l'assimilation de CO_2 nécessaire à la photosynthèse, l'épiderme de la feuille est pourvu d'ouvertures appelées « stomates » qui comprennent des cellules de garde de chaque côté. Lorsque ces stomates sont ouverts pour permettre la prise de CO_2 , la transpiration se produit également puisque la pression de vapeur à l'intérieur de la feuille est à saturation. La Figure 2.8 illustre la géométrie d'un stomate et de l'épiderme qui caractérise une feuille.

Le terme de flux de chaleur latente dans l'équation de l'équilibre d'énergie 2.33 s'écrit (Nobel, 1983; Monteith et Unsworth, 1990; Goudriaan et van Laar, 1994; Leuning et al., 1995) :

$$Q_{LH} = \frac{(e_f - e_{air}) \rho c_p}{\gamma_{ps} (r_{b,v} + r_{ep})} \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (2.44)$$

où

e_f est la pression de vapeur [Pa] d'eau dans la feuille à la température de la feuille (T_f). L'humidité à l'intérieur de la feuille est de 100%, la pression de vapeur dans la feuille (supposée plane) e_f est donc la pression de vapeur à saturation¹² à la température T_f . Elle peut être calculée par l'équation B.5.

⁹Cf. Annexe B.

¹⁰Cf. Annexe D.

¹¹Cf. Annexe C.

¹²Cf. Annexe B.

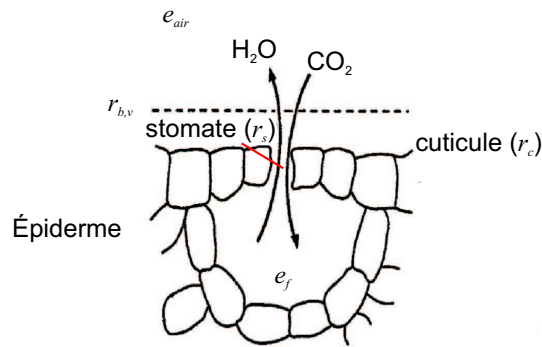


FIG. 2.8: Géométrie caractéristique d'un stomate et de l'épiderme d'une feuille. Les flux de transpiration et d'assimilation de CO_2 ont des directions opposées (Goudriaan et van Laar, 1994).

e_{air} est la pression de vapeur d'eau dans l'air ambiant [Pa],

ρc_p est la capacité volumique de l'air à la température T_{air} [$\text{J m}^{-3} \text{K}^{-1}$] (Eq.: 2.41),

γ_{ps} est le coefficient psychrométrique [Pa K^{-1}]. Ce coefficient dépend de la pression atmosphérique et du taux d'évaporation de l'eau (chaleur latente de vaporisation en fonction de la température). Une valeur typique de ce coefficient est de 67 Pa K^{-1} à 293 K (Nobel, 1983; Monteith et Unsworth, 1990; Goudriaan et van Laar, 1994; Leuning et al., 1995; Stull, 1999).

$r_{b,v}$ est la résistance à l'échange de vapeur d'eau, due à la couche limite d'air autour de la feuille [s m^{-1}] (Cf. Figure 2.9)

r_{ep} est la résistance épidermique de la feuille [s m^{-1}] (Cf. Figure 2.9), l'épiderme étant la pellicule qui la recouvre.

La résistance $r_{b,v}$ est, comme pour la résistance $r_{b,h}$, dépendante de la nature de la convection. Elle est donnée par :

$$r_{b,v} = \frac{1}{f_c} \frac{d_f}{D_{wv} Sh_{wv}} \quad [\text{s m}^{-1}] \quad (2.45)$$

où

f_c est un facteur correctif pour tenir compte du nombre effectif de côtés de la feuille dans le calcul de cette résistance. Plus grand est ce nombre (maximum deux), plus petite est la résistance.

d_f est la dimension de la feuille [m] (Cf. Eq.: 2.43),

D_{wv} est le coefficient de diffusion de la vapeur d'eau dans l'air¹³ [$\text{m}^2 \text{s}^{-1}$],

Sh_{wv} est le nombre de Sherwood. Ce nombre sans dimension dépend du nombre de Nusselt qui lui-même dépend de la nature de la convection (libre ou forcée)¹⁴.

¹³Cf. Annexe B.

¹⁴Cf. Annexe D.

En plus de la couche limite d'air autour de la feuille, l'épiderme offre une résistance à la diffusion des molécules de vapeur d'eau. L'épiderme possède une couche cireuse, la *cuticule* qui empêche pratiquement toute évaporation (Cf. Figure 2.8). La valeur de cette résistance cuticulaire r_c est de l'ordre de 2000 s m^{-1} ou plus. La valeur de la résistance stomatique (r_s) est régulée par la plante et varie entre 50 et 10000 s m^{-1} (Cf. ci-après). La résistance totale de l'épiderme est le résultat de la combinaison en parallèle des résistances cuticulaire (r_c) et stomatique (r_s) (Cf. Figure 2.9). La combinaison en parallèle des résistances signifie que leurs valeurs inverses (ou conductances) sont additionnées :

$$\frac{1}{r_{ep}} = \frac{1}{r_c} + \frac{1}{r_s} \quad [\text{m s}^{-1}] \quad (2.46a)$$

$$r_{ep} = \frac{r_c r_s}{r_c + r_s} \quad [\text{s m}^{-1}] \quad (2.46b)$$

Les valeurs de r_c utilisées pour chaque type de végétation du modèle MOHYCAN sont données à l'Annexe C.

La résistance stomatique est un paramètre important dans la détermination de la température de la feuille, puisque c'est par le biais des stomates que les échanges de chaleur et de vapeur d'eau se font. Le paragraphe suivant décrit la méthode utilisée pour calculer cette résistance stomatique r_s .

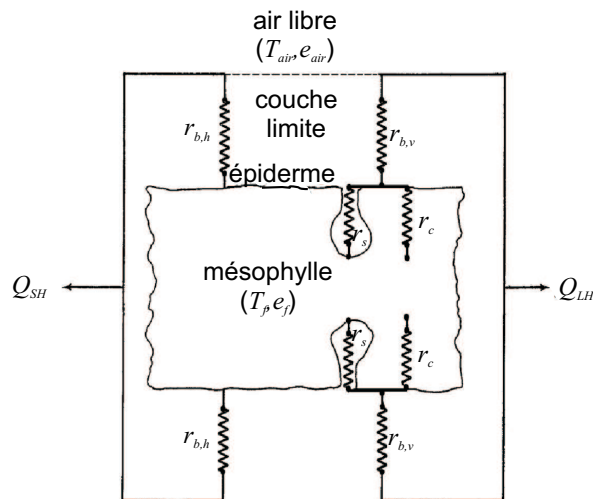


FIG. 2.9: Schéma électrique analogue montrant les résistances intervenant dans les termes de flux de chaleur sensible et de flux de chaleur latente de l'équilibre d'énergie d'une feuille, d'après *Monteith et Unsworth* (1990).

La résistance stomatique, r_s L'ouverture et la fermeture des stomates dépend de plusieurs variables environnementales (*Jarvis*, 1976). La conductance stomatique est

notamment régulée par un certain nombre de facteurs tels que la lumière incidente sur la feuille, la température, le déficit en pression de vapeur, les niveaux de CO₂ ou encore le potentiel hydrique de la feuille (son contenu en eau). Un modèle satisfaisant, incluant les effets connus de ces variables environnementales, est tributaire de la connaissance précise des mécanismes de régulation des stomates au niveau cellulaire. De nombreux travaux ont relaté la paramétrisation de la résistance (ou conductance) stomatique (*Jarvis et al.*, 1976; *Dickinson*, 1983, 1984; *Massman et Van Dijken*, 1989; *Dickinson et al.*, 1993; *Ducoudré et al.*, 1993; *Wilson et Baldocchi*, 2000) dont certains sont basés sur les travaux de *Jarvis* (1976). La lumière a un effet majeur sur la résistance stomatique. Les autres facteurs environnementaux agissent comme des fonctions d'ajustement de la résistance stomatique. La résistance stomatique r_s dans le modèle SiB (*Sellers et al.*, 1986; *Sellers et Dorman*, 1987; *Dorman et Sellers*, 1989; *Sellers et al.*, 1989; *Xue et al.*, 1991), basée sur les études antérieures de *Jarvis* (1976) et de *Sellers* (1985), s'écrit :

$$r_s = r_{s,PAR} f_{\Sigma}^{-1} \quad [\text{s m}^{-1}] \quad (2.47)$$

où

$r_{s,PAR}$ représente la dépendance en lumière de la résistance stomatique [s m^{-1}] et f_{Σ} représente le facteur de stress total (sans dimension).

$r_{s,PAR}$ s'écrit comme :

$$r_{s,PAR} = \frac{a_s}{b_s + Q_{PAR}} + c_s \quad [\text{s m}^{-1}] \quad (2.48)$$

où

a_s [J m^{-3}], b_s [W m^{-2}] et c_s [s m^{-1}] sont des coefficients empiriques dépendants du type de végétation. L'Annexe C présente une compilation des valeurs de ces coefficients adaptées à chaque type de végétation dans le modèle MOHYCAN (*Jarvis*, 1976; *Sellers*, 1985; *Sellers et al.*, 1986; *Sellers et Dorman*, 1987; *Sellers et al.*, 1989; *Dorman et Sellers*, 1989).

Q_{PAR} est le flux du rayonnement visible (PAR) [W m^{-2}] déterminé dans la Section 2.3.1.

Dans le modèle SiB, le facteur de stress total f_{Σ} représente l'influence des divers stress pouvant agir sur une feuille. Il combine les effets du potentiel hydrique, de la température de la feuille, du déficit en vapeur d'eau de l'atmosphère et du niveau ambiant de CO₂ sur la feuille. Il s'écrit :

$$f_{\Sigma} = f(T_f) f(\delta e) f(\psi_f) f(\text{CO}_2) \quad (2.49)$$

$f(T_f)$ représente l'influence de la température de la feuille ; $0 \leq f(T_f) \leq 1$. Il vaut :

$$f(T_f) = T_1(T_f - T_l)(T_h - T_f)^{T_2} \quad (2.50)$$

où

$$T_1 = \frac{1}{(T_o - T_l)(T_h - T_o)^{T_2}}$$

$$T_2 = \frac{(T_h - T_o)}{(T_o - T_l)}$$

T_h , T_l et T_o sont les températures supérieure, inférieure et optimale [K] pour la transpiration. Les valeurs utilisées dans le modèle MOHYCAN sont listées à l'Annexe C pour chaque type de végétation.

$f(\delta e)$ représente l'influence du déficit en vapeur d'eau de l'atmosphère sur la résistance stomatique ; $0 \leq f(\delta e) \leq 1$. Il est donné par :

$$f(\delta e) = 1 - d_s \delta e \quad (2.51)$$

où

d_s est un coefficient empirique [Pa^{-1}]. Les valeurs utilisées pour ce coefficient sont données à l'Annexe C [mbar^{-1}] pour les différents types de végétation.

$$\delta e = e_{sat}(T_{air}) - e_{air} \quad [\text{Pa}]$$

où

$e_{sat}(T_{air})$ est la pression de vapeur à saturation¹⁵ à la température de l'air (T_{air}) [Pa] et e_{air} est la pression de vapeur d'eau dans l'air à T_{air} [Pa].

$f(\psi_f)$ indique l'influence du potentiel hydrique de la feuille, c-à-d qu'il tient compte du contenu en eau de la feuille. Diverses paramétrisations existent dans la littérature (Jarvis, 1976; Choudhury, 1983; Sellers, 1985; Sellers et al., 1986; Sellers et Dorman, 1987; Sellers et al., 1989; Dorman et Sellers, 1989; Sellers et al., 1992). Le contenu en eau de la feuille dépend principalement du contenu en eau du sol. La modélisation de ce dernier paramètre n'est pas simple et requiert une connaissance approfondie des propriétés du sol. Plus les feuilles sont loin du sol, plus leur stress hydrique augmente, avec $0 \leq f(\psi_f) \leq 1$:

$$f(\psi_f) = f(\psi_0) - \frac{z}{(\psi_1 - \psi_2)} \quad (2.52)$$

où

$f(\psi_0)$ est la valeur du stress hydrique au niveau du sol,

z est la hauteur dans la canopée [m] et

ψ_1 et ψ_2 sont des coefficients empiriques [m]. L'Annexe C donne les valeurs compilées pour les différents types de végétation utilisés dans le modèle MOHYCAN.

La valeur de $f(\psi_0)$ dépend du type de climat du lieu considéré. En période de sécheresse, le stress hydrique est très important et la valeur de $f(\psi_0)$ est proche de zéro, tandis que pour un climat très humide, ce facteur est proche de 1.

¹⁵Cf. Annexe B, Eq.: B.5.

$f(CO_2)$ tient compte des niveaux de concentration du dioxyde de carbone CO_2 dans l'air ; $0 \leq f(CO_2) \leq 1$. Dans la suite, nous supposons que le stress en CO_2 est nul, autrement dit :

$$f(CO_2) = 1 \quad (2.53)$$

Nous venons de voir que pour déterminer la température de la feuille, il faut évaluer chaque terme de l'équilibre d'énergie au niveau de la feuille (Eq.: 2.33). Chacun de ces termes dépend de la valeur d'une ou de plusieurs variables météorologiques dans la canopée, dont la détermination fait l'objet de la sous-section suivante.

2.3.3 Détermination des variables météorologiques nécessaires au calcul de la température de la feuille

L'environnement d'une feuille est décrit par des paramètres météorologiques tels que (1) le rayonnement solaire, (2) la température de l'air, (3) l'humidité relative de l'air (ou sa pression de vapeur) et (4) la vitesse du vent (*Gates et Papian, 1971; Gates, 1985*).

La présence de la canopée, constituée de feuilles, de tiges et de branches, influence l'environnement d'une feuille particulière. La température de l'air, la vitesse du vent, l'humidité relative de l'air et le rayonnement autour de la feuille ne sont pas égaux aux valeurs mesurées au-dessus de la canopée.

Dans les sections suivantes, nous allons décrire les paramétrisations utilisées pour déterminer les valeurs au sein de la canopée de chacune de ces variables, à l'exception du rayonnement solaire qui a été discuté précédemment (Cf. Sous-section 2.3.1).

La température de l'air dans la canopée, $T_{air}(z)$

La distribution verticale de la température de l'air dans la canopée est complexe. Les conditions thermodynamiques et l'humidité du sol exercent une influence sur les flux de chaleur et d'humidité dans le couvert végétal et dépendent en général de la hauteur (*Rauner, 1977; Lamb et al., 1993*). La distribution de $T_{air}(z)$ ne peut être approchée par une simple loi logarithmique ; laquelle est seulement valable au-dessus de la canopée. Des analyses de données expérimentales (*Rauner, 1977*) ont montré que les profils de température peuvent se réduire à certains types généralisés (Figure 2.10). Les inversions de température sont plus couramment trouvées (type *a*) pour une humidité substantielle du sol et des valeurs élevées de l'indice de surface de feuille. Dans la moitié supérieure de la canopée, des gradients négatifs peuvent apparaître, tandis que l'inversion se maintient dans la partie inférieure (type *b*). Si le couvert végétal est peu dense, la surface du sol peut chauffer sous l'effet de la pénétration du rayonnement, ce qui conduit à des gradients négatifs dans les couches inférieures, tandis que l'inversion est maintenue dans les couches supérieures (type *d*). Dans le cas d'une canopée peu dense, la décroissance de la température avec la hauteur peut se produire dans toutes les couches (type *e*). Finalement, des profils isothermes peuvent se produire (type *c*).

Les conditions météorologiques influencent aussi la distribution de la température de différentes manières. Par exemple, en cas de forte turbulence et d'un faible gradient de température, des profils verticaux adoucis se produisent. Par contre, lorsque l'air est chaud et que la vitesse du vent est faible, le profil de température est beaucoup plus chaotique. Etant donnée la très grande dépendance au type de végétation, à la densité de feuillage et aux variables météorologiques, nous supposons, par défaut, que la température de l'air dans la canopée reste constante et égale à la température de l'air au sommet.

$$T_{air}(z) = T_{air}(h_c) \quad [\text{K}] \quad (2.54)$$

où

$T_{air}(z)$ est la température à la hauteur z dans la canopée [K] et

$T_{air}(h_c)$ est la température au sommet de la canopée [K], c-à-d à la hauteur h_c de la canopée.

Cette simplification sera testée aux chapitres suivants.

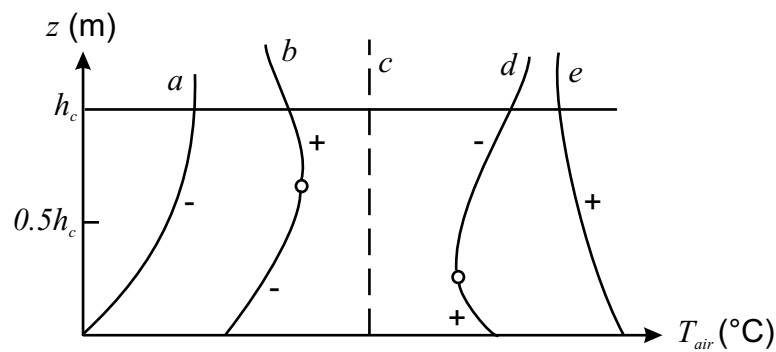


FIG. 2.10: Profils verticaux typiques de la température dans une canopée, d'après *Rauner* (1977).

L'humidité relative dans la canopée, $RH(z)$

De même que la température, la pression de la vapeur d'eau dans l'air dépend fortement des conditions thermodynamiques au sein de la canopée et détermine la distribution verticale de l'évapotranspiration de la masse végétale, ainsi que l'humidité du sol. On peut approcher les valeurs de l'humidité relative de l'air dans la canopée par :

$$RH(z) = RH(h_c) + \delta_{RH}(h_c - z) \quad [\%] \quad (2.55)$$

où

$RH(z)$ est l'humidité relative à la hauteur z dans la canopée [%],

$RH(h_c)$ est l'humidité relative au sommet h_c de la canopée [%] et

δ_{RH} est le gradient d'humidité relative [% m⁻¹]. Il est estimé à environ 0.4 % m⁻¹ (Cf. Chapitre 4).

La vitesse du vent dans la canopée, $u(z)$

Le vent soufflant sur une canopée est ralenti par le frottement important avec la surface rugueuse que constitue la canopée. La vitesse moyenne du vent (composante horizontale, u) varie logarithmiquement, en conditions neutres, avec l'altitude au-dessus de la canopée. Cette loi logarithmique dépend des éléments caractéristiques de la surface rugueuse (Cowan, 1968; Businger, 1975; Thom, 1975; Tajchman, 1981; Campbell, 1981; Monteith et Unsworth, 1990), comme par exemple, la longueur de rugosité (z_0), la hauteur de déplacement (d) et la vitesse de friction (u^*) (Cf. Figure 2.11). Pour de plus amples informations, nous invitons le lecteur à consulter Arya (1988); Stull (1999).

Dans la canopée, l'atténuation de la vitesse du vent suit une loi exponentielle, due à la présence des feuilles (Cionco, 1965, 1972, 1978; Raupach, 1988; McNaughton, 1995; Parker, 1995). La vitesse du vent est alors donnée par

$$u(z) = u(h_c) \exp\left(\overline{at}_u \left(\frac{z}{h_c} - 1\right)\right) \quad [\text{m s}^{-1}] \quad (2.56)$$

où

$u(z)$ et $u(h_c)$ sont respectivement la vitesse du vent à la hauteur z dans la canopée et à la hauteur de la canopée [m s^{-1}] et

\overline{at}_u est le coefficient moyen d'atténuation du vent dans la canopée (sans dimension). Ce coefficient moyen est fonction de la flexibilité des éléments de la canopée, de la quantité de feuillage et de la densité des divers éléments constituant la canopée. Ce coefficient moyen sur la canopée entière varie entre 0.5 et 5 selon le type de canopée. L'Annexe C donne les valeurs de ce coefficient moyen adopté pour chaque type de végétation du modèle MOHYCAN. En pratique, ce coefficient moyen est ajusté pour tenir compte de la variation d'une couche à l'autre en fonction de la quantité de feuilles présentes dans la couche considérée et de l'épaisseur de cette couche, c-à-d (Cionco, 1965; Businger, 1975; Rauner, 1977; Raupach et Thom, 1981; Raupach, 1988) :

$$at_{u,j} = \alpha_u [L_j (\Delta z_j)^2]^{1/3} \quad \text{avec} \quad \overline{at}_u = \sum_{j=1}^n at_{u,j}$$

n étant le nombre de couches dans la canopée

où

$at_{u,j}$ est le coefficient d'atténuation de la vitesse du vent dans la couche j ,

α_u est un coefficient de proportionnalité indépendant de la couche j ,

L_j est la quantité de feuilles dans la couche j spécifiée par l'indice de surface de feuille (LAI) de la couche [$\text{m}_{\text{feuille}}^2 \text{m}_{\text{sol}}^{-2}$] et

Δz_j est l'épaisseur de la couche j [m]. Dans le modèle, chaque couche a la même épaisseur.

Le coefficient α_u est alors déterminé comme

$$\alpha_u = \frac{\overline{at}_u}{\sum_{j=1}^n L_j^{1/3} (\Delta z_j)^{2/3}} \quad (2.57)$$

La relation (Eq.: 2.56) est valable uniquement dans la canopée (feuillage). En-deçà, la loi logarithmique est à nouveau d'application, en adaptant les différents paramètres aux caractéristiques du sol.

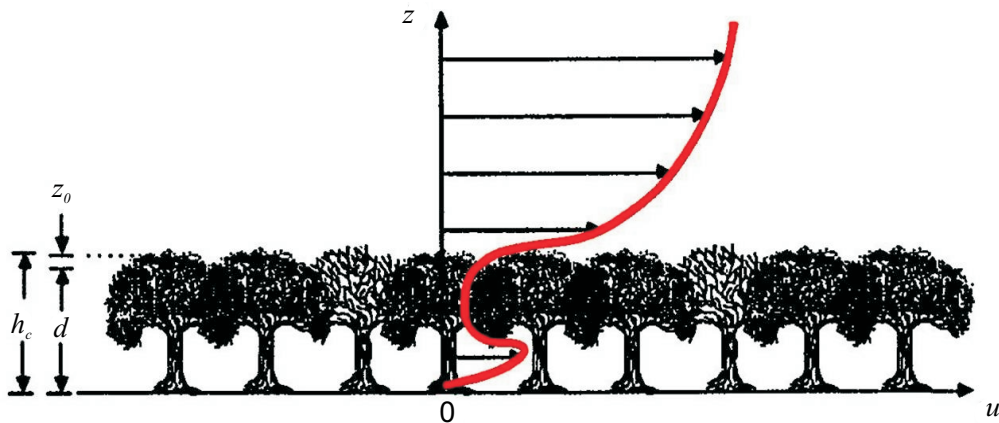


FIG. 2.11: Profil vertical du vent au-dessus et dans une canopée, d'après *Stull* (1999). Les paramètres z_0 et d sont respectivement la longueur de rugosité et la hauteur de déplacement dans la paramétrisation de la vitesse du vent au-dessus de la canopée.

2.3.4 Récapitulatif du modèle

En résumé, les variables d'entrée du modèle MOHYCAN sont les valeurs au sommet de la canopée des éclairements dans le visible (équivalent au PAR) et le proche infrarouge (NIR), de leurs fractions diffuses et directes, de la température de l'air, de l'humidité relative dans l'air et de la composante horizontale de la vitesse du vent. Lorsque l'éclairément visible n'est pas connu, il peut être déterminé à partir de l'éclairément solaire global. Ces variables météorologiques, au sommet de la canopée, sont soit obtenues à partir de mesures locales dans le cas de comparaisons avec des campagnes de mesure (Cf. Chapitre 3), soit fournies par une climatologie (Cf. Chapitre 5). Les fractions diffuses des éclairements au sommet de la canopée sont obtenues grâce au modèle radiatif atmosphérique.

Sur base de ces valeurs, le modèle MOHYCAN calcule à chaque niveau dans la canopée les éclairements visible (PAR) et proche infrarouge (NIR) interceptés par les feuilles au soleil et par les feuilles à l'ombre. La température de la feuille est ensuite déterminée itérativement à chaque niveau de la canopée, pour les feuilles au soleil et les feuilles à l'ombre. Le nombre d'itérations requis est généralement inférieur à quatre. Les émissions de composés organiques volatils biogéniques (isoprène, monoterpènes et autres composés organiques volatils) sont calculées séparément pour les feuilles au soleil et à l'ombre, à chaque niveau, à l'aide des algorithmes d'émission décrits à la Section 2.2 en utilisant soit la température de l'air, soit la température de la feuille. Les émissions ainsi déterminées sont pondérées par les fractions correspondantes de

feuilles au soleil et à l'ombre et par la quantité de feuillage dans la couche considérée. Les émissions par l'ensemble de la canopée sont obtenues en sommant les contributions par les différentes couches. Le temps de calcul pour déterminer les émissions de composés organiques volatils biogéniques, en un temps et un lieu donné est de l'ordre de 0.03 seconde sur le serveur Hewlett Packard L2000 de l'IASB.

CHAPITRE 3

Les campagnes de mesure

Nous venons de voir comment calculer les émissions de composés organiques volatils biogéniques (BVOC) par la canopée à l'aide des algorithmes d'émission (Eq.: 2.1 à 2.5) et du modèle de canopée MOHYCAN. Ces algorithmes d'émission sont utilisés dans la plupart des études sur les émissions de composés organiques biogéniques et notamment dans l'établissement des inventaires globaux. Cependant, ces algorithmes ont été principalement établis à partir d'études sur seulement quelques espèces végétales aux Etats-Unis. Dans ce chapitre, nous allons évaluer ces algorithmes pour différents cas de figure. Pour ce faire, nous avons utilisé des données provenant de campagnes de mesure. Elles permettront aussi de tester le modèle MOHYCAN. Les différentes campagnes présentent chacune un intérêt particulier qui sera discuté dans ce chapitre et dans le Chapitre 4.

Avant de décrire séparément les sites de mesure et les résultats du modèle, nous présenterons d'abord brièvement les différentes techniques de mesure d'émission de composés organiques volatils biogéniques.

3.1 Techniques de mesure utilisées pour quantifier les flux de composés organiques volatils biogéniques

Il existe diverses méthodes pour estimer les émissions de composés organiques volatils par la végétation à différentes échelles spatiales et temporelles. Les méthodes de mesure incluent les mesures en enclos, les techniques de mesure des flux dans la couche de surface et celles qui s'appliquent aux flux dans la couche de mélange (*Guenther, 1999; Rinne, 2001*) (Figure 3.1). La méthode de mesure en enclos a été décrite précédemment (Cf. Sous-section 2.2.2). Les autres méthodes seront décrites dans les sections suivantes. Toutes ces méthodes sont basées sur la mesure des concentrations

des composés organiques volatils. La théorie de base pour les techniques de mesure des flux dans la couche de surface et dans la couche de mélange est décrite par *Garratt* (1994); *Kaimal et Finnigan* (1994); *Stull* (1999).

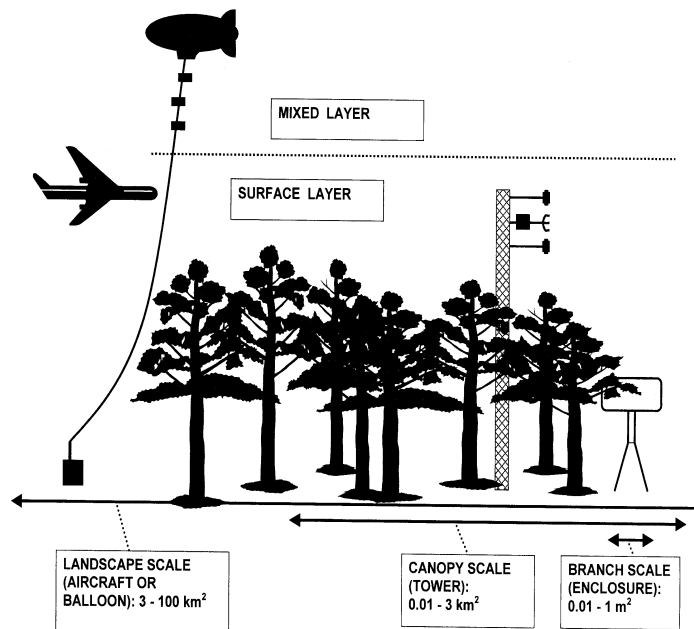


FIG. 3.1: Illustration des échelles et des techniques de mesure utilisées pour développer et évaluer les modèles d'émissions biogéniques, d'après *Guenther* (1999).

3.1.1 Techniques de mesure des flux dans la couche de surface

La couche de surface de l'atmosphère est la partie la plus basse de la couche limite planétaire directement en contact avec la surface terrestre. Dans cette région, les effets de la force de Coriolis sur les courants sont négligeables, la direction du vent est constante et la structure du vent est uniquement déterminée par les effets dynamiques engendrés par le sol et par la stratification thermique de l'air. L'épaisseur de la couche de surface ne dépasse pas le dixième de celle de la couche limite planétaire, soit de 10 à 100 m, avec une moyenne de l'ordre d'une cinquantaine de mètres. Dans cette couche, les flux verticaux de quantité de mouvement et de chaleur varient de moins de 10% de leur magnitude avec la hauteur.

Les mesures de flux de composés organiques volatils biogéniques dans la couche de surface permettent d'évaluer les émissions à l'échelle de la canopée. Cependant, les émissions mesurées ne sont pas celles du voisinage immédiat de l'instrument de mesure. L'aire dont les émissions influencent les concentrations est déterminée par la météorologie locale. Cette aire est appelée « empreinte ». La hauteur de mesure dépend de la hauteur de la végétation et de la structure de la canopée. Cette hauteur de me-

sure peut varier d'environ un mètre à plusieurs dizaines de mètres au-dessus de la végétation.

La méthode de mesure des flux dans la couche de surface impose plusieurs conditions. La surface autour du point de mesure doit être raisonnablement plate et horizontalement homogène. Il faut une turbulence suffisamment forte et des conditions quasi-stationnaires. Les temps de vie des composés chimiques mesurés doivent être beaucoup plus longs que les échelles de temps typiques de mélange turbulent. Puisque les mesures doivent être conduites au-dessus de la canopée, des infrastructures particulières sont nécessaires. Par exemple, pour les sites de mesure en forêt, des tours de plusieurs dizaines de mètre de haut sont utilisées (*Rinne, 2001*).

Méthode d'« Eddy Covariance, EC »

La méthode la plus directe pour mesurer les flux verticaux dans la couche de surface est la méthode d'Eddy Covariance (EC). Elle est basée sur le produit moyen des fluctuations de la composante verticale de la vitesse du vent (w) et de la concentration (C) du gaz considéré. Cette méthode requiert des mesures très fréquentes et simultanées de ces deux composantes.

La covariance entre ces deux variables ($C' = C - \bar{C}$, $w' = w - \bar{w}$) donne le flux F :

$$F = \overline{w'C'} = \frac{1}{t_2 - t_1} \int_{t_1}^{t_2} w'(t) C'(t) dt \quad (3.1)$$

où la barre horizontale dénote une moyenne temporelle sur un intervalle ($t_2 - t_1$) typiquement de 10 à 30 minutes (*Rinne, 2001*). Cet intervalle est pris assez court pour éliminer les fluctuations de basse fréquence (gênantes car parfois dues à la grande échelle), et assez long pour assurer la représentativité de la statistique. En règle générale, plus la mesure se fait en hauteur, plus cet intervalle de temps est long du fait que les tourbillons augmentent en taille avec la hauteur. L'intervalle de temps peut aussi être allongé si la situation est très stationnaire. Puisqu'une part substantielle des flux dans la couche de surface atmosphérique est transportée par des tourbillons relativement petits et rapides, les mesures de w et de C doivent être faites avec un senseur rapide (< 1 s). Les fréquences typiques d'échantillonnage utilisées pour les mesures EC sont de 5-10 Hz (*Rinne, 2001*). Cette méthode est souvent utilisée pour mesurer les flux de CO_2 , de H_2O et de O_3 . Des instruments, basés sur cette technique, ont été développés pour la mesure des flux d'isoprène (*Guenther et Hills, 1998*) et d'aérosols (*Buzorius et al., 1998*). Pour de nombreux constituants atmosphériques, il n'existe pas de senseurs suffisamment rapides pour appliquer cette méthode (*Hewitt et al., 1995; Cao et Hewitt, 1999; Rinne, 2001*). La spectrométrie de masse par réaction de transfert de proton a néanmoins été appliquée récemment à la mesure de plusieurs hydrocarbures (*Lindinger et al., 1998; Karl et al., 2001*).

Méthode du gradient

La technique du gradient dans la couche de surface est la méthode traditionnelle pour mesurer les flux des gaz en trace pour lesquels il n'existe pas de senseur rapide. Cette technique est utilisée pour obtenir les flux par une végétation homogène sur une grande surface.

Les gradients verticaux de concentration ($\partial C/\partial z$) des hydrocarbures au-dessus d'une source uniforme et plane peuvent être obtenus en mesurant la concentration de ces hydrocarbures à différentes hauteurs. Les gradients de température, de la vitesse du vent et de la concentration de la vapeur d'eau doivent également être mesurés. Ces données météorologiques sont alors utilisées pour déterminer le coefficient d'échange turbulent K_z ou coefficient d'échange. Les flux d'émission d'hydrocarbures peuvent être calculés par la relation empirique (Hewitt *et al.*, 1995; Cao *et Hewitt*, 1999; Rinne, 2001) :

$$F = K_z \frac{\partial C}{\partial z} \quad (3.2)$$

Le coefficient d'échange turbulent peut être obtenu en utilisant la théorie micro-météorologique (Stull, 1999), la micrométéorologie étant l'étude des conditions météorologiques à petite échelle impliquant généralement des mesures fines près de la surface terrestre sur de courtes périodes de temps (inférieure à une heure) et sur de petites surfaces (inférieures à 3 km). La méthode la plus directe est d'inverser l'équation 3.2 et d'utiliser un autre scalaire, par exemple la température ou la vapeur d'eau, comme traceur. Cette méthode, appelée méthode du rapport de Bowen, demande des mesures de gradient très précises et peut induire des erreurs importantes lors du calcul des flux (Rinne, 2001). Une autre méthode pour estimer le coefficient K_z est d'utiliser la théorie de similitude de Monin-Obukhov (Garratt, 1994; Stull, 1999; Rinne, 2001). Dans cette théorie, la vitesse du vent est exprimée en fonction de la variable sans dimension $\xi = z/L$, avec $du/dz = (u^*/kz)(1 + az/L)$, où a est un paramètre à déterminer expérimentalement; z , l'altitude considérée; L , la longueur d'échelle de Monin-Obukhov; u^* , la vitesse de frottement; et k , la constante de von Karman.

La méthode des gradients est actuellement critiquée et donc presque abandonnée pour diverses raisons :

- la stationnarité de la turbulence n'est pas garantie, il n'existe donc aucun moyen d'éliminer les « mauvaises » données ;
- lorsque les flux ne sont pas conservatifs, c-à-d lorsqu'ils sont perturbés par des réactions chimiques, les gradients ne sont plus proportionnels aux flux ;
- la précision de la mesure est souvent insuffisante étant donné qu'on doit déterminer une différence de concentrations.

Méthode d'« Eddy Accumulation, EA »

La technique d'Eddy Accumulation (EA) est une méthode plus directe, pour la mesure des gaz en trace, que la méthode du gradient. Cette méthode évite le besoin de mesures rapides du constituant considéré. Les échantillons d'air sont accumulés dans

deux réservoirs (« updraft » et « downdraft ») suivant le signe de la composante verticale de la vitesse du vent (w). Dans la technique de « True Eddy Accumulation » originale, proposée par *Desjardins (1977)*, le volume d'air échantillonné est proportionnel à la valeur de w . Après une période suffisamment longue,

$$F = \overline{w^+} C^+ + \overline{w^-} C^- \quad (3.3)$$

où $\overline{w^+}$ et $\overline{w^-}$ sont respectivement les valeurs moyennes (sur le temps) des composantes ascendante (updraft) et descendante (downdraft) de la vitesse du vent. La quantité C^+ est la concentration du gaz en trace de l'échantillon dans le réservoir updraft et C^- est celle de l'échantillon dans le réservoir downdraft. L'équation 3.3 peut être obtenue de l'équation 3.1 comme montré par *Rinne (2001)*; *Rinne et al. (2000)*.

Les échantillons de gaz peuvent être collectés à partir de ces deux réservoirs et analysés avec un détecteur à réponse plus lente. Les temps d'échantillonnage sont typiquement de l'ordre de 10 minutes. Cette méthode est attrayante en principe mais très difficile à réaliser en pratique (*Businger et Oncley, 1990*; *Hewitt et al., 1995*; *Cao et Hewitt, 1999*; *Rinne, 2001*). Il est en effet difficile de contrôler l'écoulement de l'échantillon avec précision et suffisamment rapidement.

Méthode de « Relaxed Eddy Accumulation, REA »

A la place de la méthode d'Eddy Accumulation, la méthode de Relaxed Eddy Accumulation (REA) a gagné en popularité pour la mesure des flux de composés organiques volatils biogéniques. Cette méthode, introduite par *Businger et Oncley (1990)*, est plus simple que la méthode d'Eddy Accumulation. L'échantillonnage est déterminé par la vitesse w , positive ou négative, de la composante verticale du vent, et l'air est échantillonné à un taux d'écoulement constant, indépendant de la valeur de w .

Le flux est obtenu par la relation :

$$F = b \sigma_w (\overline{C^+} - \overline{C^-}) \quad (3.4)$$

où

b est un coefficient empirique (= 0.6) (*Businger et Oncley, 1990*; *Baker et al., 1992*), σ_w est l'écart-type de la composante verticale de la vitesse du vent [m s^{-1}] et $\overline{C^+}$ et $\overline{C^-}$ sont respectivement les concentrations moyennes (sur le temps) [$\mu\text{g m}^{-3}$] du gaz dans les réservoirs updraft ($w > 0$) et downdraft ($w < 0$).

Les avantages de la méthode REA incluent le fait que les échantillons peuvent être transportés et ne requièrent pas d'analyse de laboratoire près du site de mesure (*Hewitt et al., 1995*; *Cao et Hewitt, 1999*; *Rinne, 2001*). Typiquement, une paire d'échantillons de 30 minutes est collectée chaque heure (*Guenther et al., 1996*; *Greenberg et al., 2003*).

Méthode de « Disjunct Eddy Sampling, DES »

Les méthodes décrites précédemment échantillonnent l'air de manière continue dans le temps. Il est cependant aussi possible d'échantillonner l'air de manière non-continue et d'avoir encore suffisamment d'échantillons pour calculer les flux (*Haugen, 1978; Kaimal et Gaynor, 1983; Lenschow et al., 1994; Rinne et al., 2000*). Dans cette approche, appelée Disjunct Eddy Sampling (DES) par *Lenschow et al. (1994)*, des échantillons sont collectés sur des courts intervalles de temps, séparés par des intervalles de temps relativement longs. Cette façon de procéder laisse plus de temps pour traiter les échantillons.

Dans cette technique d'échantillonnage, le flux est calculé par :

$$F = \langle w' C' \rangle = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N w'(t_i) C'(t_i) \quad (3.5)$$

où N est le nombre d'échantillons recueillis.

La somme dans l'équation 3.5 est une moyenne sur un ensemble d'échantillons plutôt qu'une moyenne sur le temps, comme c'est le cas dans l'équation 3.1.

L'avantage majeur de la technique d'échantillonnage DES est qu'elle permet les mesures par la technique directe EC (« Disjunct Eddy Covariance, DEC ») en utilisant des analyseurs ayant des temps de réponses entre 1 et 30 secondes, voire d'avantage. Même quand il existe un analyseur rapide pour un composé, un instrument plus lent peut être plus petit, plus stable, plus facile à manipuler et moins cher (*Rinne, 2001; Rinne et al., 2001*).

La deuxième méthode directe est la méthode EA, les autres méthodes (gradient et REA) étant basées sur des paramétrisations empiriques. *Rinne et al. (2000)* présentent un système, pour la mesure des flux, associant les techniques DES et EA. Dans ce système, appelé « Disjunct Eddy Accumulation, DEA », les flux sont déterminés, en combinant les équation 3.3 et 3.5. On a alors

$$F = \langle w^+ \rangle C^+ + \langle w^- \rangle C^- \quad (3.6)$$

où

$\langle w^+ \rangle$ et $\langle w^- \rangle$ sont, respectivement, les vitesses verticales moyennes (sur l'ensemble des échantillons) dans les directions ascendante et descendante, avec

$$\langle w^{+(-)} \rangle = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N w_i^{+(-)} \quad (3.7)$$

où N est le nombre d'échantillons, et C^+ et C^- sont, respectivement, les concentrations du constituant dans les réservoirs updraft et downdraft.

Ce système DEA recueille des échantillons (temps d'échantillonnage, $t_s < 0.5s$) toutes les 10-60 secondes. La séquence d'échantillonnage est répétée typiquement pour 30-60 minutes, temps suffisamment long pour échantillonner les tourbillons d'air à toutes échelles.

Méthode du traceur

Signalons, à titre indicatif, qu'il existe encore une dernière méthode pour mesurer les flux de composés organiques volatils biogéniques, basée sur l'utilisation d'un traceur inerte (par exemple, SF₆) (*Lamb et al.*, 1986). Les flux d'émission peuvent être calculés comme suit

$$F = F_{\text{traceur}} \frac{C_{\text{max}}}{C_{\text{max,traceur}}} \quad (3.8)$$

où

F est le flux de l'hydrocarbure considéré [$\mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$],

F_{traceur} est le flux du traceur [$\mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$], supposé connu, et

C_{max} et $C_{\text{max,traceur}}$ sont les concentrations maximales de l'hydrocarbure considéré et du traceur, respectivement.

Cette méthode du traceur est cependant peu appropriée pour les hydrocarbures hautement réactifs tels que les monoterpènes (*Hewitt et al.*, 1995; *Cao et Hewitt*, 1999).

3.1.2 Techniques de mesure des flux dans la couche de mélange

Les méthodes de mesure de flux dans la couche de mélange sont utilisées pour estimer les flux de composés organiques volatils biogéniques à une échelle de plusieurs kilomètres carrés voire plusieurs centaines de kilomètres carrés (Cf. Figure 3.1). Ces méthodes requièrent des mesures de concentration à plusieurs hauteurs dans la couche limite planétaire bien mélangée et sont seulement applicables lorsque la turbulence est induite par la convection (*Stull*, 1999; *Rinne*, 2001). Les ballons captifs (ancrés) sont communément utilisés comme plate-forme pour les mesures, mais les avions peuvent aussi être utilisés. Nous invitons alors le lecteur à consulter *Rinne* (2001) pour de plus amples informations.

3.1.3 Echantillonnage et méthodes analytiques

Les deux méthodes principales utilisées pour l'identification et la quantifications des concentrations des composés organiques volatils biogéniques sont les suivantes. La première implique la collecte directe et l'isolation de l'air dans un récipient imperméable (*Hewitt et al.*, 1995; *Cao et Hewitt*, 1999; *Rinne*, 2001). Cette technique est limitée aux constituants gazeux pour lesquels des techniques analytiques sensibles sont disponibles, c-à-d ceux qui ont des concentrations suffisamment élevées dans l'atmosphère. Elle est idéale pour les hydrocarbures légers, mais n'est, en général, pas applicable aux composés moins volatils (possible adsorption sur les parois du récipient). La seconde méthode utilise le pompage de l'air au travers d'un tube d'adsorption rempli d'adsorbants (ex.: le Tenax), suivi par désorption thermique. C'est la technique la plus utilisée pour échantillonner les composés organiques volatils biogéniques de faibles concentrations dans l'air (*Hewitt et al.*, 1995; *Cao et Hewitt*, 1999; *Rinne*, 2001).

Les échantillons collectés sont habituellement analysés par chromatographie en phase gazeuse (« GC »). Dans cette méthode, l'échantillon est d'abord concentré en utilisant un tube cryogénique. Le principe repose sur l'équilibre de concentrations des composés présents entre deux phases en contact : la *phase stationnaire* (emprisonnée dans une colonne) et la *phase mobile* qui se déplace. Les composés constituant l'échantillon sont ensuite séparés dans la colonne sur base de leur entraînement différentiel. Ces constituants parcourent la colonne en des temps qui dépendent de leurs propriétés intrinsèques (taille, structure, ...) ou de leur affinité avec la phase stationnaire (polarité, ...) (Hewitt et al., 1995; Cao et Hewitt, 1999; Rinne, 2001).

Après séparation, les composés sont mesurés par des méthodes appropriées telles que le détecteur FID (Flame Ionization Detection) ou la spectrométrie de masse (MS).

Dans le FID, les composés venant de la colonne sont ionisés à l'aide d'une flamme très chaude. Ces ions sont alors accélérés à travers un senseur et le résultat est enregistré. Les composés sont identifiés par leur temps de rétention dans la colonne. Le FID est un détecteur non-sélectif sensible à presque tous les composés organiques volatils. Un des avantages du FID est qu'il permet la détection des vrais hydrocarbures (carbone-hydrogène) simplement à partir du nombre d'atomes de carbone de la molécule. Donc, calibrer l'instrument pour un seul hydrocarbure suffit pour déterminer la concentration de tous les autres. Ce n'est cependant pas le cas pour les autres composés organiques contenant de l'oxygène, de l'azote, des halogènes, etc. (Hewitt et al., 1995; Cao et Hewitt, 1999; Rinne, 2001).

En spectrométrie de masse (MS), les composés sont également ionisés, souvent par impact d'électrons. Les ions produits sont dirigés vers une fente dans l'analyseur de masse par lequel les ions de différentes masses sont séparés en utilisant un champ électrique variable.

Comme mentionné précédemment, l'analyseur rapide d'isoprène (Guenther et Hills, 1998) et le spectromètre de masse par réaction de transfert de proton (Lindinger et al., 1998; Karl et al., 2001) sont deux techniques permettant d'analyser rapidement divers composés.

D'autres méthodes (Hewitt et al., 1995; Cao et Hewitt, 1999; Rinne, 2001) existent, notamment pour la détection des composés oxygénés, que nous ne détaillerons pas ici.

3.2 Sites de mesure et résultats du modèle MOHYCAN

Pour évaluer les algorithmes d'émission et le modèle MOHYCAN, plusieurs sites de mesure ont été sélectionnés. Ces sites fournissent les mesures des variables météorologiques nécessaires comme entrées du modèle et des flux de composés organiques volatils permettant ainsi la comparaison des mesures avec le modèle. Les sites de mesure présentés ici sont :

1. Harvard Forest, Massachusetts, USA, en 1995
2. Deux sites de mesure lors de la campagne SAFARI 2000 en Afrique : Maun, Botswana, et Skukuza, République d'Afrique du Sud, en 2001

3. Deux séries de mesure lors de la campagne LBA : Tapajós, en 2000 et en 2001, en Amazonie.

La Figure 3.2 montre leur localisation géographique.

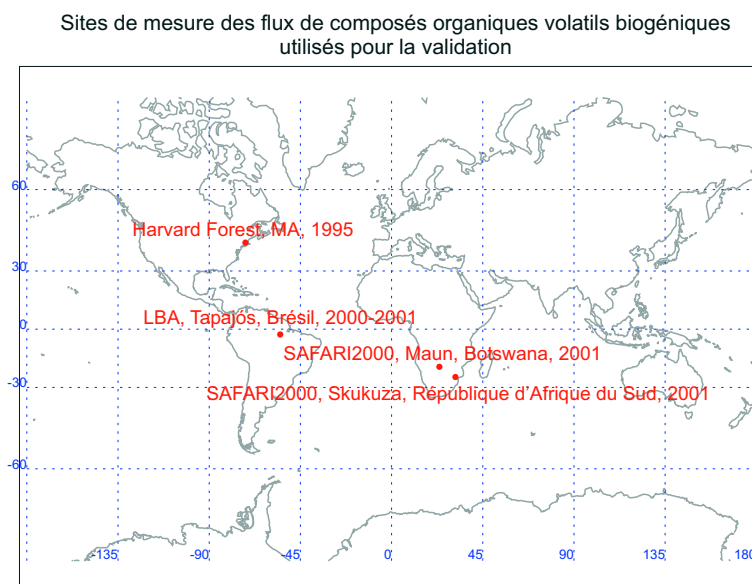


FIG. 3.2: Sites de mesure utilisés dans ce travail.

Dans la suite, nous présenterons, pour chaque campagne, une description du site, les données disponibles et les résultats du modèle MOHYCAN.

Des mesures complémentaires, spécifiques à chaque site de mesure nous ont permis de valider et de tester différents aspects du modèle et des algorithmes d'émission. Ces différents tests seront présentés dans le chapitre suivant.

3.2.1 Procédure pour la comparaison du modèle MOHYCAN avec les observations des campagnes

Sont mesurées en chacun des sites les grandeurs suivantes, nécessaires au modèle et à la validation des algorithmes :

- les flux d'émission de composés organiques volatils biogéniques (isoprène et/ou monoterpènes)
- l'éclairement visible (PAR) et/ou l'éclairement dans le proche infrarouge (NIR) et/ou l'éclairement solaire global au sommet de la canopée
- la température de l'air au sommet de la canopée
- l'humidité relative (ou la pression de vapeur d'eau) au sommet de la canopée
- la vitesse du vent (composante horizontale) au sommet de la canopée
- une description du site de mesure

Certaines données et hypothèses sont communes à toutes les campagnes. Dans cette section, nous allons décrire la procédure utilisée pour comparer les émissions obtenues avec le modèle et les mesures.

De manière générale, l'éclairement visible (PAR) mesuré au sommet de la canopée est utilisé comme entrée dans le modèle MOHYCAN mais également comme entrée dans le modèle radiatif atmosphérique. Ce dernier est utilisé pour déterminer l'épaisseur optique des nuages et les fractions diffuse et directe du rayonnement au sommet de la canopée. Lorsque cette grandeur n'est pas connue, elle peut néanmoins être déterminée à partir d'autres grandeurs observées telles que l'éclairement dans le proche infrarouge (NIR) ou l'éclairement solaire. L'éclairement solaire est approximativement donné par

$$Q_{SW} = 0.4 Q_{PAR} + 0.6 Q_{NIR} \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (3.9)$$

en faisant l'hypothèse que la partie UV du spectre solaire peut être négligée (*Goudriaan et van Laar, 1994*).

Si l'éclairement dans le proche infrarouge (NIR) n'est pas mesuré, il peut alors être déterminé à partir des observations de l'éclairement visible (PAR) et/ou de l'éclairement solaire (la partie UV étant négligée) : soit à partir de l'équation 3.9 si seul l'éclairement visible (PAR) est mesuré, soit à partir des mesures des éclairements visible et solaire.

La date est exprimée en jour julien : par exemple le jour 1.5 représente le 1er janvier à 12h00. Toutes les données ont été mises à l'heure solaire vraie, c-à-d l'heure dépendant de la position du soleil au lieu considéré : à midi, la hauteur du soleil est maximale.

Les émissions de composés organiques volatils biogéniques (BVOC) ont été généralement estimées à l'aide de l'algorithme d'isoprène G97. La canopée a été divisée en 16 couches et les émissions ont été estimées en utilisant soit la température de la feuille (T_f), soit la température de l'air (T_{air}) à chaque niveau, pour les feuilles au soleil et les feuilles à l'ombre. Pour le calcul de la résistance stomatique, et donc pour la détermination de la température de la feuille, aucune mesure ne permet de déterminer le facteur de stress hydrique $f(\psi_f)$. Une hypothèse simple, basée sur les données climatologiques des précipitations et de la fréquence mensuelle des jours de pluie est utilisée pour déterminer ce facteur. La climatologie CRU¹ (*New et al., 1999, 2000*) a été utilisée à cet effet. Cette climatologie sera décrite au Chapitre 5. Les émissions ont ensuite été pondérées par les fractions correspondantes de feuilles au soleil et de feuilles à l'ombre et par la densité de feuillage présente dans la couche. L'émission totale par la canopée est alors la somme des émissions par les différentes couches.

Une température « effective » (T_{eff}), c-à-d la moyenne de la température des feuilles, pondérée par leurs contributions respectives à l'émission de la canopée, a été calculée pour plusieurs campagnes, et comparée à la température de l'air au sommet de la canopée.

¹Cf. Annexe A.

3.2.2 Harvard Forest, 1995

Description du site et des données

Le site de mesure environnemental de la forêt de Harvard a été établi en 1989. Il est automatisé et enregistre la concentration de diverses espèces chimiques, en plus des mesures générales environnementales. Ces espèces incluent les NO_y , NO_x , CO_2 , H_2O , O_3 , CO et plusieurs hydrocarbures. Les flux d'émission d'isoprène ont été mesurés, en continu, de juin à octobre 1995, à partir d'une tour de 30 m de haut (Goldstein et al., 1998) surplombant de 7 m la canopée. Les flux d'émission ont été calculés par la méthode du gradient. Le coefficient d'échange K_z a été déterminé en utilisant les mesures des flux et du gradient de concentration du CO_2 . L'air a été échantillonné au moyen d'un tube d'adsorption et analysé par GC-FID (Goldstein et al., 1998). La précision des mesures d'isoprène est estimée à 8% et les erreurs dues à l'hétérogénéité spatiale sont probablement inférieures à 10% (Goldstein et al., 1998).

La forêt de Harvard est située dans le Massachusetts, USA (42°32'N, 72°11'W; élévation 340m). C'est une forêt mixte tempérée. Elle est constituée d'environ 36.4% de chênes, principalement des chênes rouges (*Quercus rubra*), 21.8% d'érables rouges (*Acer rubrum*), de 16.2% de pins rouges (*Pinus resinosa*), de 15.6% de pruches du Canada (*Tsuga canadensis*), de 3.5% de bouleaux (*Betula lenta*, *Betula papyrifera*, *Betula alleghaniensis*), de 2.9% de pins blancs (*Pinus strobus*) et de 2.3% de cerisiers (*Prunus serotina*).

Ainsi, nous avons pour l'écosystème de la forêt de Harvard :

- 34.7% de résineux sempervirents (type de végétation 1 du modèle²) et
- 64.0% de feuillus à feuilles caduques (type de végétation 4 du modèle)

Les facteurs d'émission standard, ε , ont été estimés pour les types de végétation susmentionnés à partir de Guenther et al. (1994) :

- $\varepsilon_1 = 1.735 \times 10^{-2} \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$ et
- $\varepsilon_4 = 25.5 \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$

La hauteur de la canopée est fixée à 24 m (valeurs du modèle pour les 2 types de végétation présents).

Les données de mesure ont été prises du site internet (<http://www-as.harvard.edu/>). Celles-ci comprennent des mesures

- de flux d'isoprène,
- de la température de l'air à différentes hauteurs sur la tour (27.9 m, 22.6 m, 15.4 m, 7.6 m et 2.5 m),
- de l'humidité relative aux mêmes hauteurs,
- de l'éclairement visible (PAR) à deux hauteurs (29.0 m et 12.7 m),
- de la vitesse du vent au-dessus de la canopée,
- du rayonnement solaire au-dessus de la canopée.

Comme mentionné ci-dessus, les données de flux d'isoprène s'étendent de juin à octobre, tandis que les autres données sont enregistrées tout au long de l'année 1995.

²Cf. Annexe C.

Des mesures de l'indice de surface de feuille, LAI, au cours de l'année (Cf. Figure 3.3) nous ont également été fournies par C. Barford (communication personnelle) pour l'année 1999. Ces mesures ont été effectuées à l'aide de l'instrument LAI-2000 de LiCor, qui détermine l'indice de surface de feuille à partir de mesures optiques. Les mesures sont faites au-dessus et en dessous de la canopée pour déterminer l'interception de la lumière. L'indice de surface de feuille est alors calculé en utilisant un modèle de transfert radiatif dans la canopée végétale. L'indice de surface de feuille ne variant pas beaucoup d'une année à l'autre, ces données peuvent être utilisées pour représenter l'année 1995. L'indice de surface de feuille (LAI) sur la période d'été estimé par C. Barford pour les feuillus est d'environ $4-4.5 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$ et excède donc l'estimation fournie par (Goldstein et al., 1998), qui est de $3.5 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$. Cette valeur de l'indice de surface de feuille a été déterminée par la collecte de litière. Cette méthode n'est donc applicable qu'aux arbres à feuilles caduques.

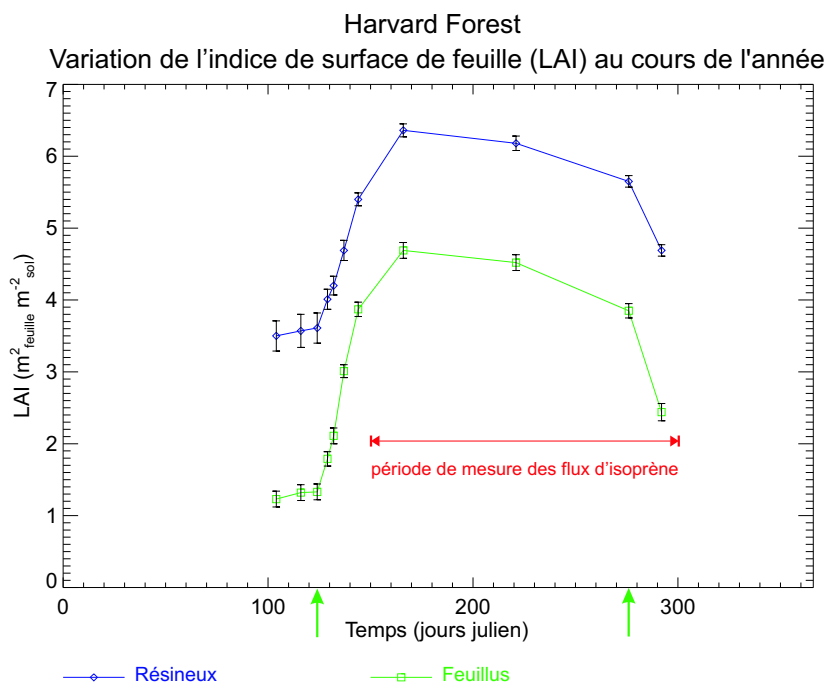


FIG. 3.3: Variation saisonnière de l'indice de surface de feuille (LAI) pour les types feuillus et conifère de la forêt de Harvard, d'après les mesures de C. Barford (communication personnelle) pour l'année 1999. Les flèches vertes indiquent approximativement le début de la pousse et de la chute des feuilles. La période de mesure des flux d'isoprène est indiquée par la flèche rouge.

Résultats du modèle MOHYCAN

La densité de feuille (D_f dans l'équation 2.1) est supposée proportionnelle à l'indice de surface de feuille, leur rapport étant obtenu du modèle MOHYCAN pour chaque type de végétation considéré.

Les émissions d'isoprène ont été calculées en utilisant l'algorithme d'émission G97 dépendant de la lumière et de la température (Eq.: 2.2, 2.3 et 2.4) pour la période de juin à octobre 1995. Le facteur de stress hydrique ($f(\psi_f)$) vaut 1 dans le calcul de la température de la feuille. Cette valeur est appuyée par les données CRU de précipitation (3 mm par jour) et de fréquence de jour de pluie (11 jours par mois) qui montrent que la forêt de Harvard n'est généralement pas en situation de stress hydrique.

Les résultats du modèle MOHYCAN sont illustrés, pour la période allant du jour 182 (1er juillet) au jour 188 (7 juillet), à la Figure 3.4 *a* et sont comparés aux mesures des flux d'isoprène. Les flux estimés sont systématiquement inférieurs aux flux mesurés. Cette différence est encore plus marquée lorsque la température de l'air T_{air} est utilisée dans le calcul du facteur de température C_T (Eq.: 2.3). En moyenne, sur toute la période de mesure, les flux d'isoprène estimés en utilisant la température de la feuille (G97- T_f) sont environ 1.4 fois plus faibles que les flux mesurés tandis que ceux utilisant la température de l'air (G97- T_{air}) sont environ 2.1 fois plus faibles. Les différences entre G97- T_f et G97- T_{air} sont plus marquées pour les jours clairs que pour les jours nuageux (Cf. jours 182 et 183 versus jours 184 et 185). Lorsque le ciel est nuageux, les feuilles sont moins chauffées par la lumière solaire et leur température se rapproche de la température de l'air (Cf. Figure 3.4 *c*). La Figure 3.4 *b* montre une comparaison des éclairagements visibles (PAR) mesuré à 29.0 m et calculé pour un ciel clair par le modèle radiatif atmosphérique. Nous y voyons effectivement que, pour les jours 182 et 183, l'éclairement visible (PAR) mesuré à 29.0 m est sensiblement inférieur à celui calculé pour un ciel clair. A titre indicatif, cette figure montre également l'éclairement visible (PAR) mesuré à 12.7 m, fortement atténué par le feuillage. Sur la Figure 3.4 *c*, la température effective (T_{eff}) est toujours supérieure à la température de l'air. Les différences les plus marquées se présentent lors des jours clairs avec des températures effectives jusqu'à 6.25°C (jour 185) plus élevées que la température de l'air.

La Figure 3.5 illustre la variation diurne des flux d'isoprène sur l'ensemble de la période de mesure (points). Les courbes représentent les moyennes sur des intervalles d'une heure des flux d'isoprène mesurés (en orange) et modélisés (en bleu et en vert). Bien que les courbes du modèle ressemblent à celle des mesures, ces dernières montrent un maximum plus élevé que les émissions modélisées, suggérant que le facteur de lumière C_L du modèle (Eq.: 2.2 et Figure 1.6) sature trop rapidement pour les valeurs élevées de l'éclairement visible (PAR). Notons aussi que les émissions mesurées sont plus faibles vers 6h00 et 18h00. L'écart-type, autour de la moyenne, des émissions mesurées est plus important que celui des émissions modélisées. En moyenne, l'écart-type pour les mesures vaut 1.36 mg C m⁻² h⁻¹ contre 1.08 et 0.70 mg C m⁻² h⁻¹ pour G97- T_f et G97- T_{air} respectivement.

De manière générale, sur toute la période de mesure de juin à octobre, l'algorithme G97 (Eq.: 2.2, 2.3 et 2.4) utilisé dans MOHYCAN reproduit très bien les variations d'un jour à l'autre des émissions, comme on peut le voir sur la Figure 3.6. Les flux modélisés d'isoprène montrés sur cette figure ont été multipliés par un facteur ad-hoc représentant le rapport entre la moyenne des flux calculés à celle des flux mesurés. Pour G97- T_{air} comme pour G97- T_f , le coefficient de corrélation modèle/mesures vaut environ 0.90 avec une légère amélioration pour G97- T_f . Notons qu'avant le jour 160 et après

Harvard Forest 1995

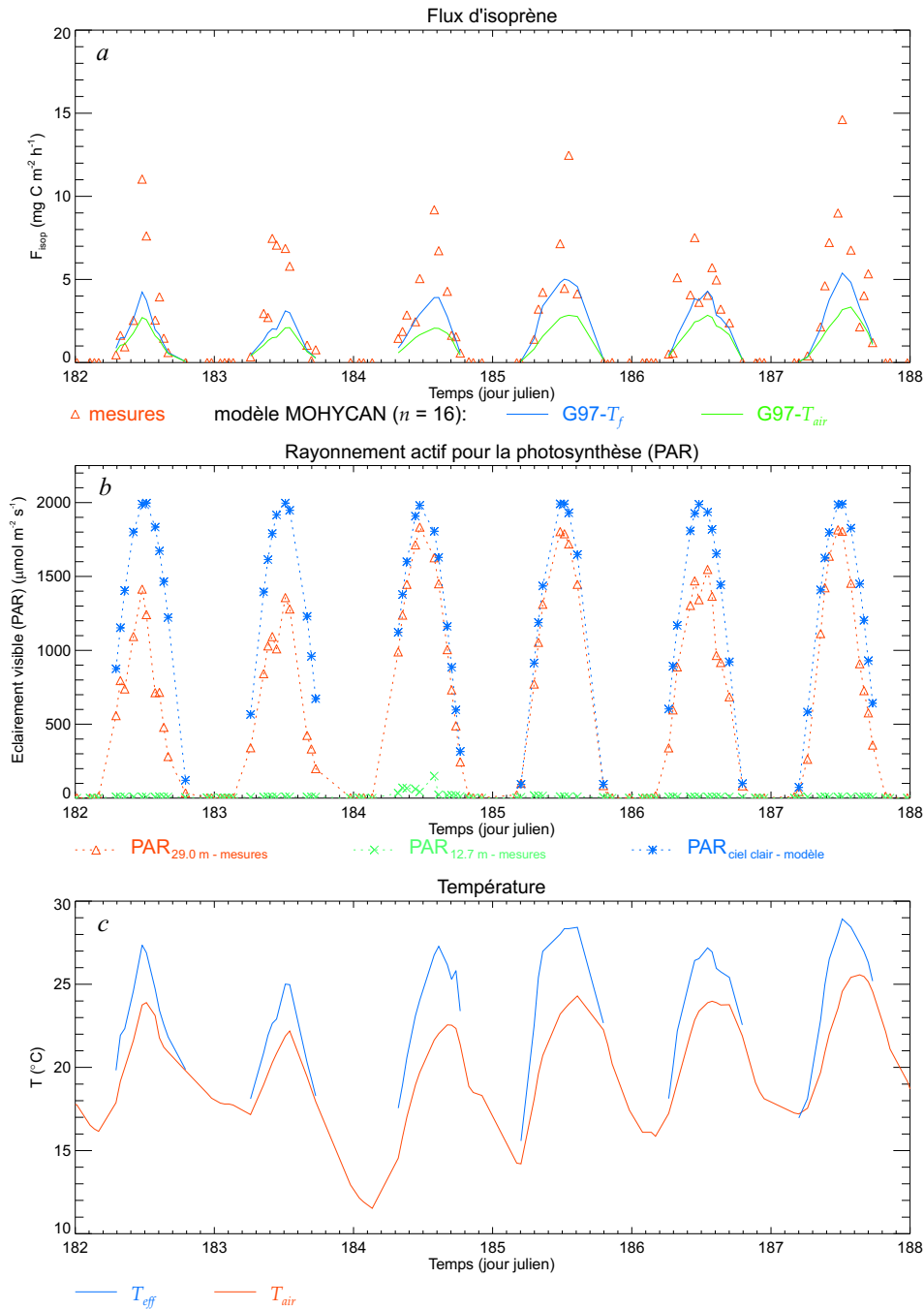


FIG. 3.4: (a) Comparaison des flux d'isoprène mesurés et estimés pour la forêt de Harvard. Les émissions sont estimées en utilisant soit la température de la feuille T_f (courbe bleue) soit la température de l'air T_{air} (courbe verte) dans l'équation 2.3. La figure (b) montre l'éclairement visible (PAR) mesuré à 29.0 m et à 12.7 m et l'éclairement visible (PAR) calculé pour un ciel clair. La figure (c) illustre la température de l'air observée (en orange) au sommet de la canopée et la température effective (en bleu) des feuilles pour le calcul des émissions d'isoprène (Cf. texte).

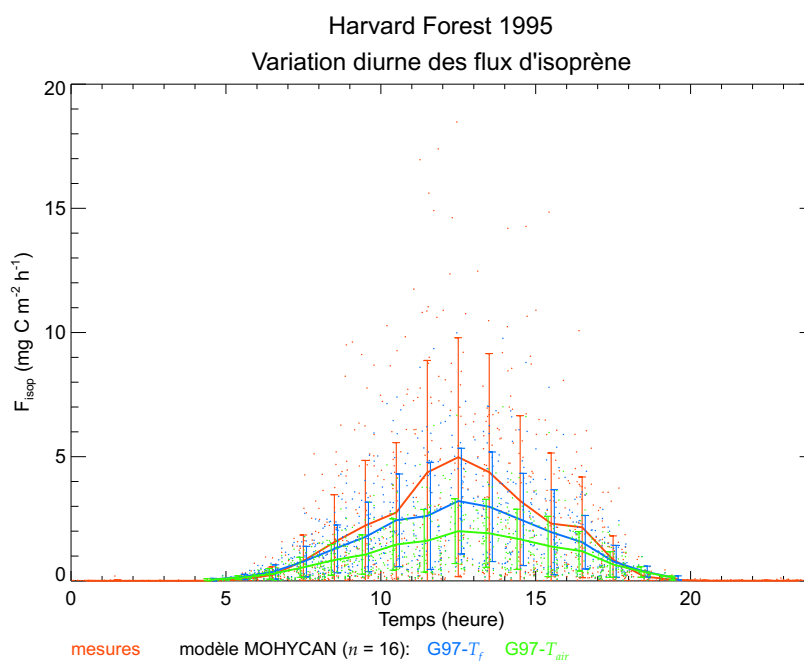


FIG. 3.5: Variation diurne des flux d'isoprène mesurés et estimés par le modèle MOHYCAN pour la période de juin à octobre 1995 pour la forêt de Harvard.

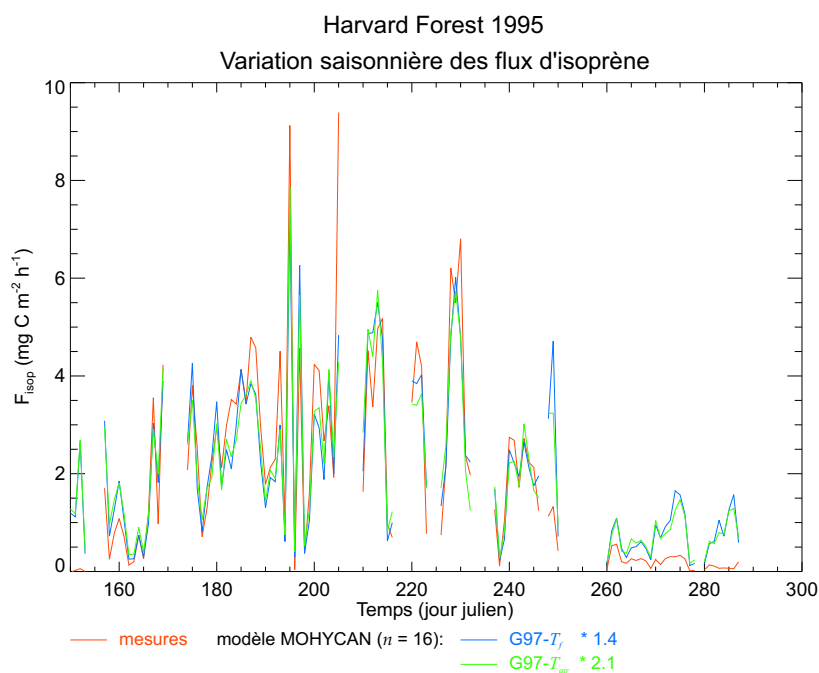


FIG. 3.6: Evolution, entre juin et octobre 1995, des moyennes diurnes des flux d'isoprène mesurés et modélisés pour la forêt de Harvard. Les flux modélisés ont été multipliés par un facteur ad-hoc (Cf. texte).

le jour 260, les émissions journalières moyennes modélisées sont systématiquement supérieures aux mesures. A ces périodes correspondent des changements importants de l'indice de surface de feuille (Cf. Figure 3.3) mais aussi des phénomènes physiologiques (croissance des jeunes feuilles au printemps, sénescence en automne) qui ne sont pas pris en compte dans l'algorithme d'isoprène.

Validation du transfert radiatif dans le modèle MOHYCAN

Les mesures de l'éclairement visible (PAR) effectuées à différentes hauteurs, au-dessus et dans la canopée, nous ont permis d'évaluer la paramétrisation du transfert radiatif utilisée dans le modèle. L'éclairement visible (PAR) mesuré à 12.7 m est comparé à celui calculé à cette hauteur à la Figure 3.7. Les courbes représentent les variations diurnes de la moyenne dans chaque intervalle d'une heure, des éclairements visibles (PAR) mesuré et modélisé. Dans l'ensemble, le modèle montre un très bon accord avec la mesure. L'intensité de la lumière dans la canopée est très variable en raison des variations très rapides de l'atténuation du rayonnement par les nuages au sommet de la canopée et par le feuillage. La prise de mesure de l'éclairement visible (PAR) dans la canopée dépend évidemment de la position précise de l'appareil : les mouvements des feuilles bougeant sous le vent influencent donc cette mesure. Les écart-types des mesures sont par conséquent plus grands que ceux du modèle.

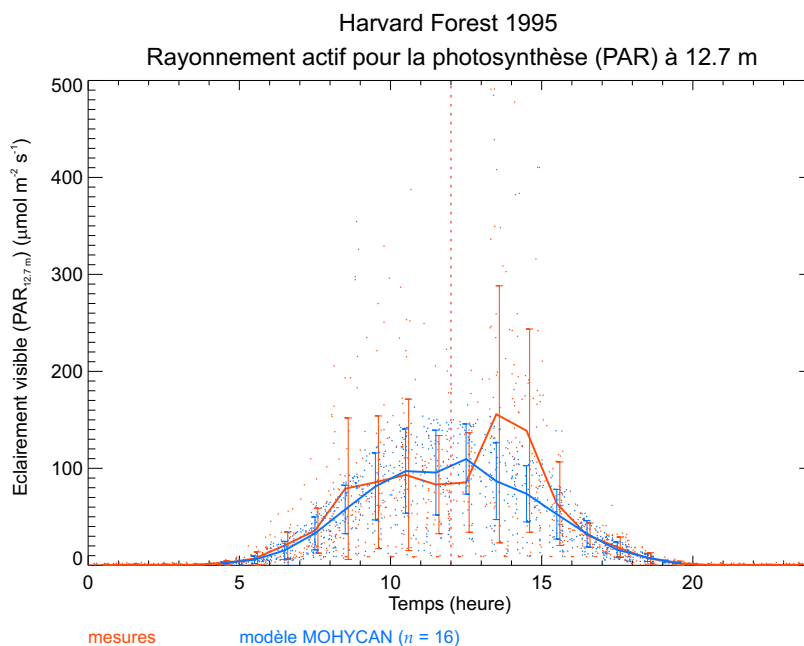


FIG. 3.7: Variation diurne de l'éclairement visible (PAR) à 12.7 m à la forêt de Harvard. Les courbes orange et bleue représentent les moyennes sur des intervalles d'une heure des éclairements visibles mesuré et calculé, respectivement. Les barres d'erreur représentent les écart-types autour de ces moyennes.

Comparaison de MOHYCAN avec un modèle simple

Dans le but de déterminer si un modèle plus simple peut également reproduire la réduction du rayonnement actif pour la photosynthèse (PAR) dans la canopée, nous avons développé un modèle simple en 8 couches qui ne calcule pas la température de la feuille et ne différencie pas les feuilles au soleil des feuilles à l'ombre. La réduction du PAR dans ce modèle suit une loi exponentielle, similaire à celle de Beer-Lambert, dépendant d'un facteur d'extinction κ : $Q_{PAR} \sim \exp(-\kappa L_c)$. Ce facteur peut-être soit tiré de la littérature (κ_{lit}), soit déterminé à partir de mesures au site considéré (κ_{mes}). A la forêt de Harvard, le rapport de l'éclairement visible (PAR) mesuré à 12.7 m à l'éclairement visible (PAR) mesuré à 29.0 m nous donne la réduction observée du PAR entre ces hauteurs. Ce rapport vaut 0.09, en moyenne sur toute la période. La valeur du coefficient d'extinction κ dépend de la valeur de la LAI totale utilisée, $5 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$ pour les conifères et $3.5 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$ pour les feuillus (Goldstein et al., 1998). Compte tenu de la quantité de LAI cumulée depuis le sommet de la canopée jusqu'au niveau considéré, ce coefficient κ_{mes} vaut 0.719. La Figure 3.8 montre les résultats obtenus pour l'éclairement visible (PAR) à 12.7 m en utilisant ce modèle simple ainsi que ceux obtenus avec le modèle MOHYCAN en 8 couches. Hormis le transfert radiatif et la différenciation des feuilles au soleil et à l'ombre, tous les autres paramètres sont égaux dans les deux modèles. Les courbes représentent à nouveau la variation diurne de la moyenne dans chaque intervalle d'une heure.

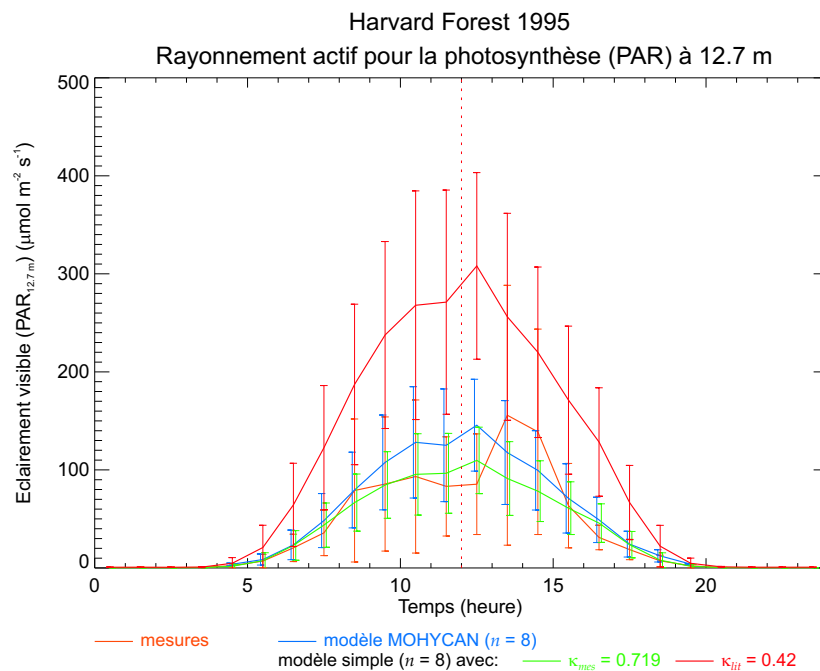


FIG. 3.8: Comparaison des éclairagements visibles (PAR) à 12.7 m mesuré et modélisés. Les éclairagements visibles modélisés ont été obtenus à l'aide d'un modèle simple en 8 couches (rouge et verte) et du modèle MOHYCAN également en 8 couches (bleu). Les barres d'erreur représentent les écart-types autour de ces moyennes.

Lorsque le coefficient d'extinction κ est déterminé à partir de la réduction observée du rayonnement actif pour la photosynthèse (PAR), le modèle simple (courbe verte) reproduit bien la mesure de l'éclairement visible (PAR). Par contre, lorsque ce coefficient est tiré de la littérature ($\kappa_{lit} = 0.42$, courbe rouge) (Denmead, 1976; Jarvis et al., 1976; Rauner, 1976; Baldocchi et al., 1984, 1985; Weiss et Norman, 1985; Lamb et al., 1993), l'éclairement visible (PAR) modélisé est beaucoup trop élevé par rapport aux mesures, la valeur de κ_{lit} étant beaucoup plus faible que celle de κ_{mes} (0.42 contre 0.719). Notons que l'éclairement visible (PAR), estimé à l'aide du modèle MOHYCAN en 8 couches, reproduit également bien les mesures, bien qu'il soit légèrement plus élevé que celui obtenu avec ce même modèle en 16 couches (Cf. Figures 3.7) en raison des différences de profils de l'indice de surface de feuille entre les deux cas. Compte tenu des barres d'erreur (écart-types), les résultats obtenus par MOHYCAN et par le modèle simple avec $\kappa_{mes} = 0.719$ s'accordent bien avec les mesures, au contraire des résultats obtenus par ce modèle simple avec $\kappa_{lit} = 0.42$. Le modèle simple ne donne donc de résultat satisfaisant qu'à la condition de pouvoir l'ajuster à l'aide de la réduction observée du PAR dans la canopée. Le modèle MOHYCAN reproduit bien l'atténuation du PAR dans la canopée, sans ajustement.

La Figure 3.9 illustre l'atténuation du PAR dans la canopée en fonction de l'angle zénithal (θ) pour les situations de ciel clair (épaisseur optique des nuages $\tau \leq 1$) (Fig. a) et de ciel nuageux ($\tau > 5$) (Fig. b). Dans les deux cas, le modèle reproduit généralement bien l'observation si l'on fait abstraction de la grande dispersion des mesures. Pour un ciel clair, le modèle comme les observations montrent que l'atténuation du rayonnement augmente avec θ pour $\theta \leq 80^\circ$ et diminue au-delà. Par contre, l'atténuation du rayonnement est essentiellement indépendante de l'angle zénithal dans le cas nuageux.

De façon à mieux comprendre ces résultats, nous avons utilisé le modèle MOHYCAN pour évaluer l'atténuation du rayonnement dans des conditions bien définies, à savoir, des angles zénithaux de 30° , 60° et 75° et des fractions diffuses au sommet de la canopée égales à 0.2 (typique d'un ciel clair) et à 1.0 (typique d'un ciel nuageux). La Figure 3.10 montre les résultats pour les caducifoliés (a) et les résineux (b). De manière générale, l'atténuation du PAR dans la canopée est indépendante de l'angle zénithal pour une fraction diffuse égale à 1 et la pénétration est la plus efficace dans le cas de faibles valeurs de l'angle zénithal lorsque la fraction diffuse est faible. Notons que l'augmentation avec l'angle zénithal du rapport de l'éclairement (mesuré ou modélisé) à 12.7 m à l'éclairement mesuré à 29.0 m pour $80^\circ \leq \theta < 90^\circ$, que l'on constate à la Figure 3.9 a, peut s'expliquer par l'augmentation rapide de la fraction diffuse du rayonnement à ces angles zénithaux pour un ciel clair. Une régression exponentielle des résultats montrés à la Figure 3.10 ($Q_{PAR}(L_c) = Q_{PAR}(0) \exp(-\kappa_{ap} L_c)$) donne différentes valeurs du coefficient d'extinction apparent κ_{ap} selon l'angle zénithal et la fraction diffuse, comme montré sur la figure. La valeur tirée de la littérature ($\kappa_{lit} = 0.42$) est proche de κ_{ap} pour les faibles valeurs de l'angle zénithal et de la fraction diffuse. La valeur de κ_{mes} (= 0.719) déduite de la réduction observée du PAR en moyenne sur la période de mesure est élevée par rapport aux résultats de la Figure 3.10, en raison d'une influence prépondérante des grands angles zénithaux sur la moyenne. La LAI totale n'a que peu d'influence sur les valeurs des coefficients d'extinction. La différence entre les valeurs du coefficient d'ex-

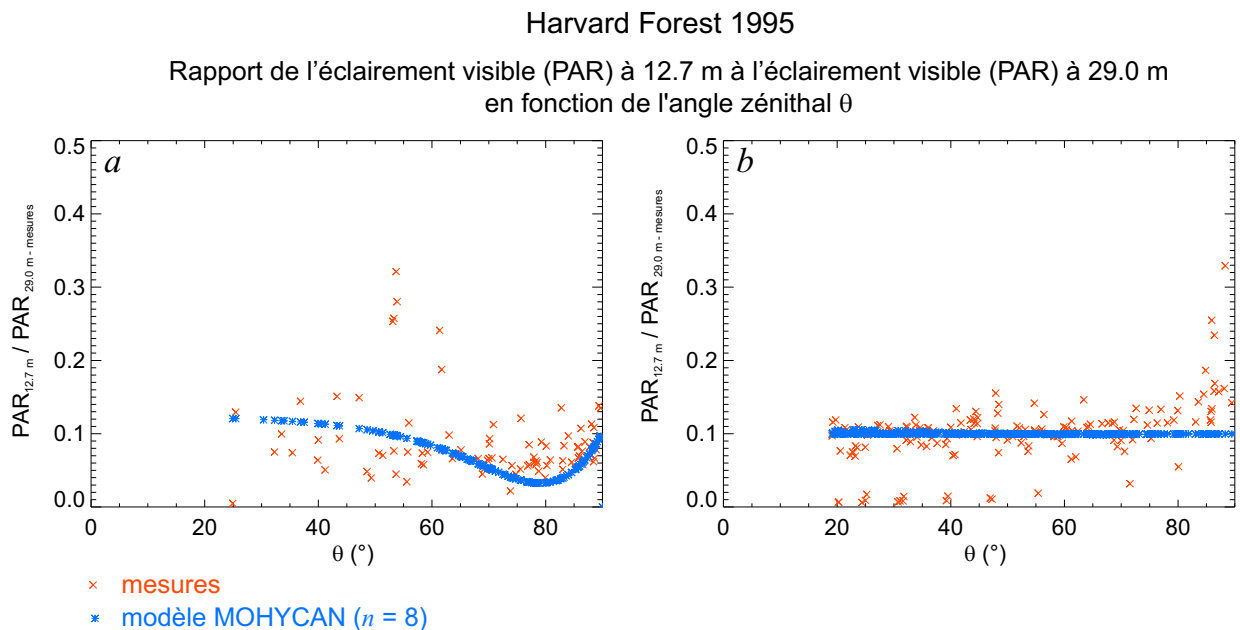


FIG. 3.9: Réduction du rayonnement actif pour la photosynthèse (PAR) dans la canopée en fonction de l'angle zénithal (θ) à la forêt de Harvard : (a) pour un ciel clair (épaisseur optique des nuages $\tau \leq 1$) et (b) pour un ciel nuageux ($\tau > 5$). Les croix oranges et les astérisques bleus indiquent le rapport, respectivement, des éclaircements visibles (PAR) mesuré et modélisé à 12.7 m à l'éclairement visible (PAR) mesuré à 29.0 m.

tion pour les caducifoliés et les résineux provient de la différence entre les facteurs de cluster, plus proche de 1 pour les conifères.

Les émissions d'isoprène estimées avec le modèle simple et κ_{mes} sont légèrement supérieures à celles estimées avec le modèle MOHYCAN utilisant la température de l'air (environ 10% en moyenne sur la période de mesure). Comme l'éclairement visible (PAR) dans la canopée est très proche dans les deux cas, la principale différence entre ces deux modèles vient de la différenciation des feuilles au soleil et des feuilles à l'ombre. Dans le cas du modèle simple avec κ_{lit} , les flux estimés sont en moyenne environ 45% plus élevés que ceux estimés à l'aide du modèle MOHYCAN. Notons que les émissions d'isoprène estimées à l'aide du modèle MOHYCAN en 16 et 8 couches ne présentent qu'une différence inférieure à 1%.

Ces différents résultats indiquent que le modèle MOHYCAN donne des résultats similaires au modèle simple en 8 couches mais à l'avantage de ne pas demander d'ajustement à l'aide d'informations supplémentaires sur la réduction du PAR dans la canopée. En outre, MOHYCAN permet de déterminer la température de la feuille.

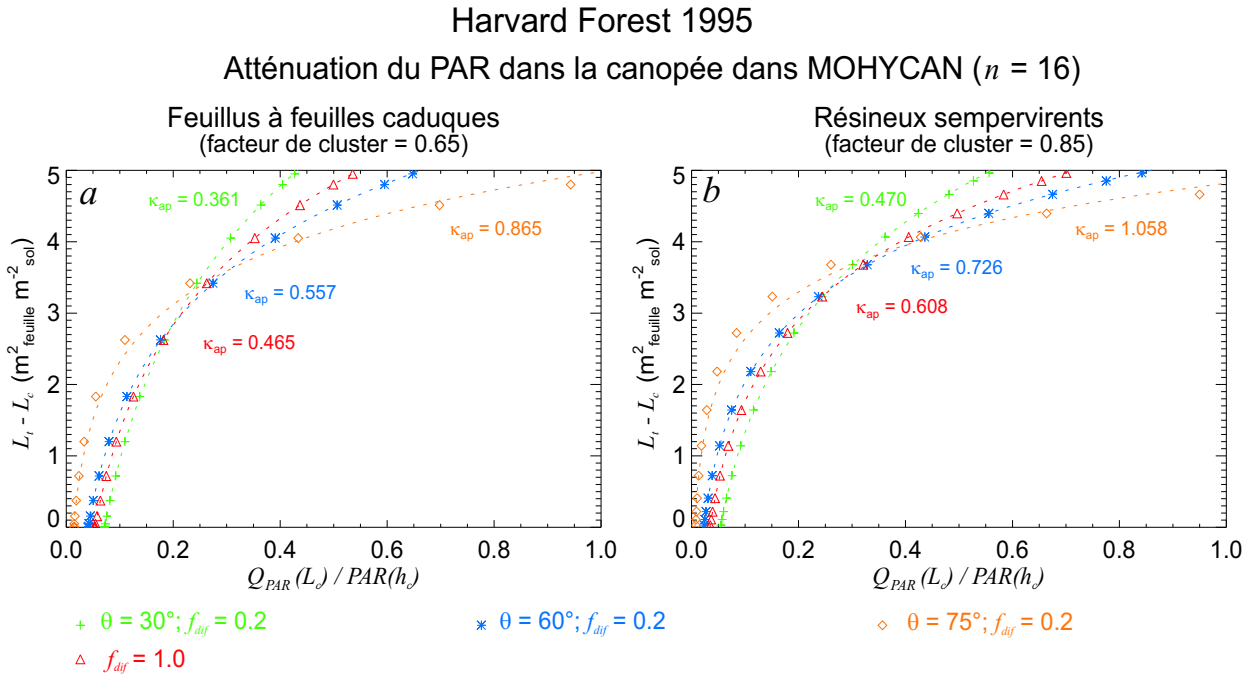


FIG. 3.10: Atténuation du rayonnement actif pour la photosynthèse dans la canopée, pour différents angles zénithaux et différentes fractions diffuses (f_{dif}). L_t et L_c représentent respectivement la LAI totale prise égale à $5 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$ et la LAI cumulée à une hauteur z dans la canopée. $Q_{PAR}(L_c)$ est l'éclairement visible (PAR) reçu sur une feuille cette hauteur et $PAR(h_c)$ est l'éclairement visible (PAR) au sommet de la canopée (h_c) sur une surface horizontale. Les symboles sont les résultats obtenus à l'aide du modèle MOHYCAN. Les courbes de régression ainsi que les valeurs correspondantes du coefficient d'extinction (voir texte) sont également montrées.

3.2.3 Campagne SAFARI 2000

SAFARI (Southern African Regional Science Initiative) 2000 est une initiative scientifique internationale visant à quantifier les émissions et leurs impacts dans le Sud de l'Afrique. Deux sites de mesure ont été étudiés dans ce travail : Maun et Skukuza. Pour les deux sites, les flux d'hydrocarbures ont été mesurés par REA (technique de Relaxed Eddy Accumulation, décrite à la Sous-section 3.1.1). Des pièges adsorbants ont été utilisés pour collecter les hydrocarbures qui ont été analysés par GC-FID et GC-MS en laboratoire.

Maun, 2001

Description du site et des données

Le site de Maun est décrit comme un paysage boisé de mopanes (petits feuillus). Il est situé à environ 20 km au Nord-Est de Maun, au Botswana ($19^\circ 92'S$, $23^\circ 59'E$) dans

une région boisée formée de grandes étendues monospécifiques de *Colophospermum mopane*. La composition est de 90% de *Colophospermum mopane*, 3% de *Grewia flava*, 1% de *Terminalia sericea* et 1% de *Rhus tenuinervis* (communication personnelle de A. Guenther et L. Otter). Les différentes espèces formant cet écosystème correspondent à :

- 91% de feuillus à feuilles caduques (type de végétation 4 dans MOHYCAN) et
- 9% de broussailles (type de végétation 5 dans MOHYCAN).

La hauteur des feuillus a été fixée à 10 m et la hauteur de la base du feuillage à 2 m. Les caractéristiques du modèle³ sont utilisées pour caractériser les broussailles. La longueur et la largeur des feuilles des types de végétation du modèle MOHYCAN ont été modifiées de manière à représenter, au mieux, cet écosystème : largeur $l_f = 0.035$ m et longueur $L_f = 0.075$ m.

Les émissions de monoterpènes (α -pinène) ont été enregistrées durant la saison des pluies, du 29 janvier au 9 février 2001 (*Greenberg et al.*, 2003). Le *Colophospermum mopane* s'est montré fort émetteur de monoterpènes. Les émissions d' α -pinène excèdent $3 \text{ mg C m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ durant le jour, et sont beaucoup plus élevées que les flux de terpènes mesurés dans la plupart des régions (*Greenberg et al.*, 2003). Les émissions de monoterpènes ont montré une dépendance en lumière et en température. L'algorithme d'isoprène G97 sera dès lors utilisé pour estimer les émissions avec le modèle MOHYCAN. Les émissions standard ε d' α -pinène pour les deux types de végétation du modèle MOHYCAN sont fixées à :

- $\varepsilon_4 \sim 40.5 \mu\text{g g}^{-1} \text{ h}^{-1}$ résultant de la valeur de ε pour l'espèce dominante, *Colophospermum mopane*, prise égale à $45 \mu\text{g g}^{-1} \text{ h}^{-1}$ (A. Guenther et P. Harley, communication personnelle ; *Greenberg et al.* (2003); *James et al.* (2003)) et
- $\varepsilon_5 \sim 7.5 \times 10^{-2} \mu\text{g g}^{-1} \text{ h}^{-1}$

L'indice de surface de feuille (LAI) et la densité foliaire mesurés valent respectivement :

$1.0 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$ et $90 \text{ g}_{\text{feuille}} \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$ pour les feuillus (type de végétation 4) et $1.0 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$ et $130 \text{ g}_{\text{feuille}} \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$ pour les broussailles (type de végétation 5). Ces faibles valeurs de l'indice de surface de feuille sont appuyées par les estimations basées sur les mesures MODIS⁴ (mesures par satellite de l'indice de surface de feuille).

Les éclaircements visible (PAR) et solaire global, la température de l'air, l'humidité relative et la vitesse du vent ont également été mesurés à Maun en janvier-février 2001. La climatologie CRU donne, pour le site de Maun, en moyenne pour janvier et février : 3.75 mm de pluie par jour et une fréquence de 11.9 jours de pluie par mois. Par contre, des mesures de précipitation pour la période de mesure montrent qu'il n'a plu que vers la fin de cette période. Compte tenu de ces considérations et du fait que la savane africaine est une région aride, le facteur de stress hydrique $f(\psi_f)$ est pris égal à 0.5 dans le calcul de la température de la feuille. La sensibilité des résultats au choix de ce facteur sera examinée au chapitre suivant. Tous les autres paramètres du modèle sont restés inchangés.

³Cf. Annexe C.

⁴Cf. Annexe A.

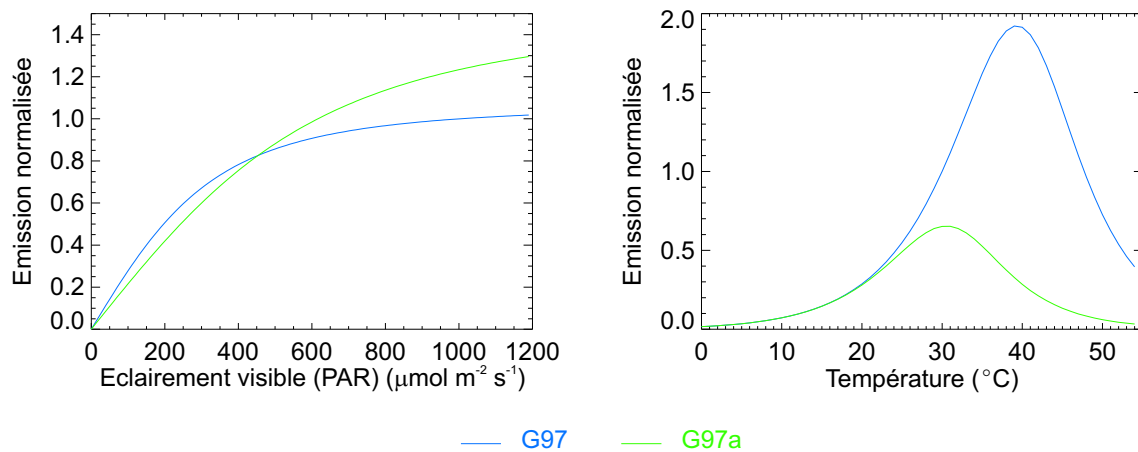


FIG. 3.11: Comparaison des réponses des émissions d' α -pinène aux facteurs environnementaux (lumière et température) dans les algorithmes G97 (en bleu) et G97a (en vert).

Des mesures en enclos sur le site de Maun ont montré des réponses aux facteurs environnementaux (lumière et température de la feuille) différentes de celles données par l'algorithme G97. Celui-ci est dès lors ajusté pour tenir compte de ces différences avec $\alpha = 0.00146$ et $C_{L1} = 1.495$ dans l'équation 2.2 et $T_M = 305$ K dans l'équation 2.3 (P. Harley, communication personnelle). Cet algorithme adapté sera noté « G97a ». La Figure 3.11 illustre la comparaison des réponses aux facteurs environnementaux des algorithmes G97 et G97a.

On voit que les émissions saturent moins vite pour les valeurs élevées de l'éclairement visible (PAR) dans le cas G97a : au-delà de $1000 \mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$, les émissions sont relativement constantes dans le cas de G97 mais augmentent encore de manière continue dans le cas de G97a. Les deux courbes de réponse à la température diffèrent davantage : la valeur de la température optimale étant déplacée (environ 40°C dans G97 contre environ 30°C dans G97a), l'impact sur les émissions sera d'importance, étant données les très hautes températures enregistrées sur le site de Maun (Cf. Figure 3.12 c).

Résultats du modèle MOHYCAN

Les émissions d' α -pinène ont été calculées avec les algorithmes d'isoprène G97 et G97a. Les résultats sont montrés à la Figure 3.12. Les flux d' α -pinène estimés avec G97a sont généralement plus proches des mesures que ceux estimés avec G97. Ces différences sont plus marquées pour les jours clairs (par exemple, les jours 31 et 33). En moyenne sur toute la période, les flux d' α -pinène estimés avec $G97-T_f$ valent environ le double des émissions mesurées tandis que ceux estimés avec $G97a-T_f$ ne sont qu'environ 17% plus élevés que les mesures. Les émissions estimées avec $G97-T_f$ sont légèrement plus élevées (16.5% en moyenne) que celles estimées avec $G97-T_{air}$ tandis que c'est plutôt l'inverse qui se produit avec G97a (2% de différence en moyenne). Ces

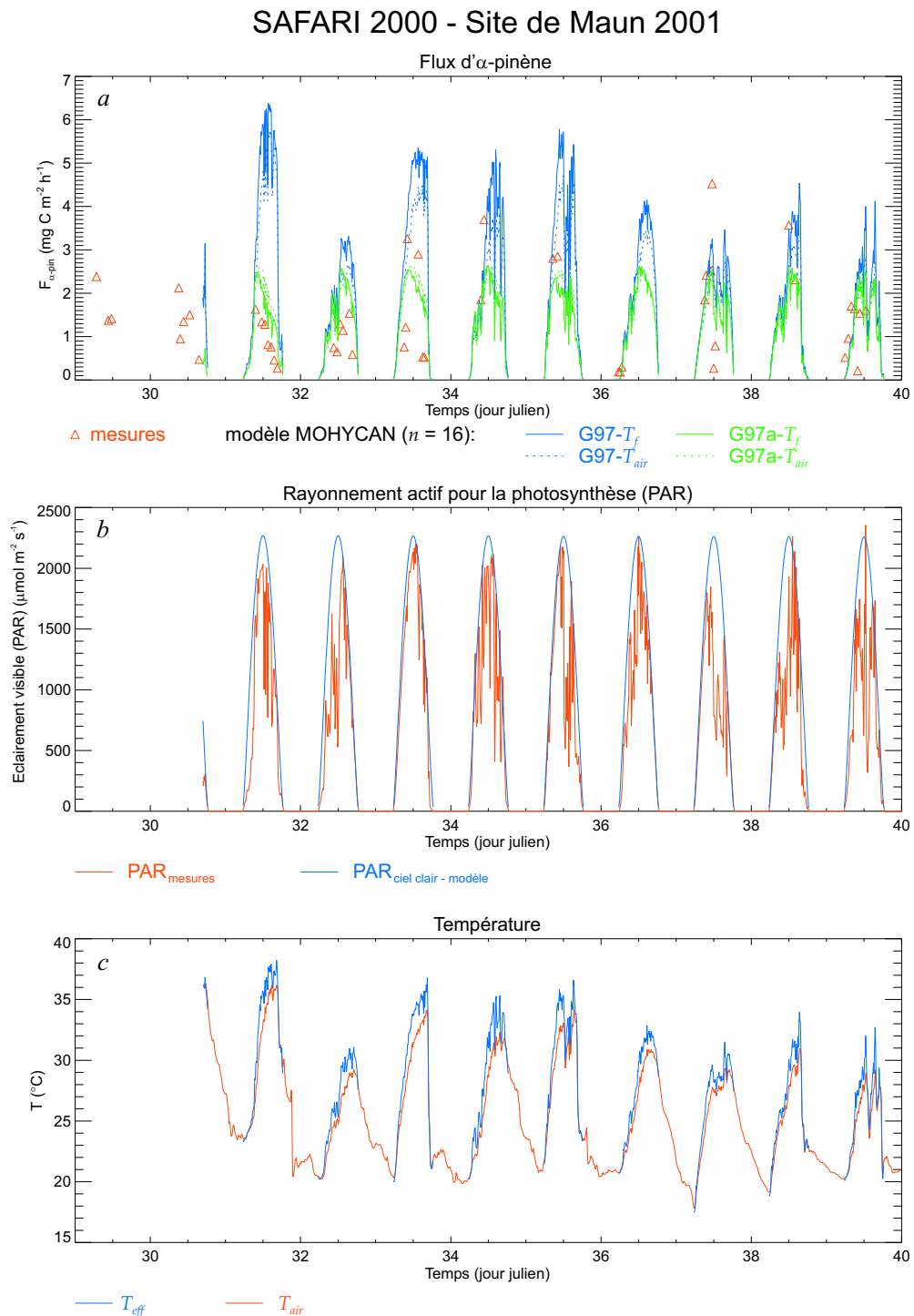


FIG. 3.12: (a) Comparaison des flux d' α -pinène mesurés et estimés à l'aide du modèle MOHYCAN ($n = 16$) pour le site de Maun. La figure (b) illustre l'éclairement visible (PAR) mesuré au sommet de la canopée et la valeur estimée pour un ciel clair à l'aide du modèle radiatif atmosphérique. La figure (c) montre la température de l'air (en orange) au sommet de la canopée et la température effective (en bleu) pour les émissions prédites par le modèle MOHYCAN.

différences s'expliquent par le facteur de réponse des émissions à la température selon G97 et G97a (Figure 3.11) et par les températures particulièrement élevées observées le jour, jusqu'à 35°C (Figure 3.12 c). A cette température, les émissions sont nettement plus faibles avec G97a qu'avec G97, et elle décroissent lorsque cette température est augmentée (Cf. Figure 3.11). La température moyenne des feuilles étant supérieure à la température de l'air (la différence pouvant même atteindre près de 4°C), les émissions calculées avec G97a sont donc plus faibles avec T_f qu'avec T_{air} (partie descendante de la courbe verte). Par contre, pour G97, c'est l'inverse qui se produit (partie ascendante de la courbe bleue) (Cf. Figure 3.11).

La Figure 3.13 montre les variations diurnes des émissions d' α -pinène, de l'éclairement visible (PAR) et de la température de l'air. Les courbes indiquent la variation diurne des moyennes dans chaque intervalle d'une heure. Ici encore, nous constatons la nette différence entre les émissions estimées avec G97 et G97a. A nouveau, les émissions estimées avec G97a sont beaucoup plus proches des mesures que les émissions modélisées avec G97. Celles-ci montrent un pic dans l'après-midi dû aux valeurs élevées de la température entre 15h00 et 16h00. Par contre, les émissions estimées avec G97a montrent un pic plus proche de midi : la fonction de réponse des émissions à la température variant peu selon G97a dans les conditions prévalant l'après-midi (températures voisines de 30°C), c'est la lumière qui est alors le facteur dominant qui influence les émissions. Les émissions estimées avec G97a suivent donc plutôt l'évolution de l'éclairement visible (PAR) au cours de la journée, tandis que celles estimées avec G97 suivent l'évolution de la température (Cf. Figures 3.11 et 3.13 b et c).

En conclusion, l'algorithme d'isoprène G97 utilisé au site de Maun pour estimer les émissions d' α -pinène reproduit moyennement bien les émissions mesurées. L'algorithme G97 adapté à ce site (G97a) montre un meilleur accord avec les mesures. Divers tests de sensibilité liés à ce site seront présentés dans le chapitre suivant.

Skukuza, 2001

Description du site et des données

Skukuza est situé dans le Parc National de Kruger en République d'Afrique du Sud (25°01.184'S, 31°29.813'E ; élévation 365 m). La végétation est principalement de la savane. La tour de 21 m de haut surplombe deux types de végétation différents : on y mesure les échanges entre l'atmosphère et (1) la savane *Combretum* quand le vent vient du Nord-Ouest et (2) la région boisée d'*Acacia* quand le vent souffle du Sud-Est (Figure 3.14) (communication personnelle de A. Guenther et L. Otter) (*Scholes et al.*, 2001; *Harley et al.*, 2003).

Les émissions d'isoprène ont été enregistrées en février 2001, lors de la saison humide. Les maxima des flux d'isoprène sont atteints vers midi et valent en moyenne 0.3 mg C m⁻² h⁻¹. Ces faibles valeurs s'accordent avec des mesures en enclos. Seulement une espèce émettrice d'isoprène, l'*Acacia nigrescens*, est présente en quantité significative, et elle représente moins de 10% de la biomasse de bois (*Harley et al.*, 2003).

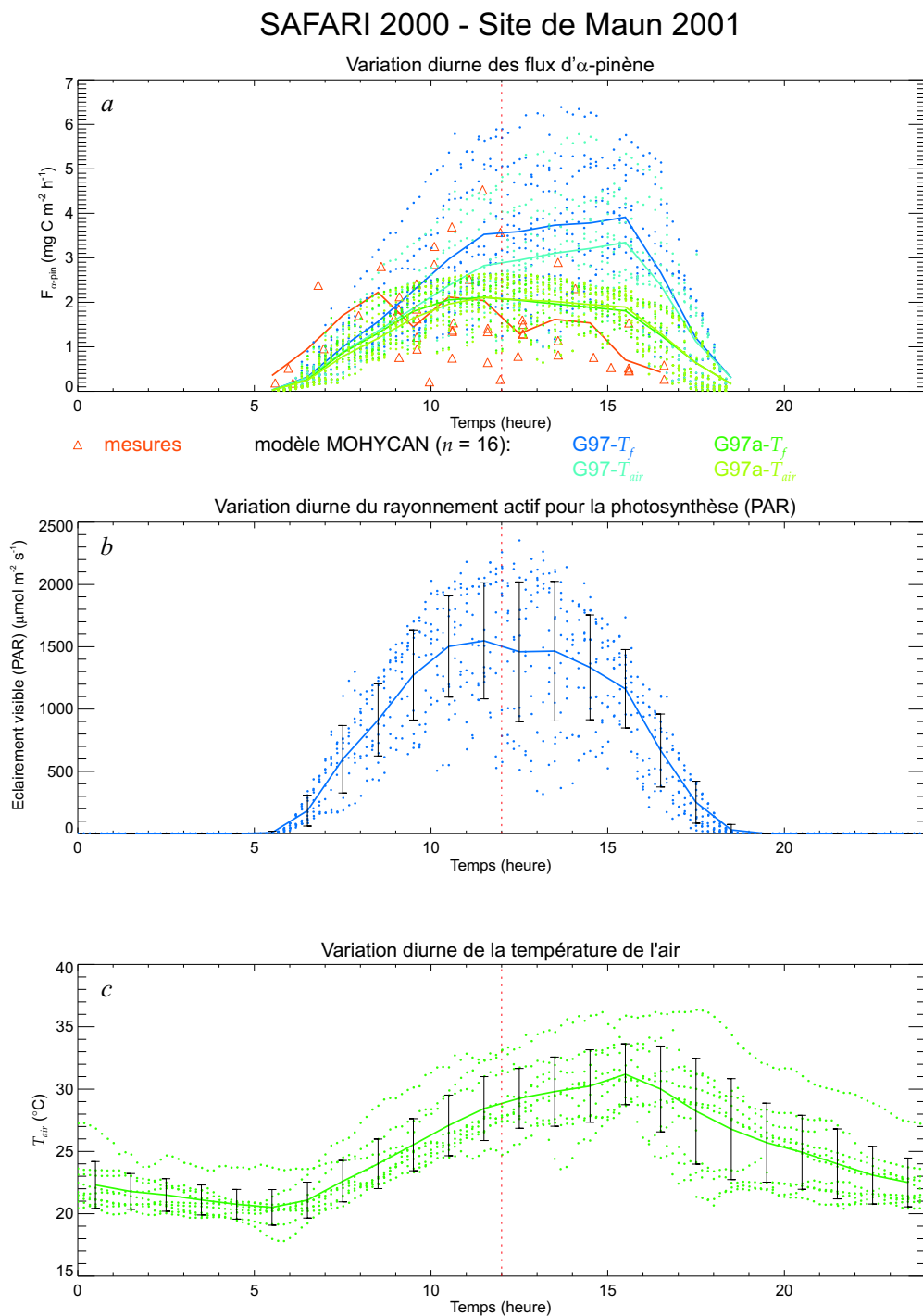


FIG. 3.13: (a) Variation diurne des flux d' α -pinène mesurés et estimés à l'aide du modèle MOHYCAN ($n = 16$) pour Maun. Variations diurnes de l'éclairement visible (PAR) (b) et de la température de l'air (c). Les courbes indiquent la variation diurne des moyennes dans chaque intervalle d'une heure. Les barres d'erreur représentent les écart-types autour de ces moyennes.

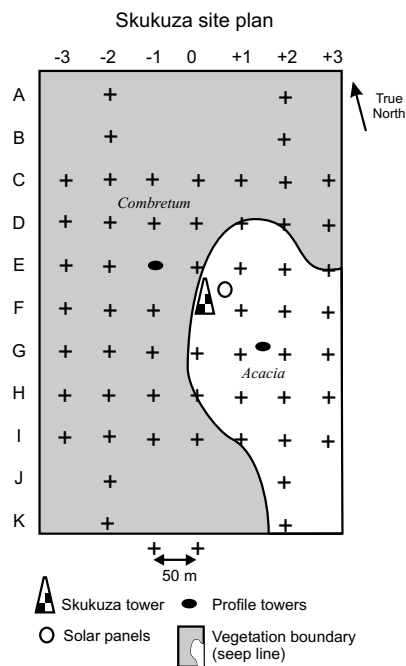


FIG. 3.14: Plan du site de Skukuza, d'après Scholes *et al.* (2001).

Etant données les sources d'erreur associées à la technique REA (Bowling *et al.*, 1998) et les différences faibles entre les concentrations d'isoprène mesurées dans les deux réservoirs (up et down) par rapport aux incertitudes liées à la technique analytique (GC-MS), les flux obtenus par cette technique sont hautement incertains. Etant donnée l'absence de source homogène significative d'isoprène, la variabilité considérable des flux n'est pas surprenante (Cf. Figure 3.15). Cependant, les flux d'isoprène ne semblent pas être corrélés à la direction du vent (Harley *et al.*, 2003).

La végétation peut être classée comme suit : 33% de *Combretum apiculatum*, 25% de *Sclerocarya birrea*, 20% d'*Acacia nilotica* et 10% d'*Acacia nigrescens*. Dans le modèle MOHYCAN, les caractéristiques des types de végétation⁵ ont été quelque peu modifiées pour représenter au mieux les espèces rencontrées dans l'écosystème de Skukuza. Ainsi, nous avons :

- 58% de feuillus à petites feuilles caduques (type de végétation 4 adapté, il sera noté « 4p »),
- 30% de feuillus à très petites feuilles caduques (type de végétation 4 adapté, il sera noté « 4pp ») et
- 12% de broussailles (type de végétation 5)

La longueur des feuilles L_f est fixée à 0.075 m pour chaque type de végétation et la largeur l_f dépend du type de végétation : pour les types de végétation 4p et 5, $l_f = 0.035$ m et pour le type de végétation 4pp, $l_f = 0.005$ m. La hauteur des feuillus (type de végétation 4) est fixée à 10 m et la profondeur de la canopée à 80% de la hauteur totale.

⁵Cf. Annexe C.

Pour les broussailles (type de végétation 5), les caractéristiques du modèle (hauteur et profondeur de la canopée) sont utilisées telles quelles. Des mesures de l'indice de surface de feuille (LAI) et de la densité foliaire remplacent les valeurs du modèle. On a alors pour l'indice de surface de feuille : $LAI_{4p,4pp,5} = 0.67 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$ et pour la densité foliaire : $D_{f-4p,4pp} = 88 \text{ g}_{\text{feuille}} \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$ et $D_{f-5} = 130 \text{ g}_{\text{feuille}} \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$. Les facteurs d'émission standard ε ont été déterminés à partir des valeurs pour chaque espèce et de leur proportion dans l'écosystème (Guenther et al., 1994, 1995). On a :

- $\varepsilon_{4p} \sim 2.52 \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$,
- $\varepsilon_{4pp} \sim 5.8 \times 10^{-2} \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$ et
- $\varepsilon_5 \sim 1.92 \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$

En général, durant cette période de mesure, le temps était ensoleillé, chaud à très chaud et sec. Des mesures de la température de l'air, de l'humidité relative, du rayonnement solaire incident, du rayonnement proche infrarouge et de la vitesse du vent ont été enregistrées au sommet de la tour. La climatologie CRU nous donne, pour la période de mesure considérée, des précipitations moyennes de 4.1 mm par jour et une fréquence d'environ 10 jours de pluie par mois. Une valeur de 0.5 pour le facteur de stress hydrique ($f(\psi_f)$) dans le calcul de la résistance stomatique a été adoptée.

Résultats du modèle MOHYCAN

Les émissions d'isoprène ont été calculées à l'aide de l'algorithme d'isoprène G97.

La Figure 3.15 montre les variations diurnes des flux d'isoprène. Les courbes indiquent la variation diurne de la moyenne des flux dans chaque intervalle d'une heure. Comme les flux mesurés sont très faibles et souvent de l'ordre de la limite de détection, leurs incertitudes sont très grandes. Les courbes oranges en traits pleins et en tirets indiquent les moyennes respectivement des flux mesurés positifs et de tous les flux mesurés : les flux négatifs sont un artefact des mesures et modifient leur moyenne. Bien que la courbe orange en tirets soit plus représentative des mesures prises, le modèle montre un meilleur accord avec la courbe orange en traits pleins. Le modèle reproduit relativement bien les mesures, bien que celles-ci montrent une augmentation plus brutale pendant la matinée : les émissions mesurées sont plus faibles en début de matinée mais plus élevées vers midi. A titre indicatif, les flux estimés avec $G97-T_f$ et T_{air} sont environ respectivement 67% et 37% plus élevés que les mesures. Ces valeurs sont obtenues en prenant la moyenne sur toute la période des mesures (y compris les mesures négatives).

Le site de Skukuza a également été utilisé pour comparer les résultats de notre modèle MOHYCAN avec un autre modèle de canopée existant. La section suivante présente cette comparaison.

Comparaison du modèle MOHYCAN avec un autre modèle existant

Le modèle de canopée développé par Laurens Ganzeveld (Ganzeveld, 2001) est approprié pour comparer les émissions obtenues avec ce modèle et le modèle MO-

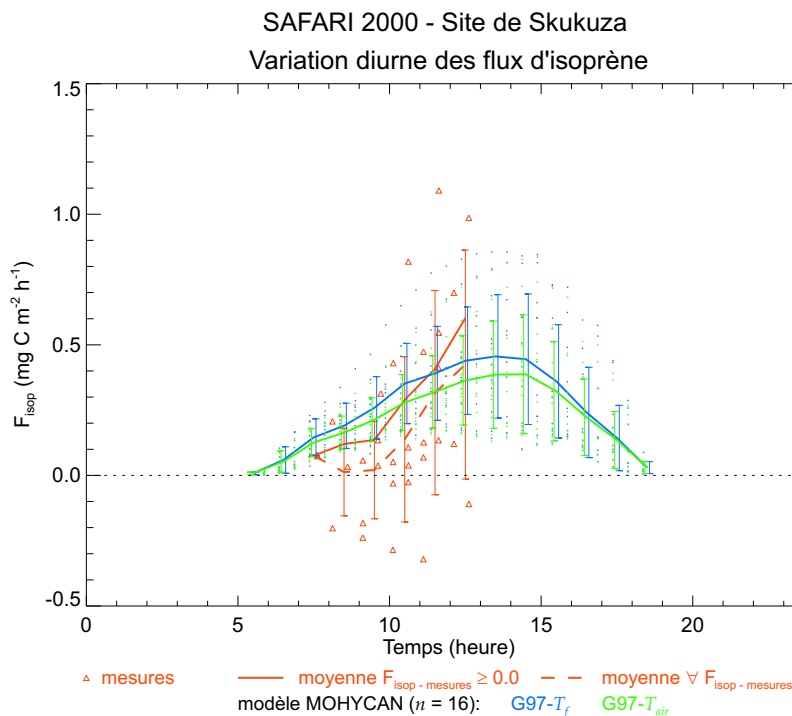


FIG. 3.15: Variation diurne des flux d'isoprène mesurés et estimés à l'aide du modèle MOHYCAN ($n = 16$) pour Skukuza. Les courbes indiquent la variation diurne de la moyenne dans chaque intervalle d'une heure. Les barres d'erreur représentent les écart-types autour de ces moyennes.

HYCAN. Dans le modèle de Ganzeveld, les émissions d'isoprène sont calculées selon *Guenther et al.* (1995) comme une fonction du facteur d'émission standard ε spécifique de l'écosystème, du rayonnement à la surface, de la température, de la densité foliaire et de sa distribution verticale. Le modèle original de *Guenther et al.* (1995) détermine l'extinction du rayonnement en ne considérant qu'une seule couche. Dans le modèle de Ganzeveld, des profils verticaux du rayonnement dans la canopée sont calculés selon *Norman* (1979); *Weiss et Norman* (1985). Dans ces études, les éclairagements direct et diffus, dans le visible (PAR) et dans le proche infrarouge (NIR), sont calculés au-dessus et dans la canopée. Les éclairagements visible (PAR) et dans le proche infrarouge (NIR), dans l'atmosphère, sont atténués exponentiellement selon une loi similaire à celle de Beer-Lambert. Pour de plus amples détails sur le transfert radiatif dans l'atmosphère utilisé dans le modèle de Ganzeveld, nous renvoyons le lecteur aux travaux de *Weiss et Norman* (1985).

L'extinction du rayonnement actif pour la photosynthèse dans la canopée est similaire à celle décrite dans le modèle MOHYCAN (*Norman*, 1979). Les profils des éclairagements visibles (PAR) (direct et diffus) et les fractions de feuilles au soleil et à l'ombre sont utilisés pour calculer les émissions d'isoprène par les différentes couches de la végétation. La température de la feuille n'est pas calculée dans le modèle de Ganzeveld mais une température de surface (c-à-d la température qui reflète la température de la végétation

et de la couche supérieure du sol) obtenue d'un modèle climatique est utilisée. L'avantage de coupler le modèle d'émission à un modèle climatique est que celui-ci peut fournir tous les paramètres nécessaires au fonctionnement du modèle d'émission. Cependant, les champs météorologiques calculés par le modèle climatique peuvent différer de la réalité observée sur le site de mesure. Pour contrer ce problème, le modèle de Ganzeveld est contraint par des champs météorologiques analysés du ECMWF (European Center for Medium range Weather Forecast) pour l'année 2001.

Dans une première simulation, l'indice de surface de feuille est fixée à $0.7 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$ et la densité foliaire à $105 \text{ g}_{\text{feuille}} \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$ dans les deux modèles. La fraction de végétation est de 1. Pour une meilleure comparaison des deux modèles, un seul type de végétation est supposé présent dans ces simulations : les feuillus avec une hauteur de canopée de 10 m. Le facteur d'émission standard ε_4 vaut dans ce cas $16 \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$ (valeur typique de la savane d'après *Guenther et al.* (1995)). Les résultats sont présentés à la Figure 3.16.

Les émissions estimées d'isoprène illustrées à la Figure 3.16 *a* ont été calculées avec la température de la feuille T_f dans le modèle MOHYCAN et la température de surface T_{can} dans le modèle de Ganzeveld. Les émissions estimées sont très comparables, surtout lors des jours clairs (jours 33 et 34) (Cf. Figures 3.16 *a* et *b*). Pour ces jours-là, les températures (T_{eff} , pour le modèle MOHYCAN $G97-T_f$, et T_{can} qui représente la température de surface dans le modèle de Ganzeveld) sont très proches, bien que les températures de l'air au sommet de la canopée soient différentes. Pour les jours plus nuageux (jours 36, 37 et surtout 35), les deux modèles diffèrent. Ces différences sont liées aux différences entre les paramètres environnementaux (éclairage visible et température) (Cf. Figures 3.16 *b* et *c*).

Notons que les deux modèles surestiment les flux d'isoprène par rapport aux mesures. Cette surestimation est liée au choix du facteur d'émission standard dans les deux modèles ($16 \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$). Les résultats obtenus avec cette valeur dans le modèle MOHYCAN doivent être comparés aux résultats précédents (Cf. Figure 3.15), pour lesquels le facteur d'émission standard est le résultat d'une combinaison de plusieurs facteurs d'émission standard représentant les différentes espèces composant l'écosystème de Skukuza. Ces valeurs ($\varepsilon_{4p} \sim 2.52$, $\varepsilon_{4pp} \sim 5.8 \times 10^{-2}$ et $\varepsilon_5 \sim 1.92 \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$) sont beaucoup plus faibles que la valeur par défaut représentant la savane dans l'inventaire GEIA (*Guenther et al.*, 1995). Ceci souligne l'importance de la détermination de la valeur du facteur d'émission standard dans le calcul des émissions de composés organiques volatils.

Dans une nouvelle simulation, l'indice de surface de feuille et la densité foliaire ont été augmentés pour se rapprocher autant que possible des caractéristiques typiques des caducifoliés dans le modèle MOHYCAN. Elles valent respectivement $3.2 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$ et $480 \text{ g}_{\text{feuille}} \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$. Dans ce cas, la fraction de végétation vaut 0.22. La quantité totale de végétation est la même que dans la première simulation, mais sa répartition est maintenant très inégale.

Les résultats sur les émissions d'isoprène sont montrés à la Figure 3.17 et sont comparés aux résultats précédents (fraction de végétation = 1). Dans les deux modèles, les

SAFARI 2000 - Site de Skukuza 2001

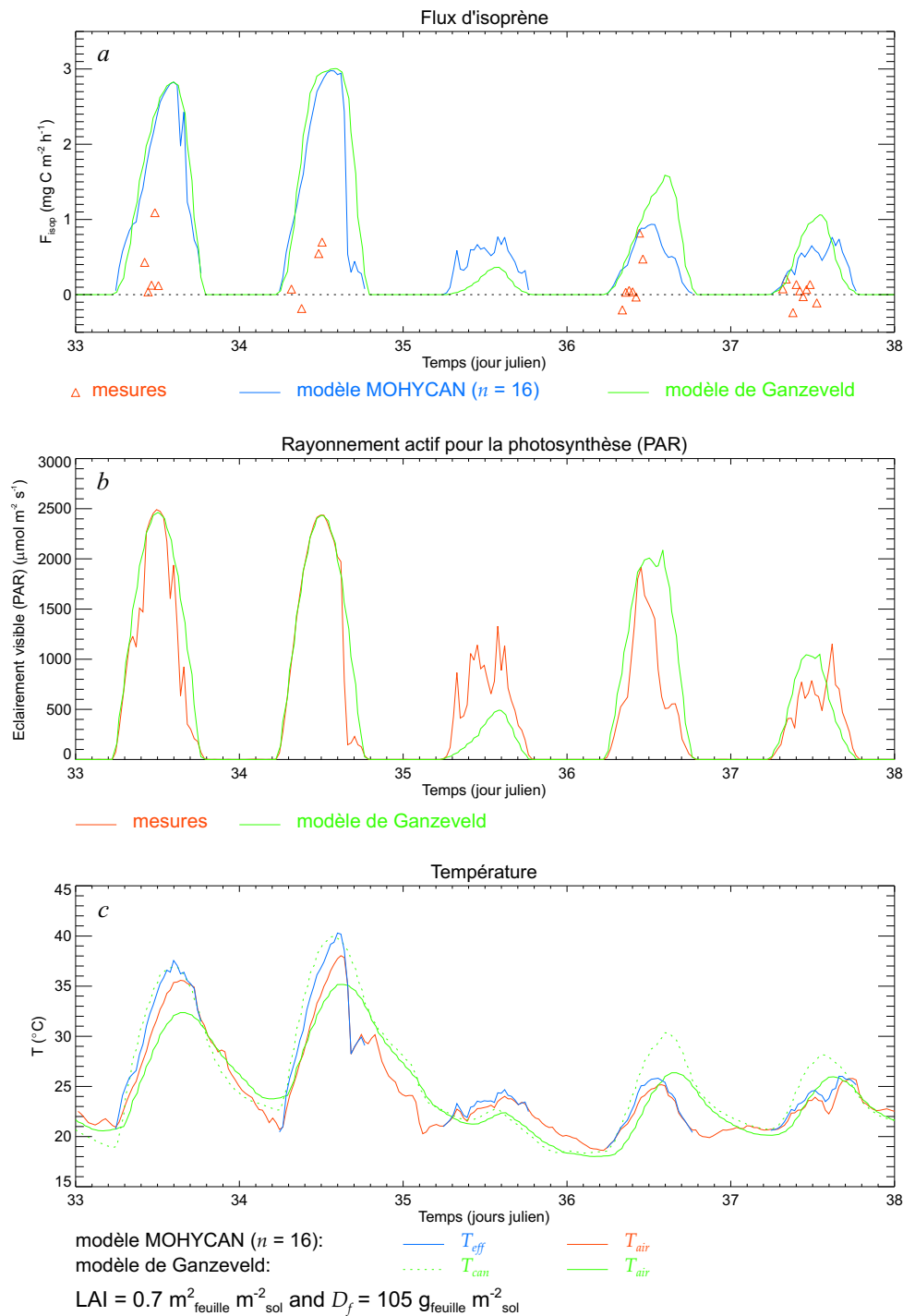


FIG. 3.16: (a) Comparaison des flux d'isoprène à Skukuza. Les figures (b) et (c) montrent, respectivement, les comparaisons de l'éclairement visible (PAR) et des températures entre les mesures, le modèle MOHYCAN ($n=16$) et le modèle de Ganzeveld.

émissions estimées sont plus élevées dans la première simulation. Ceci peut être expliqué comme suit. Dans le premier cas, la répartition de la végétation est homogène sur la surface du site, tandis que dans le deuxième cas, la végétation et le sol nu sont séparés. Le rayonnement actif pour la photosynthèse (PAR) pénètre moins profondément dans la canopée dans la deuxième simulation puisque l'indice de surface de feuille est plus élevé. Les feuilles dans la partie inférieure de la canopée, reçoivent moins de lumière et de chaleur et émettent donc moins d'isoprène. La relation entre les émissions et l'indice de surface de feuille sera examinée plus en détail dans le Chapitre 4.

Les différences entre ces deux simulations sont plus marquées dans le modèle de Ganzeveld. Notons aussi que dans le premier cas, les émissions d'isoprène, pour les jours clairs, étaient comparables dans les deux modèles. Par contre dans le deuxième cas, elles diffèrent. Ces différences sont liées au transfert radiatif dont le traitement diffère entre les deux modèles.

Les résultats obtenus avec le modèle MOHYCAN sont donc en bon accord avec un modèle de canopée existant, le modèle de Ganzeveld. L'avantage de notre modèle est qu'il calcule la température de la feuille et n'a pas recours à une température de surface fournie par un modèle climatique.

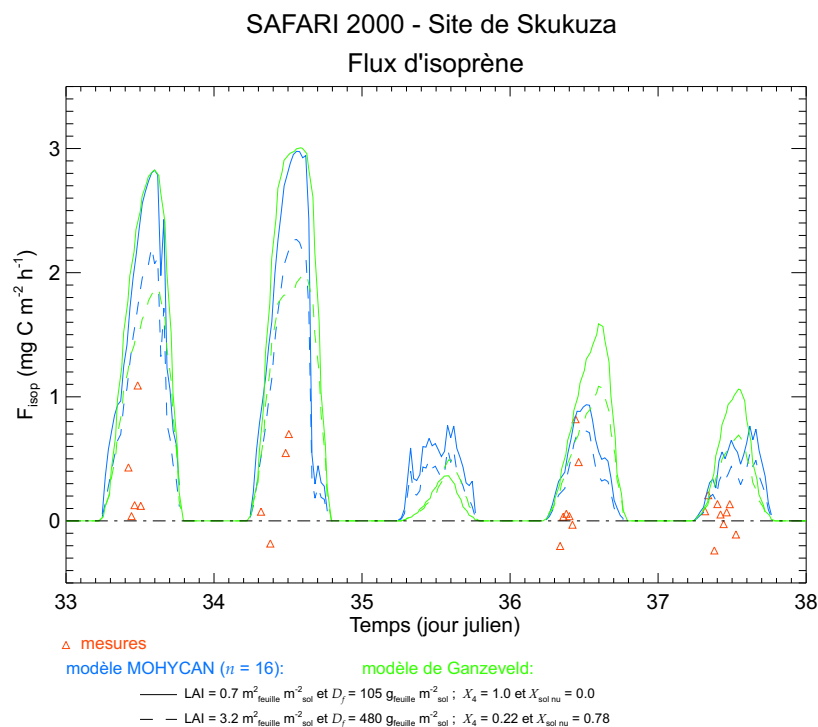


FIG. 3.17: Comparaison des flux d'isoprène à Skukuza : mesures, modèle MOHYCAN et modèle de Ganzeveld pour des fractions de végétation différentes. (X_4 et $X_{\text{sol nu}}$ représentent la fraction couverte par la végétation et par le sol nu, respectivement.)

3.2.4 Campagne LBA

Description du site et des données communes aux deux campagnes de mesure

LBA (Large Scale Biosphere-Atmosphere Experiment) est une initiative internationale de recherche conduite en Amazonie brésilienne.

Des mesures d'émission de composés organiques biogéniques ont été conduites sur une tour de 45 m de haut située dans la province de Pará, Brésil (2°51'S, 54°58'W). Le site de mesure est situé sur un plateau, planalto. La forêt est une forêt tropicale humide primitive (*Rinne et al.*, 2002). La hauteur de la canopée est fixée à 35 m, l'indice de surface de feuille (LAI) à $6.2 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$ et la densité foliaire à $775 \text{ g}_{\text{feuille}} \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$ (A. Guenther, communication personnelle) (*Rinne et al.*, 2002).

Des mesures d'isoprène, d' α -pinène et de β -pinène ont été enregistrées en juillet 2000 et des mesures d'isoprène uniquement en avril 2001. La végétation est très diversifiée et les facteurs d'émission standard pour chaque espèce sont encore peu connus pour les forêts tropicales. Nous faisons l'hypothèse que la végétation est constituée à 100% de feuillus sempervirents (type de végétation 3).

Les facteurs d'émission standard valent

- $\varepsilon_{\text{isop}} = 15 \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$ pour l'isoprène et
- $\varepsilon_{\text{monot}} = 0.4 \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$ pour les monoterpènes (α -pinène et β -pinène)

(A. Guenther, communication personnelle)

Il est à noter que la valeur $\varepsilon_{\text{isop}}$ est inférieure à celle attribuée aux forêts tropicales humides dans l'inventaire GEIA ($\varepsilon_{\text{isop}} = 24 \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$) (*Guenther et al.*, 1995).

L'humidité spécifique pour les deux périodes est de 18 g kg^{-1} . Les précipitations annuelles sont de l'ordre de 2000 mm à Tapajós. Le facteur de stress hydrique $f(\psi_f)$ est fixé à 1 pour les deux périodes de mesure, toutes deux se déroulant pendant la saison des pluies (la saison sèche étant habituellement entre août et octobre).

Tapajós, 2000

Description des données

Les mesures d'isoprène et de monoterpènes ont été conduites du 6 au 8 juillet 2000, près de la fin de la saison des pluies. Les flux verticaux de terpénoïdes ont été mesurés pas la méthode DEA décrite précédemment. Par contre, les émissions d'isoprène ont été mesurées par la méthode EC associée au FIS (senseur rapide d'isoprène, Cf. Section 3.1) (*Rinne et al.*, 2002). La technique DEA accumule les hydrocarbures sur des cartouches couvertes d'adsorbants. Ces cartouches ont été réfrigérées avant et après échantillonnage et ont été analysées en laboratoire par chromatographie en phase gazeuse et par spectrométrie de masse (GC-MS). Les émissions d'isoprène et de monoterpènes semblent dépendantes de la lumière et de la température à ce site de mesure (*Rinne et al.*, 2002). L'algorithme d'isoprène G97 est donc utilisé pour estimer les flux d'isoprène comme ceux de monoterpènes. A titre de comparaison, l'algorithme des terpènes G93 sera aussi utilisé pour les émissions de monoterpènes.

Les flux d'isoprène mesurés par FIS montrent une variation diurne avec des émissions plus élevées durant le jour et des émissions négligeables et même négatives durant la nuit. Le pic à midi était de l'ordre de $1.76 \text{ mg C m}^{-2} \text{ h}^{-1}$. Cette valeur est plus faible que celle couramment assignée à la forêt amazonienne par les modèles globaux d'émission. Les valeurs négatives la nuit peuvent être un artefact causé par la déposition ou la chimie dans la canopée.

Résultats du modèle MOHYCAN

Les émissions de composés organiques volatils biogéniques estimées à l'aide du modèle MOHYCAN sont comparées aux mesures à la Figure 3.18. De manière générale, le modèle surestime fortement les flux mesurés. En moyenne sur la période de mesure, les flux calculés d'isoprène sont environ 5.5 fois plus élevés que les mesures. Cette sur-estimation est plus forte que celle, notée par *Rinne et al.* (2002), des émissions maximales à midi estimées par le modèle global de *Guenther et al.* (1995) pour la région amazonienne, environ $3.53 \text{ mg C m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ (*Guenther et al.*, 1995) contre $0.88\text{-}1.76 \text{ mg C m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ observé à Tapajós.

Les émissions d' α - et β -pinène sont illustrées à la Figure 3.18 *b* et à la Figure 3.18 *c*, respectivement. L'algorithme G97 (dépendant de la lumière et de la température) montre un meilleur accord avec les mesures : les mesures montrent effectivement un cycle diurne lié à l'évolution de la lumière au cours du jour en particulier dans le cas d' α -pinène (valeurs négligeables la nuit, augmentation des émissions le matin, pic vers midi et diminution des émissions l'après midi). Une régression linéaire $y = ax + b$ entre les mesures et G97 montre un accord satisfaisant : pour α -pinène, $a = 0.66$ et $b = 0.05$ et pour β -pinène, $a = 0.94$ et $b = 0.06$. Le facteur d'émission standard pour α -pinène est donc légèrement trop faible tandis que pour β -pinène, il est approprié. Par contre les régressions linéaires, pour α - et β -pinènes, avec G93 et une combinaison de 50% G93 + 50% G97 donnent des valeurs de b de ~ 0.25 et ~ 0.15 respectivement.

Le facteur d'émission standard utilisé ici pour l'isoprène ($15 \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$), bien que plus petit que celui utilisé dans les modèles globaux ($24 \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$ dans l'inventaire GEIA), est néanmoins trop élevé pour représenter les émissions mesurées à Tapajós. Il faut noter cependant que les mesures reportées ici ne sont représentatives que d'une petite région autour de la tour de mesure. Étant donnée la diversité des forêts tropicales, il serait donc hasardeux de généraliser ces résultats à l'échelle régionale. Des mesures de flux en avion devraient donc être menées pour obtenir des mesures directes de flux de composés organiques biogéniques à plus grande échelle.

Notons encore qu'en moyenne sur la période de mesure, la différence entre les flux estimés avec $G97-T_f$ et $G97-T_{air}$ pour isoprène et pour les monoterpènes est de l'ordre de 2%. Ce faible écart entre la température de la feuille et celle de l'air s'explique par le fait que, pour les conditions météorologiques enregistrées durant cette campagne, le contenu en eau de la feuille et la vapeur d'eau dans l'air ne sont pas des facteurs de stress. Les stomates sont bien ouverts et la feuille échange alors beaucoup d'eau avec son environnement extérieur, ce qui favorise les échanges d'énergie (r_s faible) et donc égalise les températures de la feuille et de l'air.

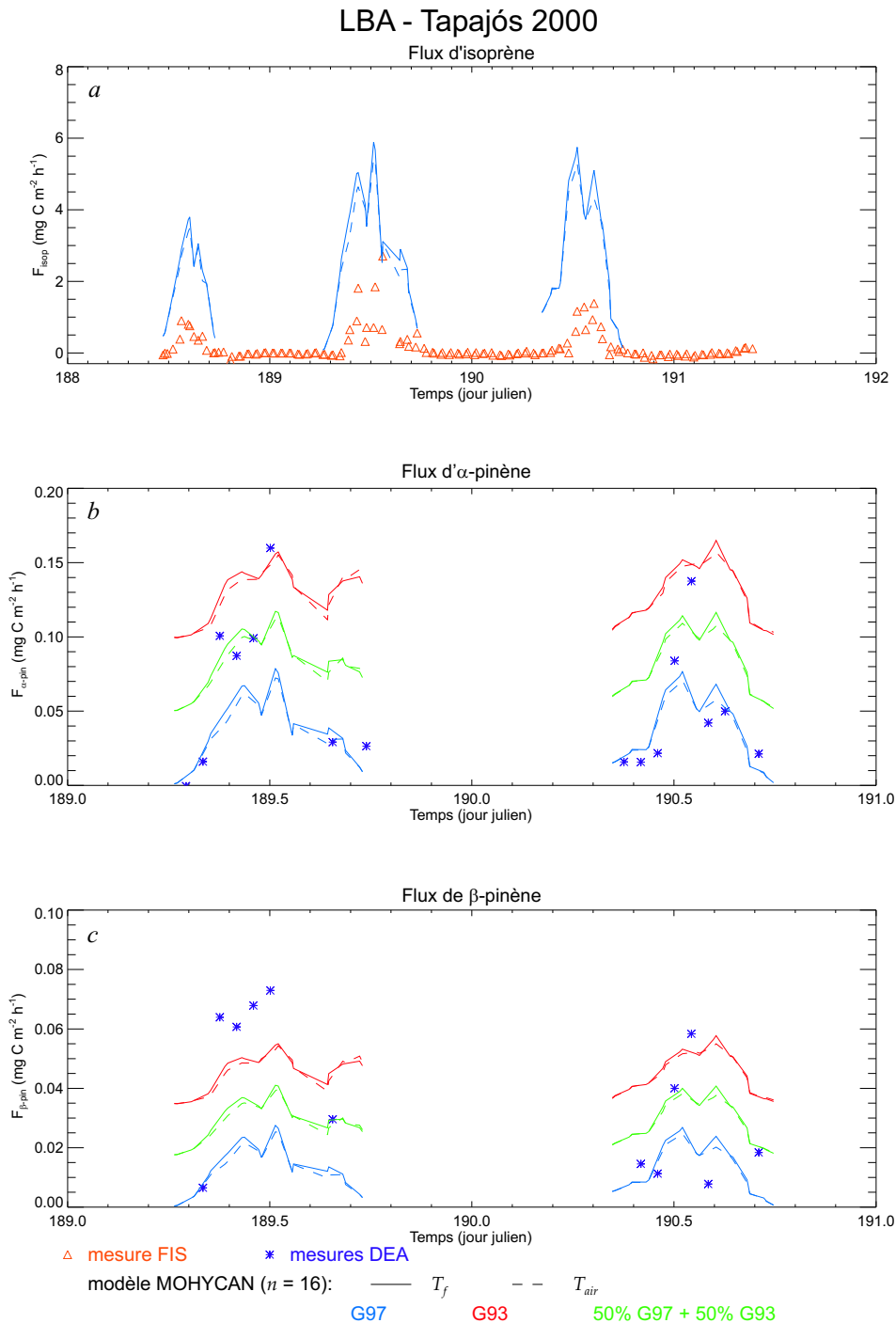


FIG. 3.18: Comparaison des flux d'isoprène (*a*), d' α - (*b*) et de β -pinène (*c*) à Tapajós en juillet 2000. Les triangles oranges indiquent les mesures d'isoprène par la méthode FIS tandis que les astérisques mauves représentent les mesures de monoterpènes par la technique DEA. Les différentes courbes montrent les résultats de MOHYCAN.

Tapajós, 2001

Description des données

Les émissions d'isoprène ont été mesurées du 17 au 21 avril 2001 par la méthode d'Eddy Covariance (EC) associée au FIS. Les mesures des paramètres environnementaux sont disponibles sur le site web : <http://www-as.harvard.edu/data/lbadata.html>.

La température de l'air et la vitesse du vent ont été mesurées à différentes hauteurs sur la tour. Ces différentes mesures nous ont permis de tester les paramétrisations du modèle MOHYCAN. Les résultats seront discutés dans le chapitre suivant.

La température de l'air à 49.75 m et la vitesse du vent à 38.22 m sont les valeurs adoptées comme valeurs au sommet de la canopée. Des mesures de l'éclairement visible (PAR) au sommet de la canopée sont également disponibles.

Résultats du modèle MOHYCAN

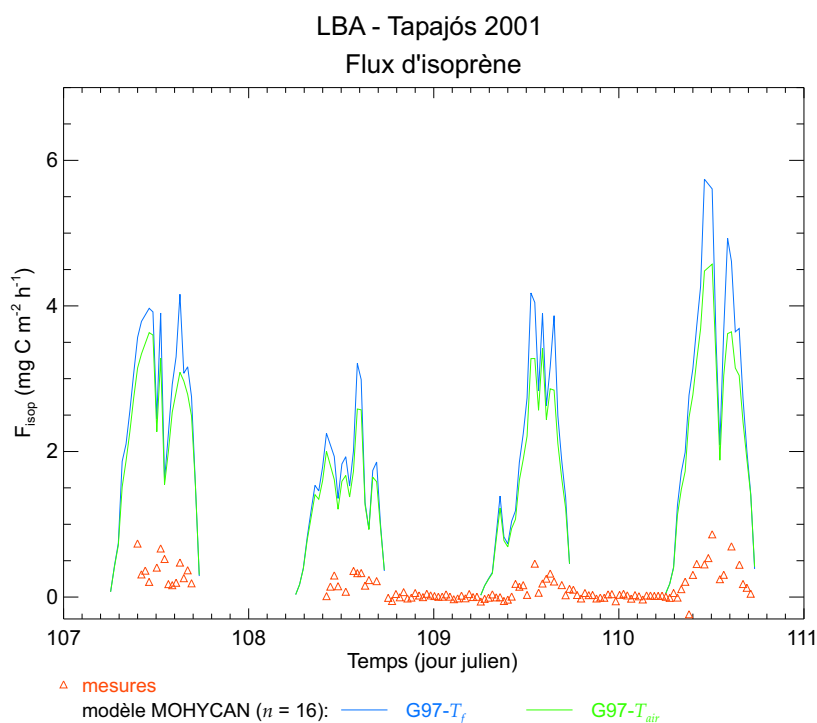


FIG. 3.19: Comparaison des flux d'isoprène à Tapajós en avril 2001 : mesures et modèle MOHYCAN.

Les émissions d'isoprène ont été estimées à l'aide de l'algorithme d'isoprène G97. Les résultats sont illustrés à la Figure 3.19. A nouveau, les flux d'isoprène estimés avec le modèle MOHYCAN sont plus élevés que les mesures, d'environ un facteur 11 en moyenne. Les mesures FIS d'isoprène dans cette campagne sont plus faibles que les mesures FIS d'isoprène en juillet 2000. La température de l'air et l'éclairement visible

(PAR) étaient pourtant relativement semblables lors des deux périodes de mesure. Les émissions estimées avec G97 pour les deux périodes de mesures sont relativement similaires. En moyenne, les émissions estimées avec G97- T_f sont de l'ordre de 10% plus élevées qu'avec G97- T_{air} .

3.3 Conclusions

Le Tableau 3.1 résume les campagnes que nous avons étudiées. La dernière colonne de ce tableau donne les valeurs du rapport des émissions modélisées aux émissions mesurées.

De manière générale, l'algorithme G97 reproduit bien les variations observées des émissions. La valeur du facteur d'émission standard du modèle s'est révélée parfois inappropriée, particulièrement pour le site de Tapajós. Au site de Maun, les émissions sont mieux reproduites par une version modifiée (G97a) de l'algorithme d'émission. L'utilisation de la température de la feuille dans l'algorithme d'émission se traduit par une augmentation parfois importante (jusqu'à 50%) des émissions de composés organiques volatils biogéniques.

Le modèle MOHYCAN reproduit bien les observations de l'éclairement visible (PAR) dans la canopée à la forêt de Harvard. L'atténuation du PAR est indépendante de l'angle zénithal dans le cas nuageux. Dans le cas d'un ciel clair, elle augmente avec l'angle zénithal ainsi qu'avec la valeur du facteur de cluster.

Finalement, nous avons pu vérifier que les résultats du modèle MOHYCAN au site de Skukuza sont compatibles avec ceux d'un autre modèle de canopée, tenant compte des différences entre les champs météorologiques utilisés dans les deux modèles.

TAB. 3.1: Campagnes de mesure étudiées dans ce chapitre et valeurs du rapport entre émissions calculées et émissions mesurées.

Nom et lieu des campagnes	Période analysée	Type d'écosystème	Espèces mesurées	Rapport modèle/mesures
Harvard Forest, Massachusetts, USA	juin-octobre 1995	forêt tempérée mixte	isoprène	0.48* -0.72**
Maun-SAFARI 2000, Botswana	28 janvier-8 février 2001	savane	α -pinène	1.70* -2.03** ^a
Skukuza-SAFARI 2000, République d'Afrique du Sud	2-12 février 2001	savane	isoprène	1.15* -1.17** ^b
Tapajós LBA, Brésil	7-8 juillet 2000	forêt tropicale humide	isoprène, α -pinène et β -pinène	1.37* -1.67**
Tapajós LBA, Brésil	17-20 avril 2001	forêt tropicale humide	isoprène	5.13* -5.51**
				0.69* -0.75**
				0.50* -0.55**
				9.46* -10.94**

*en utilisant la température de l'air (T_{air}) dans les algorithmes d'émission

**en utilisant la température de la feuille (T_f) dans les algorithmes d'émission

^aen utilisant l'algorithme G97

^ben utilisant l'algorithme G97a

CHAPITRE 4

Incertitudes des émissions modélisées aux sites étudiés

Les prédictions du modèle MOHYCAN comportent des incertitudes liées d'une part, aux algorithmes d'émission eux-mêmes, et d'autre part, à la détermination des conditions environnementales dans la canopée. Nous n'aborderons pas l'incertitude pourtant importante sur le facteur d'émission standard qui est une caractéristique de l'espèce végétale ou de l'écosystème considéré. Soulignons simplement l'extrême diversité du monde végétal et les différences parfois importantes entre les caractéristiques d'émission d'espèces pourtant voisines. Dans ce chapitre, nous discuterons à l'aide de tests de sensibilité les incertitudes sur les émissions de composés organiques volatils biogéniques associées

- à l'indice de surface de feuille (LAI) (profil vertical, inhomogénéité spatiale, LAI totale) ;
- aux profils verticaux des variables météorologiques (température de l'air, humidité relative) ;
- à la mesure de l'éclairement visible (PAR) et à la détermination de la fraction diffuse du rayonnement ;
- à la paramétrisation de la résistance stomatique et
- au choix de l'algorithme d'émission d'isoprène

4.1 L'indice de surface de feuille

L'indice de surface de feuille (en anglais : LAI) est un paramètre essentiel dans le calcul des émissions de composés organiques volatils. Il quantifie le feuillage, puisque la densité foliaire D_f est supposée proportionnelle à l'indice de surface de feuille. De plus, cet indice détermine le transfert radiatif dans la canopée.

4.1.1 Profil vertical de l'indice de surface de feuille

Très variable, le profil de l'indice de surface de feuille est souvent mal connu. Dans le but de déterminer l'influence de son choix, nous avons utilisé différents profils et comparé les émissions qui en résultent.

Un profil de l'indice de surface de feuille obtenu par l'inversion du profil moyen de la transmittance du rayonnement actif pour la photosynthèse (PAR) dans la forêt de Harvard (*Parker, 1997*) est comparé aux profils du modèle à la Figure 4.1. Le profil caractérisant les caducifoliés dans le modèle est similaire, mais non identique au profil mesuré. Les émissions calculées en utilisant ce profil mesuré sont cependant quasiment identiques aux émissions obtenues en utilisant les deux profils du modèle, avec une différence inférieure à 0.1% en moyenne sur la période de mesure.

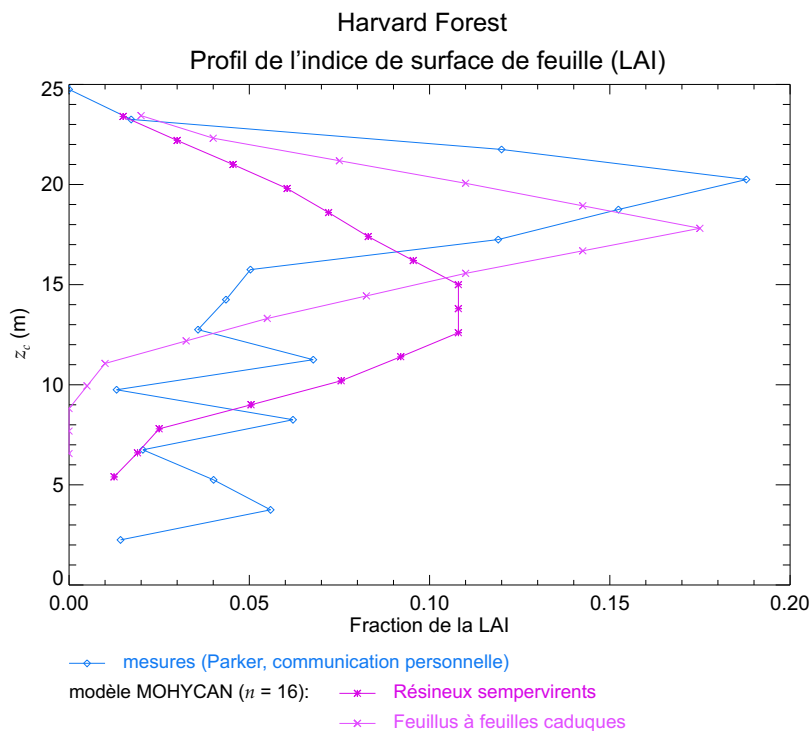


FIG. 4.1: Comparaison du profil mesuré de l'indice de surface de feuille (LAI) à la forêt de Harvard pour l'année 1998 (G. Parker, communication personnelle) avec les profils caractérisant les deux types de végétation du modèle MOHYCAN correspondant à l'écosystème de cette forêt.

La répartition horizontale et verticale du feuillage a été étudiée au site de Maun par K. Caylor (communication personnelle). Le profil vertical de l'indice de surface de feuille a été mesuré dans 25 parcelles carrées de 10 mètres de côté formant ensemble un grand carré de 50 m de côté, comme montré à la Figure 4.2. Les profils ont été obtenus en déterminant la masse des feuilles à partir du diamètre des branches, en convertissant la masse de feuille en surface de feuille spécifique, et en distribuant cette surface de feuille

sur le volume mesuré de la canopée. Malheureusement, cette méthode ne donne pas de mesure exacte, mais seulement une bonne idée de la structure verticale ainsi que la répartition horizontale de l'indice de surface de feuille. Rappelons que la végétation à Maun est monospécifique.

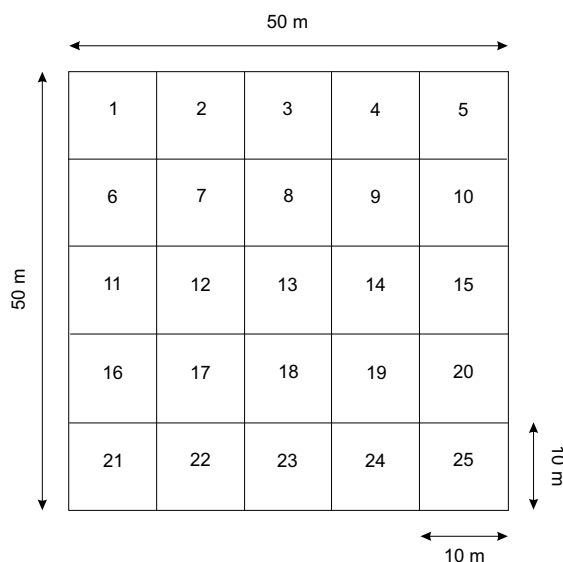


FIG. 4.2: Plan du site de mesure des profils verticaux de l'indice de surface de feuille (LAI) à Maun en 2001.

Les profils de l'indice de surface de feuille pour les différentes parcelles sont illustrés à la Figure 4.3. Le profil moyen obtenu à partir de ces 25 profils est également indiqué. Les valeurs de la LAI totale associées aux profils mesurés sont aussi indiquées sur la figure. Le profil de l'indice de surface de feuille associé aux feuillus à petites feuilles caduques dans MOHYCAN est comparé aux autres profils. Le profil du modèle est nettement différent des profils mesurés.

Cependant, comme dans le cas de la forêt de Harvard, les émissions d' α -pinène obtenues en utilisant le profil du modèle MOHYCAN et celles obtenues en utilisant le profil moyen mesuré sont quasiment identiques. En moyenne sur la période de mesure, elles ne diffèrent que de 0.09%.

L'absence de dépendance des émissions totales à la répartition verticale de l'indice de surface de feuille peut paraître étonnante étant donnée la variation très rapide du rayonnement (PAR) avec la hauteur dans la canopée, mais elle est une conséquence normale de la paramétrisation du PAR dans la canopée décrite au Chapitre 2 : l'atténuation du PAR entre le sommet de la canopée et une hauteur donnée ne dépend que de L_c (Eq.: 2.10), c-à-d de la quantité de LAI (indice de surface de feuille) entre ces deux hauteurs, quelle que soit sa répartition. Les seuls paramètres qui dépendent explicitement de la hauteur z dans le modèle sont la vitesse du vent et l'humidité relative, qui ne jouent qu'un rôle limité dans la détermination des émissions.

Ces résultats indiquent que le choix des profils caractérisant les différents types de

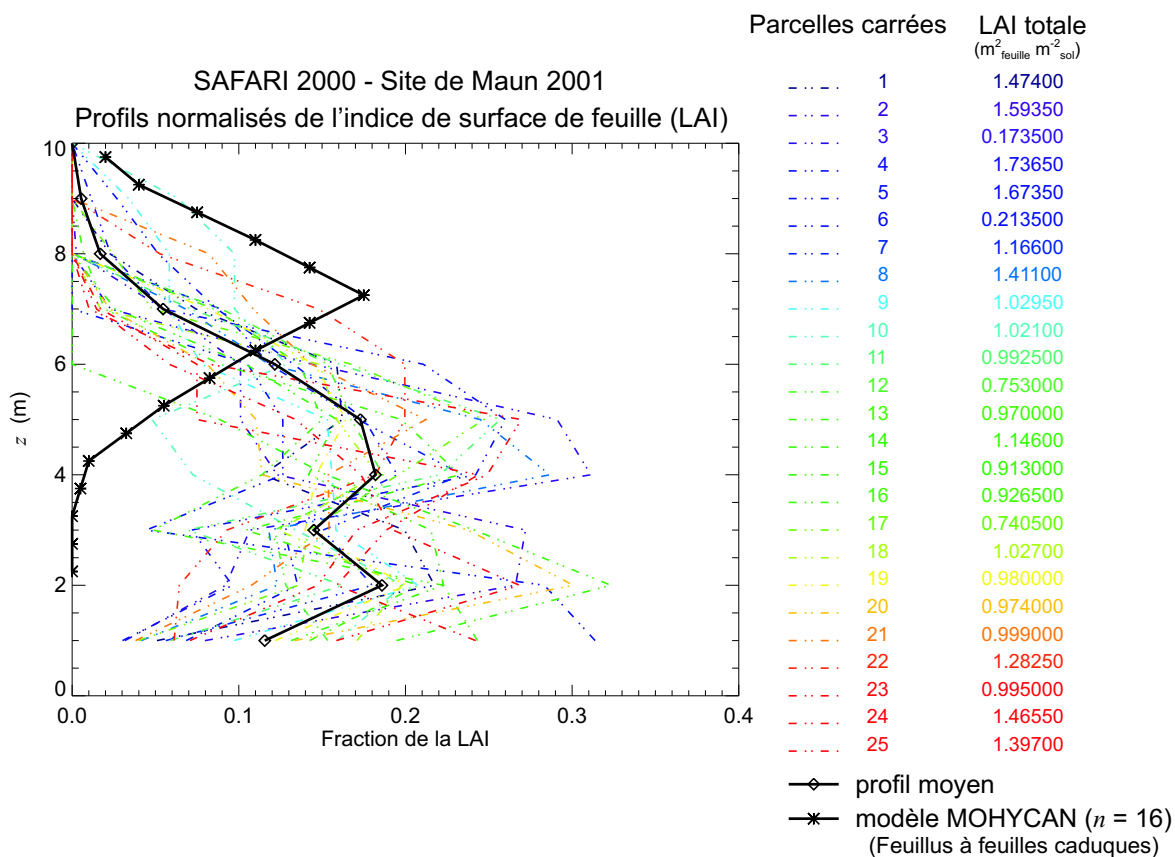


FIG. 4.3: Comparaison des 25 profils mesurés de fraction de l'indice de surface de feuille (LAI) à Maun (K. Caylor, communication personnelle), du profil moyen correspondant et du profil caractérisant le type de végétation 4 du modèle MOHYCAN.

végétation du modèle MOHYCAN n'affectent pas la fiabilité des émissions estimées à partir de ce modèle.

4.1.2 Hétérogénéité horizontale de l'indice de surface de feuille

Comme montré à la Figure 4.3, la LAI totale est distribuée horizontalement de façon très hétérogène au site de Maun. Ces mesures nous permettent d'évaluer l'importance de l'hétérogénéité de l'indice de surface de feuille sur les émissions de composés organiques volatils biogéniques dans une situation précise. Comme ces émissions dépendent de la lumière, dont l'intensité est en partie déterminée par l'indice de surface de feuille, elles varient donc de façon non-linéaire avec cet indice. Dans le but de déterminer l'impact de cette non-linéarité sur l'estimation du flux moyen à l'échelle du grand carré, nous avons calculé :

(1) les émissions d' α -pinène sur chaque parcelle de 10 m de côté, en utilisant les mesures de l'indice de surface de feuille données à la colonne de droite de la Figure 4.3 (astérisques rouges sur la Figure 4.4),

(2) la moyenne des émissions d' α -pinène sur ces 25 parcelles (diamant vert) et
 (3) les émissions d' α -pinène utilisant la moyenne de la LAI totale des 25 parcelles
 (diamant mauve).

Les résultats sont illustrés à la Figure 4.4.

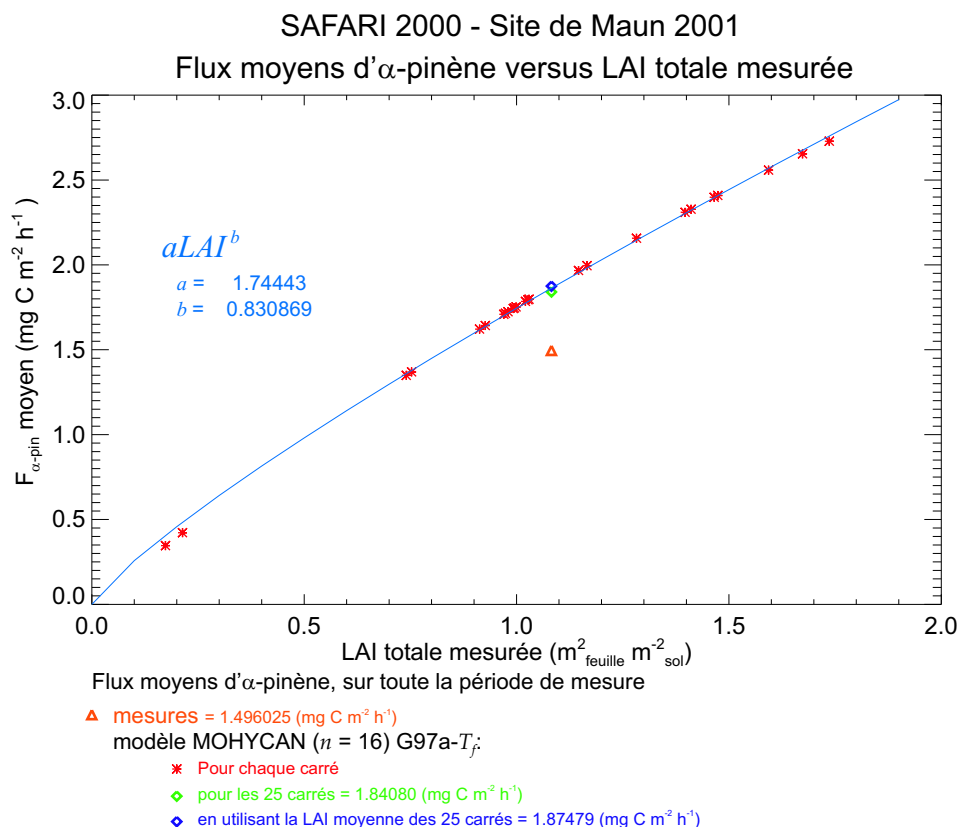


FIG. 4.4: Flux moyens d' α -pinène calculés (atériskues rouges) pour les 25 carrés du site de mesure de l'indice de surface de feuille à Maun. Les diamants vert et mauve indiquent respectivement la moyenne des flux d' α -pinène pour les 25 carrés et le flux d' α -pinène obtenu en utilisant l'indice de surface de feuille moyen des 25 carrés. Le triangle orange indique le flux moyen d' α -pinène mesuré à Maun correspondant à la valeur moyenne de l'indice de surface de feuille des 25 carrés.

Etant données les faibles valeurs de la LAI totale au site de Maun, les flux d' α -pinène augmentent quasi-linéairement avec l'indice de surface de feuille (LAI) (l'exposant de la régression vaut $b = 0.83$). Le flux moyen d' α -pinène sur les 25 parcelles (diamant vert) est très proche du flux d' α -pinène obtenu en utilisant la valeur moyenne de l'indice de surface de feuille de ces 25 parcelles (diamant mauve) (1.84 et 1.87 mg C m⁻² h⁻¹ respectivement). Ceci nous montre que, dans le cas de Maun, où la végétation est monospécifique et l'indice de surface de feuille est relativement faible, la répartition hétérogène de la LAI totale n'a pratiquement pas d'influence sur les émissions totales d' α -pinène. A titre indicatif, la figure montre également le flux moyen mesuré d' α -pinène (triangle orange) qui est proche des flux moyens modélisés d' α -pinène.

Le caractère non-linéaire de la dépendance des émissions à l'indice total de surface de feuille est plus marqué lorsque cet indice est plus élevé, comme montré à la Figure 4.5 qui représente la variation calculée des flux d'émissions pour un indice de surface de feuille compris entre 0 et $10 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$. A nouveau, nous voyons une augmentation quasi-linéaire, de pente environ égale à 2, de ces flux pour les faibles valeurs de l'indice de surface de feuille ($< 2 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$). Par contre, pour les valeurs élevées de l'indice de surface de feuille ($> 5 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$), les émissions d' α -pinène augmentent moins rapidement et tendent vers une asymptote horizontale. Les flux d'émission de composés organiques volatils biogéniques peuvent alors être approchés par :

$$F = \frac{a \text{ LAI}}{\sqrt{1 + b \text{ LAI}^2}} \quad (4.1)$$

où $a \simeq 2$ et $b \simeq 0.056$ (Cf. Figure 4.5 a).

Pour des indices de surface de feuille (LAI) faibles, les flux tendent alors vers $a \text{ LAI}$, et lorsque cet indice tend vers l'infini, les flux tendent vers $\frac{a}{\sqrt{b}}$ ($\sim 8.87 \text{ mg C m}^{-2} \text{ h}^{-1}$).

Les deux variables capitales dans la détermination des émissions de composés organiques volatils biogéniques de type isoprène sont le rayonnement (PAR) et la température de la feuille. Parmi ces deux variables, seul le rayonnement visible (PAR) est directement lié à l'indice de surface de feuille (dépendance quasi-exponentielle). Le facteur de réponse des émissions à la température de la feuille (C_T) est alors pratiquement constant. La Figure 4.5 b illustre le comportement du facteur C_L (moyenne sur la canopée) dans l'algorithme d'émission d'isoprène G97 (Eq.: 2.2). Sa diminution reflète l'atténuation croissante du rayonnement dans la canopée lorsque l'indice de surface de feuille augmente. Il diminue quasi-linéairement pour les faibles valeurs de l'indice de surface de feuille (LAI) et tend vers une asymptote horizontale pour des LAI élevées.

L'approximation fournie par l'équation 4.1 nous permet de calculer facilement la variation relative du flux pour des variations faibles de l'indice de surface de feuille :

$$\frac{dF/F}{d\text{LAI}/\text{LAI}} = \frac{\text{LAI}}{F} \frac{dF}{d\text{LAI}} = 1 - \frac{b \text{ LAI}^2}{1 + b \text{ LAI}^2} \quad (4.2)$$

Pour des valeurs faibles de l'indice de surface de feuille ($\text{LAI} < 2 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$), ce facteur est proche de 1 (> 0.82 pour $\text{LAI} \leq 2 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$). Au-delà, le flux sature rapidement et devient insensible aux variations de l'indice de surface de feuille ($\frac{\text{LAI}}{F} \frac{dF}{d\text{LAI}} = 0.15$ pour $\text{LAI} = 10 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$).

4.2 La température de l'air et l'humidité relative dans la canopée

Comme nous l'avons mentionné au Cf. Chapitre 2, la paramétrisation de la variation de la température de l'air et de l'humidité relative dans la canopée est approximative. Les mesures de la température de l'air et de l'humidité relative à différentes hauteurs dans la canopée à la forêt de Harvard nous permettent de tester cette paramétrisation,

SAFARI 2000 - Site de Maun 2001

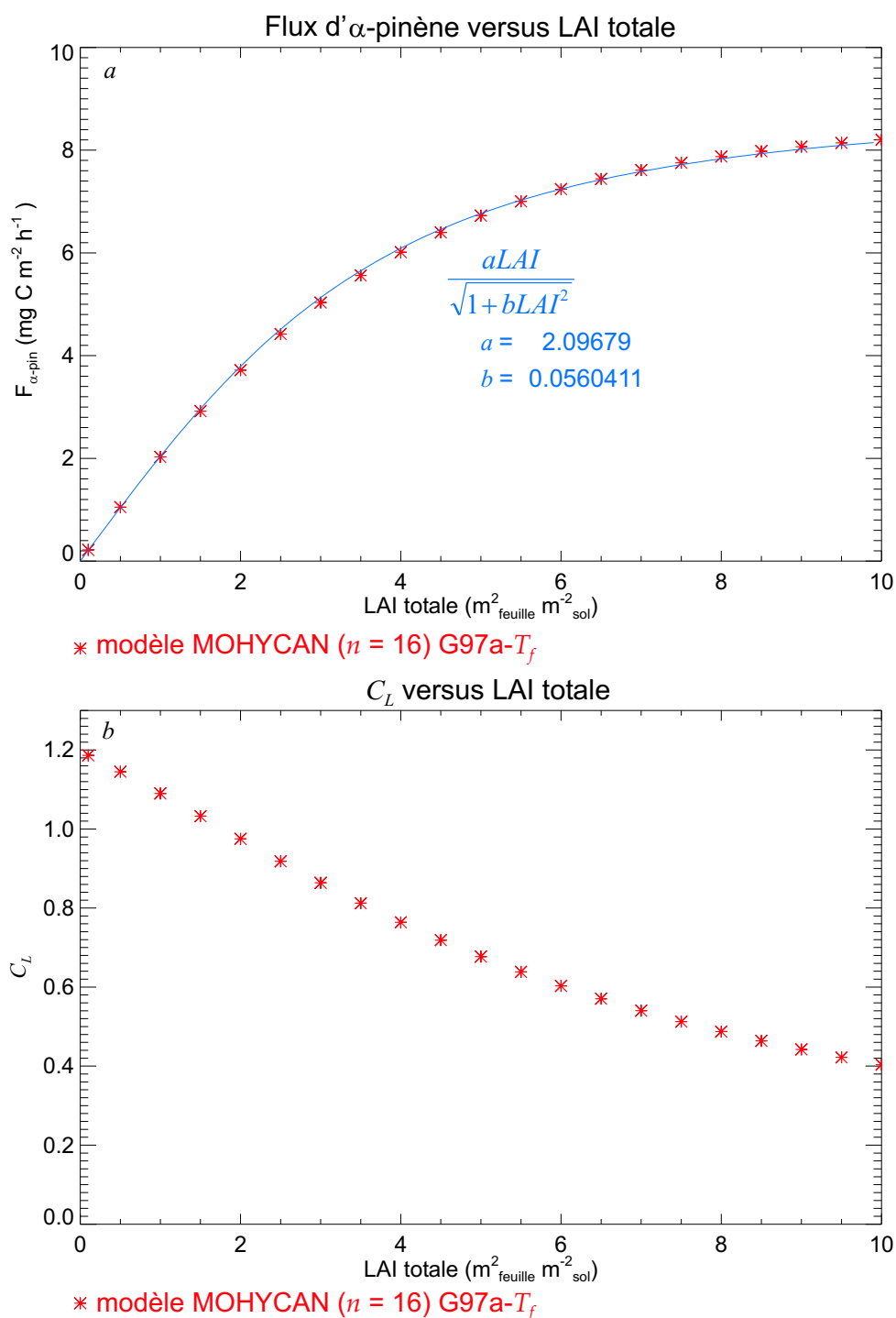


FIG. 4.5: (a) Flux d' α -pinène et (b) facteur de réponse C_L (moyenne sur toute la canopée) des émissions d' α -pinène au rayonnement visible (PAR) en fonction de l'indice de surface de feuille dans le cas de Maun.

ainsi que celle décrite par *Lamb et al.* (1993). Les gradients verticaux déterminés à partir des mesures, pour la température de l'air et pour l'humidité relative, sont généralement plus proches des gradients du modèle MOHYCAN. Dans la paramétrisation de *Lamb et al.* (1993), la température de l'air augmente dans la canopée le jour et diminue la nuit, alors que c'est l'inverse qui est observé à la forêt de Harvard. Pour l'humidité relative, la comparaison entre les observations et la paramétrisation de *Lamb et al.* (1993) montre que cette dernière utilise un taux d'augmentation trop élevé de l'humidité relative dans la canopée. Les tests réalisés avec le modèle MOHYCAN montrent cependant que l'utilisation de paramétrisations ou des valeurs observées au site n'a qu'un faible impact sur les émissions (2 à 4% en moyenne).

4.3 Le rayonnement actif pour la photosynthèse

Le rayonnement actif pour la photosynthèse (en anglais : PAR) est un paramètre primordial dans le calcul des émissions de composés organiques volatils biogéniques. Il a un effet direct dans le cas des émissions dépendantes de la lumière et un effet indirect via le calcul de la température de la feuille. Des incertitudes émanent de différentes sources : (1) de la mesure de l'éclairement visible (PAR) elle-même, et (2) des estimations des fractions diffuses des éclaircements visibles (PAR) et dans le proche infrarouge (NIR). Rappelons que les fractions diffuses sont estimées à l'aide d'un modèle radiatif atmosphérique, en comparant l'éclairement visible (PAR) mesuré aux valeurs calculées par le modèle pour différentes épaisseurs optiques de nuage.

Le cas de la campagne de mesure à la forêt de Harvard se prête bien à l'analyse de ces incertitudes, étant donnée sa longue durée.

Dans un premier temps, pour déterminer l'influence des incertitudes sur la mesure de l'éclairement visible (PAR), nous avons augmenté et diminué de 10% les estimations de cet éclairement utilisées dans le modèle radiatif atmosphérique et dans le modèle MOHYCAN. Une augmentation (diminution) de l'éclairement engendre une diminution (augmentation) de l'épaisseur optique nuageuse estimée par le modèle radiatif atmosphérique et donc une diminution (augmentation) de la fraction diffuse. La composante directe du PAR augmente de par l'augmentation de l'éclairement et de la fraction directe. Dans le cas de la composante diffuse du PAR, les effets sont plus compliqués puisque la fraction diffuse diminue tandis que l'éclairement total augmente. En moyenne sur la période de mesure des flux d'isoprène, le modèle prédit une augmentation des estimations d'isoprène d'environ 8.5% pour une augmentation de l'éclairement de 10% et une diminution d'environ 11% pour une diminution de cet éclairement de 10%, lorsque la température de la feuille est utilisée dans le calcul des émissions. Par contre, si la température de l'air est utilisée, les émissions d'isoprène restent pratiquement inchangées : une augmentation de 10% de l'éclairement engendre une légère diminution des émissions inférieure à 1%, et une diminution de 10% de cet éclairement engendre une diminution de l'ordre de 3% des émissions. Dans ce dernier cas, le PAR intervient uniquement dans la détermination du facteur C_L (Eq.: 2.2) puisque c'est la température de l'air qui est utilisée dans le facteur C_T (Eq.: 2.3). La fraction diffuse du PAR étant,

en moyenne sur la période de mesure, la plus apte à pénétrer en profondeur dans la canopée, sa diminution (son augmentation) compense l'augmentation (la diminution) de l'éclairement visible (PAR) total, et les émissions d'isoprène restent pratiquement inchangées. Par contre, lorsque c'est la température de la feuille qui est utilisée dans le calcul des émissions, l'augmentation de l'éclairement modifie l'équilibre d'énergie au niveau de la feuille et conduit par là à une augmentation du facteur C_T .

L'importance du rôle de la fraction diffuse du PAR est confirmée par un calcul de l'effet d'un changement de l'éclairement total sans modification des fractions diffuses. Dans ce cas, les changements de $\pm 10\%$ de l'éclairement visible (PAR) total conduisent à des changements de $\pm 6\%$ des émissions d'isoprène lorsque la température de l'air est utilisée. Il est normal que les changements de l'éclairement engendrent des changements plus faibles, en termes relatifs, sur les émissions d'isoprène : au-delà d'environ 400-500 $\mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$, les émissions d'isoprène commencent à saturer (Cf. Figure 1.6). Lorsque c'est la température de la feuille qui est utilisée dans le calcul des émissions, les changements de l'éclairement visible (PAR) engendrent à la fois des changements sur les facteurs C_L et C_T . Dans ce cas, une modification de 10% de l'éclairement engendre une modification d'environ 10% des émissions, dont environ 6% sont attribuables au facteur C_L (effet direct du PAR sur les émissions), et 4% au facteur C_T (effet indirect du PAR sur les émissions via le calcul de la température de la feuille par bilan d'énergie). En conclusion, en dépit des non-linéarités et de la multiplicité des effets du PAR sur les émissions, les erreurs sur l'éclairement visible (PAR) se traduisent par des erreurs similaires, en termes relatifs, sur les émissions lorsque la température de la feuille est utilisée, et ce, que les fractions diffuses restent inchangées ou non.

L'influence de la nature directe ou diffuse du rayonnement sur les émissions peut-être estimée en annulant la fraction diffuse du PAR au sommet de la canopée dans le calcul des émissions. L'éclairement direct est alors égal à l'éclairement total au sommet de la canopée. Dans ces conditions, en moyenne sur la période de mesure, les émissions d'isoprène par la forêt de Harvard diminuent d'environ 4% pour G97- T_f et d'environ 16.5% pour G97- T_{air} . Ces réductions sont dues à la pénétration généralement moins efficace du rayonnement direct dans la canopée, comparée à celle du rayonnement diffus. Cet effet est moins marqué lorsque T_f est utilisé, parce que dans ce cas, les feuilles, beaucoup plus chaudes dans les couches supérieures, contribuent beaucoup plus à l'émission totale de la canopée, qui devient par conséquent moins sensible à la nature directe ou diffuse du rayonnement incident.

Signalons finalement que lorsque la fraction diffuse du PAR au sommet est prise égale à 1, les émissions calculées augmentent d'environ 1.7% dans le cas G97- T_f et d'environ 5.7% dans le cas G97- T_{air} par rapport au cas initial (fractions diffuses calculées par le modèle radiatif atmosphérique). En conclusion, les émissions calculées pour la forêt de Harvard sont donc peu dépendantes de la nature diffuse ou directe du rayonnement reçu par la canopée, lorsque la température de la feuille est utilisée dans l'algorithme d'émission.

4.4 La résistance stomatique

Comme nous l'avons vu au Chapitre 2, la résistance stomatique est un élément-clé du calcul de la température de la feuille, puisqu'elle conditionne l'ouverture des stomates, et par conséquent les échanges de vapeur d'eau entre la feuille et l'air. La paramétrisation de la résistance stomatique a été décrite dans le Chapitre 2. Cette paramétrisation est complexe et repose sur le choix des valeurs des constantes intervenant dans les équations 2.47 à 2.53. Dans cette partie, nous allons quantifier les effets de modifications de la résistance stomatique sur les émissions d'isoprène.

Rappelons que la résistance stomatique, dans la paramétrisation du modèle MOHY-CAN, fait intervenir un facteur de dépendance à la lumière ($r_{s,PAR}$, résistance minimale fonction de l'éclairement visible (PAR)) et des facteurs de stress représentant : (1) l'influence de la température de la feuille elle-même ($f(T_f)$), (2) l'influence de l'humidité relative de l'air (stress en vapeur d'eau, $f(\delta e)$), et (3) l'influence du potentiel hydrique de la feuille (stress hydrique, $f(\psi_f)$), dépendant du contenu en eau du sol.

Le choix de la valeur du facteur de stress hydrique a été discuté, pour chaque site de mesure, dans le Chapitre 3. Cependant, le contenu en eau de la feuille est généralement difficilement quantifiable puisque qu'il demande des informations complémentaires sur le contenu en eau du sol et sur ses caractéristiques. Le cas des régions arides est particulier. Par exemple, pour les deux sites de la campagne SAFARI 2000 (Maun et Skukuza), le facteur de stress hydrique a été fixé à 0.5. En faisant varier ce facteur entre les valeurs extrêmes de (1) 10^{-3} (stress hydrique intense) et (2) 1 (pas de stress hydrique), les émissions calculées de composés organiques volatils biogéniques diffèrent tout au plus de 2% des émissions calculées avec $f(\psi_f) = 0.5$. La raison en est que l'humidité relative mesurée aux deux sites est très faible (le jour), engendrant un très grand déficit en vapeur d'eau et une résistance stomatique élevée, supérieure à la résistance cuticulaire même en l'absence de stress hydrique. La résistance stomatique r_s étant en parallèle avec la résistance cuticulaire r_c , la résistance totale de l'épiderme (r_{ep}), résultant de la combinaison de ces deux résistances (Eq.: 2.46) est proche de la résistance cuticulaire lorsque la résistance stomatique est élevée. Le stress hydrique, quel qu'il soit, ne modifie donc pratiquement pas r_{ep} .

L'influence des facteurs de stress peut être évaluée en comparant les émissions calculées en présence et en absence complète de stress. Dans ce dernier cas, la résistance stomatique est uniquement déterminée par l'éclairement visible (PAR) : $r_s = r_{s,PAR}$. Les différences entre les émissions calculées avec $r_{s,PAR}$ et r_s pour chaque site sont données au Tableau 4.1.

De manière générale, les émissions de composés organiques volatils biogéniques sont plus faibles lorsque la résistance stomatique est plus faible, favorisant les échanges en vapeur d'eau et réduisant les écarts entre T_f et T_{air} . Ceci n'est vrai que si la température n'excède pas la température optimale pour les émissions, proche de 40°C dans G97, et 30°C dans G97a. Dans le cas de Maun, avec G97a, les émissions augmentent légèrement lorsque la résistance stomatique est diminuée en raison des températures élevées et de la décroissance du facteur C_T avec la température au-delà de la tempé-

rature optimale d'environ 30°C.

A Tapajós, la température de l'air est généralement proche de la température optimale, et la vapeur d'eau et le potentiel hydrique de la feuille ne sont pas des facteurs de stress. En conséquence, les facteurs de stress ont peu d'impact sur la température de la feuille et donc sur les émissions.

TAB. 4.1: Différences relatives (%) entre les émissions de composés organiques volatils biogéniques calculées sans et avec les facteurs de stress.

<i>Harvard Forest</i> G97	<i>Maun</i>		<i>Skukuza</i>	<i>Tapajós, 2000</i>	<i>Tapajós 2001</i>
	G97	G97a	G97	G97	G97
-9.1	-19.9	+1.3	-9.3	-3.2	-1.5

L'influence de chaque facteur de stress peut être évaluée en introduisant séparément chaque facteur de stress dans l'expression de la résistance stomatique et en quantifiant pour chaque site (à l'exception de la forêt de Harvard) les effets sur les émissions. Le Tableau 4.2 montre l'impact, sur les émissions de composés organiques volatils biogéniques, de chaque facteur de stress pris séparément par rapport à une simulation où tous les facteurs de stress sont ignorés.

TAB. 4.2: Impact (%), sur les émissions de composés organiques volatils biogéniques, de chaque facteur de stress pris séparément par rapport à une simulation où tous les facteurs de stress sont ignorés.

<i>Résistance stomatique</i>	<i>Maun</i>		<i>Skukuza</i>	<i>Tapajós, 2000</i>	<i>Tapajós 2001</i>
	G97	G97a	G97	G97	G97
$r_{s,PAR}$ et $f(T_f)$	+6.9	-0.26	+3.5	+0.04	0.08
$r_{s,PAR}$ et $f(\delta e)$	+21.0	-2.4	+8.1	+3.3	+1.4
$r_{s,PAR}$ et $f(\psi_f) = 0.5$	+10.9	+1.12	+5.1	-	-
$r_{s,PAR}$ et $f(\psi_f) = 10^{-3}$	+27.4	-0.3	+11.8	-	-

Les effets les plus importants sont ceux notés dans les régions arides (Maun et Skukuza) en réponse au stress en vapeur d'eau et au stress hydrique : l'influence de la température de la feuille elle-même sur sa résistance stomatique est mineure en comparaison avec les autres effets. A nouveau, la différence entre G97 et G97a pour le cas de Maun s'explique par les différentes réponses des émissions aux changements de la température de la feuille (Cf. ci-avant).

Une paramétrisation alternative de la résistance stomatique a été proposée par A. Guenther (communication personnelle). La résistance stomatique, $r_{s'}$, est décrite comme

$$r_{s'} = \begin{cases} r_{s',max} & \text{si } Q_{PAR} < 50 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ s}^{-1} \\ r_{s',min} & \text{si } Q_{PAR} > 1000 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ s}^{-1} \\ \frac{1}{950} [(r_{s',min} - r_{s',max}) Q_{PAR} + (1000 r_{s',max} - 50 r_{s',min})] & \text{si } 50 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ s}^{-1} < Q_{PAR} < 1000 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ s}^{-1} \end{cases} \quad [\text{s m}^{-1}] \quad (4.3)$$

où

Q_{PAR} est la quantité de rayonnement actif pour la photosynthèse (PAR) ou éclaircissement visible [$\mu\text{mol m}^{-2} \text{ s}^{-1}$] arrivant sur la feuille.

$r_{s',max}$ et $r_{s',min}$ sont, respectivement, les résistances maximale et minimale [s m^{-1}]. Les valeurs adoptées dans MOHYCAN, tirées de la littérature (*Lamb et al.*, 1993; *Nobel*, 1983; *Larcher*, 1980, 1995), sont données à l'Annexe C pour chaque type de végétation.

La Figure 4.6 montre la comparaison de cette résistance avec la résistance minimale $r_{s,PAR}$ pour les résineux sempervirents et les feuillus à feuilles caduques. On peut constater d'importantes différences entre ces deux paramétrisations. $r_{s,PAR}$ (en traits pleins) atteint plus vite son palier, vers $500 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Lorsque l'éclaircissement visible (PAR) est supérieur à cette valeur, $r_{s,PAR}$ est quasi constante et de l'ordre de 250 s m^{-1} . Par contre, $r_{s'}$ (en tirets) diminue encore pour atteindre $50\text{-}100 \text{ s m}^{-1}$ ($r_{s',min}$) au-delà de $1000 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Pour les très faibles valeurs de l'éclaircissement visible (PAR), $r_{s,PAR}$ tend vers l'infini tandis que $r_{s'}$ atteint une valeur constante donnée par $r_{s',max}$. La paramétrisation proposée par A. Guenther prédit donc des valeurs généralement beaucoup plus faibles de la résistance stomatique, en particulier pour les feuillus à feuilles caduques.

Le Tableau 4.3 donne les différences relatives entre les émissions moyennes de composés organiques volatils biogéniques obtenues avec $r_{s,PAR}$ et $r_{s'}$, sans les facteurs de stress pour chaque site de mesure. De manière générale, les émissions utilisant la paramétrisation de A. Guenther ($r_{s'}$) sont inférieures à celles utilisant $r_{s,PAR}$, en raison des résistances stomatiques plus faibles calculées par cette paramétrisation, qui tendent à réduire l'écart de température entre les feuilles et l'air. Les situations les plus marquées se présentent à nouveau dans les régions plus arides (Maun-G97 et Skukuza). Pour les mêmes raisons que précédemment, la différence relative est faible à Tapajós. Pour les régions tempérées (Harvard Forest), cette différence relative n'est pas négligeable (12%).

TAB. 4.3: Différences relatives (%) entre les émissions moyennes de composés organiques volatils biogéniques calculées avec $r_{s,PAR}$ et avec $r_{s'}$ aux sites de mesure décrits au Chapitre 3.

<i>Harvard Forest</i>	<i>Maun</i>		<i>Skukuza</i>	<i>Tapajós, 2000</i>	<i>Tapajós 2001</i>
G97	G97	G97a	G97	G97	G97
-12.0	-16.7	-5.8	-15.4	-5.6	-4.1

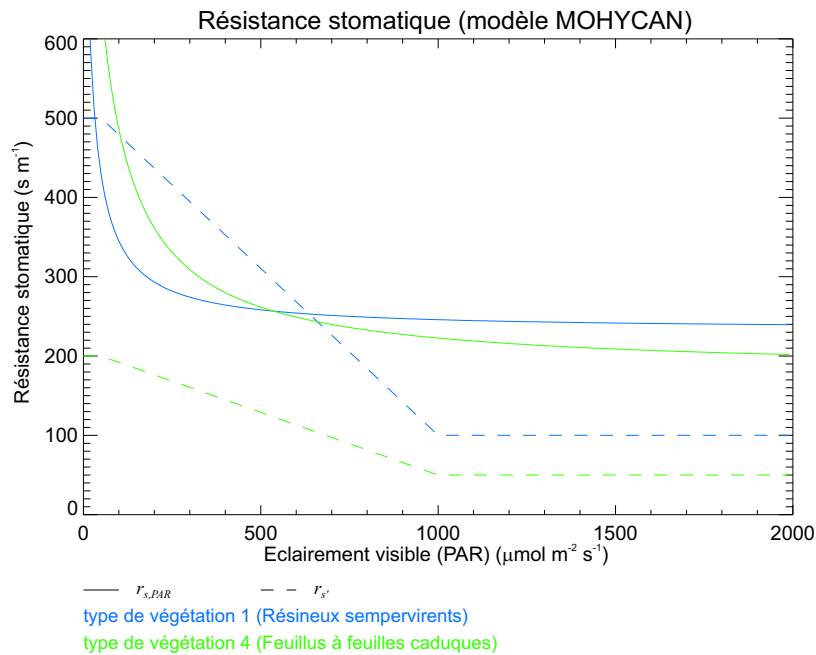


FIG. 4.6: Comparaison des résistances stomatiques $r_{s,PAR}$ et $r_{s'}$ en fonction de l'éclairement visible (PAR) pour les types de végétation 1 et 4 du modèle MOHYCAN.

4.5 L'algorithme d'isoprène

Guenther et al. (1999) ont proposé un nouvel algorithme décrivant les émissions de composés organiques volatils biogéniques dépendant du PAR et de la température de la feuille. Les émissions foliaires sont estimées comme

$$F = \varepsilon' D_f \gamma' \quad (4.4)$$

où

ε' est la capacité moyenne d'émission de l'étendue végétale considérée [$\mu\text{g C g}^{-1} \text{h}^{-1}$], D_f est la densité foliaire [g m^{-2}], et γ' est le facteur d'activité.

Le facteur d'activité γ' prend en compte les effets du PAR (C'_L), de la température de la feuille (C'_T) et de l'âge de la feuille (C'_A). Il est donné par

$$\gamma' = C'_L C'_T C'_A \quad (4.5)$$

Guenther et al. (1999) proposent, pour C'_A , la paramétrisation suivante :

$$C'_A = [A_1 \Delta D_{fm}] + [A_2 (1 - \Delta D_{fm})] \quad (4.6)$$

où

$A_1 = 0.33$ caractérise l'activité des feuilles jeunes ou vieilles,
 $A_2 = 0.95$ caractérise l'activité des feuilles matures et

$\Delta D_{fm} = \frac{|D_{fm} - D_{fm-1}|}{\max(D_{fm}, D_{fm-1})}$, et D_{fm} et D_{fm-1} sont, respectivement, les densité foliaires mensuelles du mois courant et du mois précédent.

Le facteur C'_L a une forme semblable au facteur C_L de l'algorithme de *Guenther et al.* (1993), à savoir

$$C'_L = \frac{\alpha' C'_{L1} Q_{PAR}}{\sqrt{1 + \alpha'^2 Q_{PAR}^2}} \quad (4.7)$$

où

α' et C'_{L1} ne sont plus constants comme dans les travaux de *Guenther et al.* (1993). *Harley et al.* (1996, 1997) ont en effet suggéré que ces coefficients varient avec la profondeur de la canopée. Sur base de ces études, *Guenther et al.* (1999) ont proposé :

$$\alpha' = 0.001 + 0.00085 L_c \quad (4.8)$$

et

$$C'_{L1} = 1.42 \exp(-0.3 L_c) \quad (4.9)$$

où L_c est la LAI cumulée depuis le sommet de la canopée jusqu'au niveau de la feuille. Une feuille près du sommet de la canopée a donc, pour une valeur de l'éclairement visible (PAR) = $1000 \mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$, un C'_L proche de 1 tandis qu'une feuille plus bas dans la canopée, pour le même rayonnement, a un C'_L plus faible. Par exemple, pour une LAI cumulée égale à $5 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$, C'_L vaut 0.31.

L'influence de la température est calculée comme

$$C'_T = E_{opt} \frac{C_{T2} \exp\left(C_{T1} \frac{(T_f - T_{opt})}{RT_f T_{opt}}\right)}{C_{T2} - C_{T1} \left[1 - \exp\left(C_{T2} \frac{(T_f - T_{opt})}{RT_f T_{opt}}\right)\right]} \quad (4.10)$$

où

T_f est la température de la feuille [K],

R est la constante universelle des gaz parfaits (= $8.31 \text{ J K}^{-1} \text{ mol}^{-1}$),

E_{opt} est la capacité d'émission maximale normalisée (sans dimension),

T_{opt} est la température [K] à laquelle E_{opt} se produit et,

C_{T1} (= 95000 J mol^{-1}) et C_{T2} (= $230000 \text{ J mol}^{-1}$) sont des coefficients empiriques, identiques à ceux de l'équation 2.3, qui représentent respectivement l'énergie d'activation et de désactivation.

L'équation 4.10 est pratiquement équivalente à l'équation 2.3 pour $E_{opt} = 1.9$ et $T_{opt} = 312.5 \text{ K}$. *Sharkey et al.* (1999) et *Pétron et al.* (2001) ont montré que E_{opt} et T_{opt} dépendent de la température à laquelle la feuille est exposée les jours voire les semaines précédentes. Sur base de ces études, E_{opt} et T_{opt} sont alors estimés comme

$$E_{opt} = 1.9 \exp(0.125(T_d - 301)) \quad (4.11)$$

et

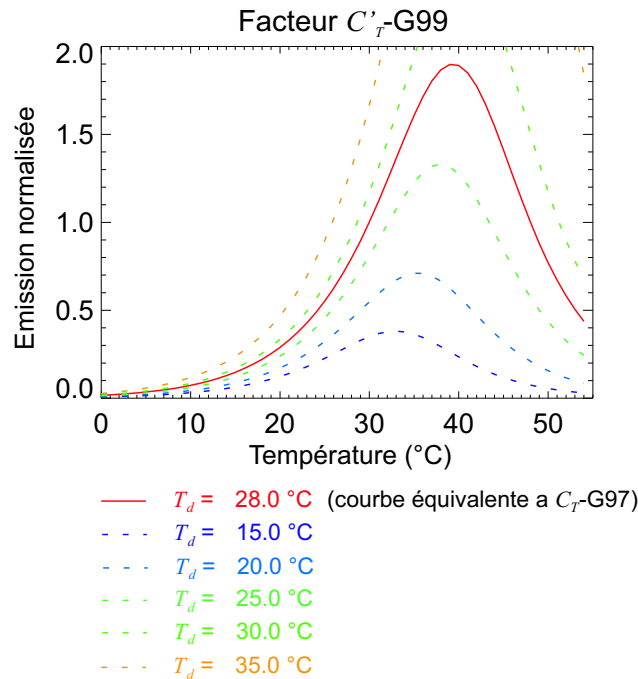


FIG. 4.7: Réponse des émissions de type isoprène à la température d'après *Guenther et al.* (1999).

$$T_{opt} = 312.5 + 0.5(T_d - 301) \quad (4.12)$$

où

T_d est la température moyenne [K] des 15 jours précédents.

La Figure 4.7 montre l'influence de la température moyenne des 15 jours précédents (T_d) sur le facteur C'_L . Pour $T_d = 28\text{ °C}$ (courbe rouge), le facteur C'_L dans G99 est équivalent à C_L dans G97. Les courbes en tirets montrent les résultats obtenus pour différentes valeurs de T_d . Pour $T_d < 28\text{ °C}$, les émissions de composés organiques volatils biogéniques résultantes sont plus faibles que dans le cas G97 tandis que pour $T_d > 28\text{ °C}$, ces émissions sont plus élevées.

Etant donnée la dépendance des émissions à la température moyenne des 15 jours précédents, l'algorithme de *Guenther et al.* (1999), que nous noterons par la suite « G99 » ne peut être testé que si l'on dispose de séries temporelles de données suffisamment longues. Parmi les campagnes que nous avons considérées, seule celle menée à la forêt de Harvard se prête à cet exercice. La principale difficulté liée à l'utilisation de l'algorithme G99 est l'absence d'information sur le paramètre ε' de l'équation 4.4. En choisissant pour ε' la valeur du facteur d'émission standard ε de l'algorithme G97 et en supposant le facteur C'_A égal à 1 (Eq.: 4.5), les émissions, à la forêt de Harvard, calculées par le modèle avec G99 sont plus faibles que celles obtenues avec G97 (-56.5% en moyenne avec T_f). Cette différence est en partie due au fait que $C'_L < C_L$ dans la canopée. Les émissions selon G97 et G99 sont similaires au sommet de la canopée mais

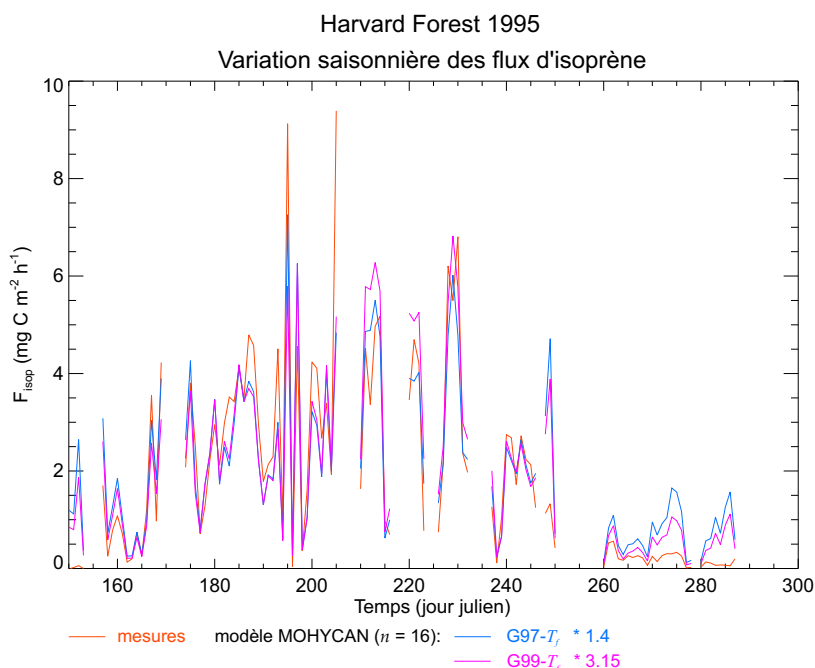


FIG. 4.8: Evolution des moyennes diurnes des flux d'isoprène mesurés et modélisés sur toute la période de mesure (juin à octobre 1995) pour la forêt de Harvard. Les flux modélisés ont été multipliés par un facteur ad-hoc (Cf. texte).

les émissions selon G99 sont plus faibles dans les couches inférieures. D'autre part, dans le cas de la forêt de Harvard, la température moyenne des 15 jours précédents est très souvent inférieure à 28°C, ce qui diminue le facteur C'_T . En moyenne, à la forêt de Harvard, les valeurs de C'_L et C'_T sont environ 25% et 37% plus faibles que celles des facteurs C_L et C_T de G97, respectivement.

En dépit de ces différences, les deux algorithmes (G97 et G99) reproduisent bien la variabilité des flux d'isoprène à la forêt de Harvard. La Figure 4.8 présente l'évolution saisonnière des moyennes journalières des émissions mesurées et calculées selon G97 et G99. Sur cette figure, les émissions modélisées ont été rééchelonnées en les multipliant par le rapport des flux mesurés moyens aux flux calculés moyens. De manière générale, les deux algorithmes s'accordent bien avec les mesures. De plus, le coefficient de corrélation entre flux modélisés et mesurés n'indique pas de meilleur accord lorsque G99 est utilisé ($r^2 \simeq 0.796$ pour G97- T_f et $r^2 \simeq 0.802$ pour G99- T_f).

L'utilisation de la paramétrisation de l'effet de l'âge de la feuille (facteur C'_A , Eq.: 4.6), n'améliorerait que très légèrement l'accord entre le modèle et les mesures en automne (jours juliens 260-290), les flux modélisés n'étant réduits que de 20% au maximum sur cette période. D'autre part, cette paramétrisation prédit une réduction d'environ un tiers des flux modélisés au mois de juin, en contradiction avec les mesures.

4.6 Conclusions

En conclusion, nous avons vu que le choix des profils verticaux de l'indice de surface de feuille, de la température de l'air et de l'humidité relative de l'air ont peu d'influence sur les émissions calculées par le modèle. De même, l'hétérogénéité horizontale de l'indice de surface de feuille a peu d'influence sur l'émission moyenne d'isoprène, tant que la LAI totale reste peu élevée comme c'est le cas au site de Maun. En effet, la réponse des émissions à l'indice de surface de feuille est presque linéaire au-dessous d'une LAI égale à $2 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$. Les émissions tendent vers une asymptote horizontale pour les grandes valeurs de LAI. En l'absence de mesure sur le terrain du degré d'hétérogénéité horizontale de l'indice de surface de feuille dans des écosystèmes plus denses comme les forêts, il n'a pas été possible de quantifier son impact sur les émissions, dans ce cas important.

Nous avons vu que des variations de l'éclairement visible (PAR) induisent des variations relatives des émissions qui leur sont similaires (en termes relatifs) lorsque la température de la feuille est utilisée. La détermination des fractions diffuses du PAR au sommet de la canopée n'a, dans ce cas, que peu d'influence sur les émissions d'isoprène. Les effets sont tout-à-fait différents lorsque c'est la température de l'air qui est utilisée pour calculer les émissions.

Les facteurs de stress intervenant dans la paramétrisation de la résistance stomatique jouent un rôle important dans les régions sèches. Le stress hydrique est particulièrement difficile à évaluer. La paramétrisation alternative proposée par A. Guenther prédit des résistances stomatiques sensiblement plus faibles que celle utilisée dans MOHYCAN, basée le modèle SiB de *Sellers et al.* (1986). L'utilisation de la paramétrisation de A. Guenther conduit à des écarts de température beaucoup plus faibles entre les feuilles et l'air.

L'influence sur les émissions des températures moyennes des 15 derniers jours proposée par *Guenther et al.* (1999), qui s'ajoute à l'influence des températures instantanées décrite au Chapitre 2, n'est pas confirmée par les données expérimentales dont nous disposons. L'effet de la paramétrisation de l'âge de la feuille, également proposée par *Guenther et al.* (1999), apparaît trop marqué au printemps et nettement insuffisant en automne. Etant données ces considérations et l'absence de base de données d'estimations expérimentales du paramètre ϵ' (Eq.: 4.4) pour les différents écosystèmes, l'algorithme G97 apparaît actuellement le plus approprié tant pour la comparaison avec les mesures que pour l'établissement d'inventaires d'émission.

CHAPITRE 5

Inventaires globaux des émissions de composés organiques volatils par la végétation

Dans les chapitres précédents, les campagnes de mesure nous ont permis de tester et d'évaluer les algorithmes d'émission (principalement l'algorithme d'isoprène G97) et le modèle MOHYCAN. L'étape suivante de ce travail est l'établissement d'un inventaire global à partir de ce modèle. Ce nouvel inventaire sera comparé à l'inventaire global de référence (GEIA) établi par *Guenther et al.* (1995) et utilisé dans de nombreux modèles globaux de chimie-transport.

Pour estimer les émissions globales de BVOC à partir du modèle MOHYCAN, il est nécessaire de connaître les distributions globales des variables suivantes :

- le type de végétation,
- la densité foliaire,
- les facteurs d'émission standard,
- l'indice de surface de feuille,
- les variables météorologiques intervenant dans le calcul de la température de la feuille et de l'éclairement visible (PAR) dans la canopée : couverture nuageuse, valeurs au sommet de la canopée des éclaircissements dans le visible (PAR) et le proche infrarouge (NIR), de la température de l'air, de l'humidité relative de l'air et de la vitesse du vent.

Pour faciliter la comparaison de nos résultats avec l'inventaire GEIA, les distributions des écosystèmes, les algorithmes d'émission et les facteurs d'émission standard utilisés par *Guenther et al.* (1995) sont également adoptés dans ce travail. Pour chacune des autres variables les plus importantes (température, rayonnement, indice de surface de feuille (LAI)), différents choix possibles seront présentés et comparés : la distribution adoptée par *Guenther et al.* (1995), ainsi que plusieurs distributions issues de climatologies plus récentes. Afin de pouvoir évaluer l'impact des différences entre

les paramétrisations du transfert radiatif dans MOHYCAN et dans le travail de *Guenther et al.* (1995), les émissions seront aussi calculées à l'aide de MOHYCAN en utilisant exactement la même procédure et les mêmes distributions des variables d'entrée que celles adoptées par *Guenther et al.* (1995).

La résolution spatiale choisie pour le nouvel inventaire est $0.5^\circ \times 0.5^\circ$. Les résultats sont donnés sous forme de moyennes mensuelles même si les calculs tiennent compte des variations de l'ensoleillement en fonction de l'heure du jour et de la nébulosité.

L'inventaire GEIA est décrit dans la section suivante. Les données (météorologie, caractéristiques des écosystèmes) utilisées pour l'établissement des inventaires seront ensuite présentées, ainsi que les principaux résultats.

5.1 L'inventaire global de référence de GEIA

GEIA (Global Emissions Inventory Activity, <http://geiacenter.org/background.html>) a été mis en place en 1990 pour développer et distribuer des inventaires globaux d'émissions de gaz et d'aérosols. L'inventaire GEIA des émissions de composés organiques volatils naturels (BVOC) reprend les émissions globales d'isoprène, de monoterpènes et des autres composés organiques volatils (ORVOC + OVOC)¹ à une résolution spatiale de $1^\circ \times 1^\circ$ et une résolution temporelle de un mois pour l'année de référence 1990. Elles ont été estimées à l'aide des algorithmes de *Guenther et al.* (1993) décrits au Chapitre 2 et d'un modèle simple de canopée (*Guenther et al.*, 1995). La température de la feuille est supposée égale à la température de l'air dans ce modèle, et la variation diurne de la température est ignorée. Les divers champs utilisés comme entrées dans ce modèle global seront décrits dans la suite de ce chapitre.

Les flux annuels globaux de BVOC sont estimés à 1150 Tg C, dont 503 Tg C pour l'isoprène, 127 Tg C pour les monoterpènes et 520 Tg C pour les autres composés.

La Figure 5.1 illustre les émissions globales d'isoprène (en haut) et de monoterpènes (en bas) pour les mois de janvier et juillet, estimées par *Guenther et al.* (1995). Les forêts tropicales en Amérique du Sud, en Afrique et dans le sud-est de l'Asie montrent des flux très élevés ($> 1 \text{ g C m}^{-2} \text{ mois}^{-1}$) durant toute l'année. Des flux élevés sont également prédits en été dans certaines régions tempérées incluant le sud-est des Etats-Unis, l'est de la Chine et le sud du Brésil, ainsi que dans certaines forêts boréales, à des latitudes comprises entre 50° et 60°N . Les flux d'isoprène estimés pour les régions de latitudes supérieures à 30°N sont faibles ($< 0.1 \text{ g C m}^{-2} \text{ mois}^{-1}$) en hiver. Les émissions de monoterpènes les plus élevées sont prédites en juillet dans le sud-est des Etats-Unis, au Canada, en Sibérie, en Scandinavie et dans les forêts tropicales. Les émissions des autres composés organiques (OVOC/ORVOC) montrent une distribution similaire à celles des émissions d'isoprène et de monoterpènes. Les émissions élevées de composés organiques biogéniques dans les régions boisées sont dues aux valeurs

¹Cf. Annexe A.

élevées de la densité foliaire et des facteurs d'émission standard qui caractérisent ces écosystèmes, ainsi qu'aux températures généralement favorables qui y règnent.

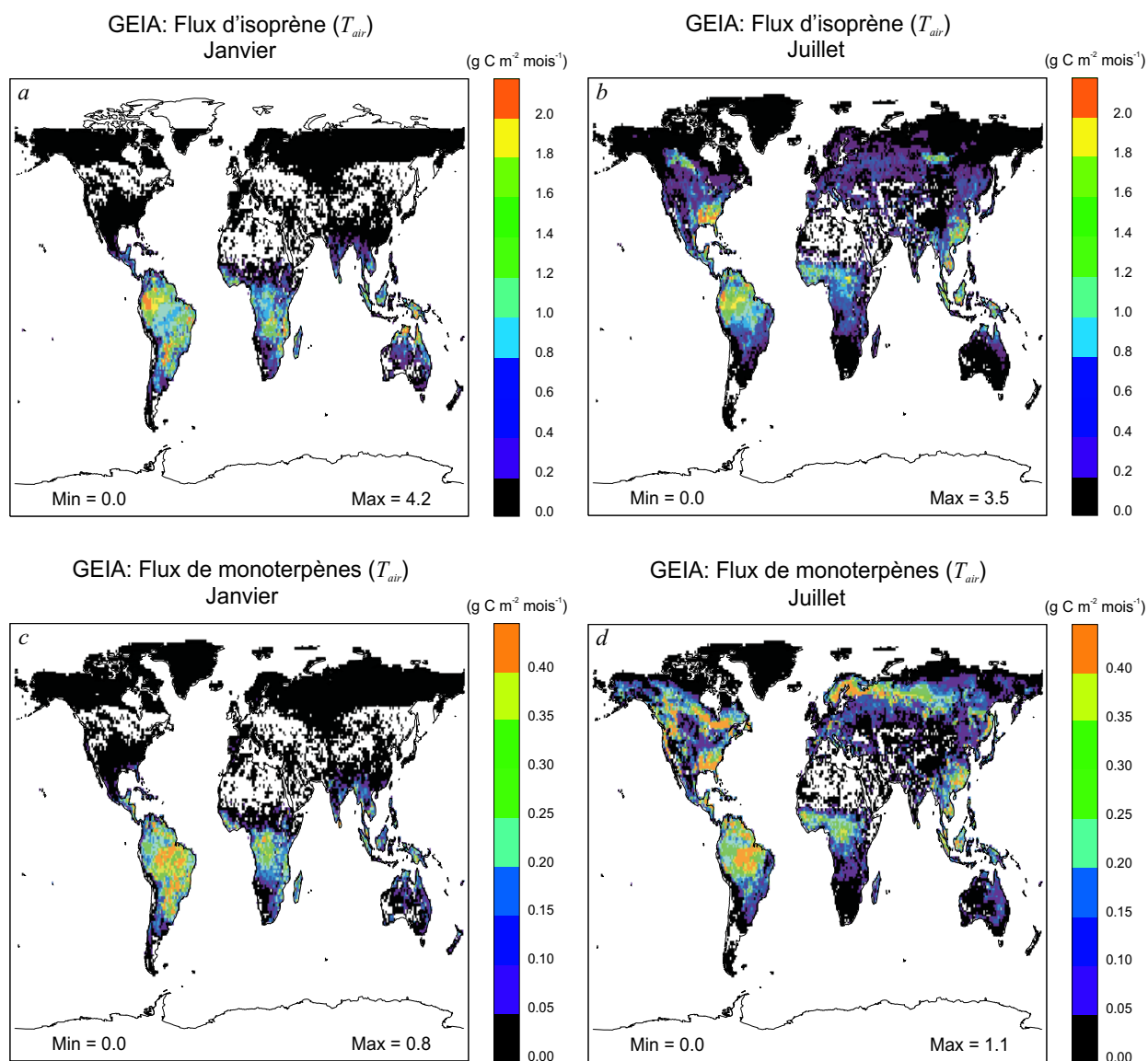


FIG. 5.1: GEIA : Distribution des émissions globales d'isoprène (en haut) et de monoterpènes (en bas) pour les mois de janvier (a – c) et juillet (b – d).

5.2 Distributions globales des champs météorologiques

5.2.1 Climatologie CRU

La base de données climatiques globales du CRU (Climatic Research Unit, Université de East Anglia) est une climatologie de moyennes mensuelles de variables météorologiques pour la période 1961-1990 sur les régions continentales, excluant l'Antarctique (*New et al.*, 1999, 2000). Cette base de données comprend les distributions de neuf variables à la surface terrestre :

- les précipitations*
- la fréquence des jours de pluie*
- la température moyenne*
- l'écart diurne de température* (c-à-d la différence entre la température maximale et la température minimale),
- la pression de vapeur*
- le rayonnement solaire global*
- la fraction nuageuse*
- la fréquence de gel,
- la vitesse du vent*

* variables utilisées dans notre étude

Les distributions de ces variables climatiques à une résolution de $0.5^\circ \times 0.5^\circ$ ont été construites par interpolation à partir de données provenant de stations météorologiques, dont le nombre varie entre 19800 pour les précipitations et 3615 pour la vitesse du vent (*New et al.*, 1999). Elles sont disponibles sur le site internet : http://ipcc-ddc.cru.uea.ac.uk/cru_data/examine/cru_climate.html.

La fiabilité de l'interpolation sur une grille régulière varie d'une région à l'autre et d'une variable à l'autre. Elle est la plus grande pour la température moyenne, l'écart de température diurne et la pression de vapeur ; suivent par ordre décroissant de fiabilité l'ensoleillement, la couverture nuageuse, la fréquence des jours de gel au sol, la fréquence des jours de pluie, les précipitations et la vitesse du vent. Dans tous les cas, les résultats sont moins fiables dans les régions pauvrement couvertes par les stations et/ou de topographie complexe. C'est le cas notamment du Groenland, de la cordillère américaine, de la région de l'Himalaya tibétain et du sud-est de l'Asie durant la saison de la mousson. Les sources d'incertitudes sur les champs interpolés incluent les erreurs d'interpolation dues à la faible densité de stations, les erreurs liées à la conversion des variables dans une unité de base commune (pour la pression de vapeur, l'ensoleillement, la couverture nuageuse, la fréquence de jours de pluie et la fréquence des jours de gel au sol) et les erreurs dans la localisation précise des stations (*New et al.*, 1999). La climatologie CRU a été comparée à d'autres climatologies (*New et al.*, 1999). Les différences entre climatologies sont attribuées aux méthodes d'interpolation et d'échantillonnage temporel. Il est cependant difficile de déterminer dans quelle mesure la qualité d'une climatologie est supérieure à celle d'une autre climatologie (*New et al.*, 1999).

5.2.2 Climatologie ISCCP

ISCCP (International Satellite Cloud Climatology Project) est un projet visant à établir une climatologie globale des nuages (couverture, température, propriétés telles que leur étendue selon la verticale, le contenu en eau, l'épaisseur optique, etc ...) à partir de données par satellite² (*Schiffer et Rossow*, 1983, 1985). Le projet ISCCP est présenté en détail sur le site : <http://isccp.giss.nasa.gov/>

Les données sont collectées par 5 satellites géostationnaires et un satellite à orbite polaire. Pour notre propos, nous avons utilisé les moyennes mensuelles moyennées sur une période de 11 ans (juillet 1983-décembre 1994) des variables suivantes :

- la couverture nuageuse,
- l'éclairement solaire global, et
- l'éclairement visible (PAR).

Ces données sont disponibles sur les sites <http://isccp.giss.nasa.gov/products/browsed2.html> (couverture nuageuse) et ftp://metosrv6.umd.edu/pub/srb/CDROM_V1/data/monthly (éclairagements solaire et visible (PAR)).

La résolution spatiale des données ISCCP est de $2.5^{\circ} \times 2.5^{\circ}$. Les sous-sections suivantes décrivent plus en détail comment la couverture nuageuse, l'éclairement solaire total et l'éclairement visible (PAR) ont été obtenus à partir des mesures par satellite.

Couverture nuageuse

La couverture nuageuse est représentée par la fréquence d'apparition de conditions nuageuses dans les pixels d'une image du satellite, chaque pixel représentant une aire d'environ 4 à 49 km² (*Rossow et Schiffer*, 1991; *Rossow et al.*, 1993). La distinction entre pixels clairs et pixels nuageux est basée sur une statistique des données d'éclairagements infrarouge et visible. Les hypothèses principales sont que les éclairagements dans les scènes claires sont moins variables que dans les scènes nuageuses et que les scènes claires composent les parties les « plus sombres » et les « plus chaudes » des distributions dans le visible et l'infrarouge, respectivement (*Rossow et Schiffer*, 1991; *Wielicki et al.*, 1995). Basées sur ces statistiques, les valeurs typiques des éclairagements visible et infrarouge en l'absence de nuage sont estimées en chaque lieu et temps. Ensuite, les données d'éclairement sont à nouveau examinées et comparées à ces valeurs. La couverture nuageuse est alors obtenue en divisant le nombre de pixels nuageux présents sur l'image par le nombre total de pixels composant cette image (*Rossow et Schiffer*, 1991; *Rossow et al.*, 1993).

Les éclairagements solaire et visible

Les éclairagements solaire et visible (PAR) à la surface de la Terre sont obtenus à partir des données par satellite selon une méthode décrite par *Pinker et Laszlo* (1992a,b). Cette méthode est basée sur la mesure, par le satellite, de la réflectance (ou albédo)

²Cf. Annexe B.

définie comme le rapport de l'éclairement réfléchi à l'éclairement incident au sommet de l'atmosphère, dans le domaine spectral 0.2-4.0 μm . De même que la transmittance (définie comme le rapport de l'éclairement à la surface à l'éclairement au sommet de l'atmosphère), cet albédo de large bande au sommet de l'atmosphère est une fonction complexe de l'angle zénithal, des quantités d'ozone, de vapeur d'eau, d'aérosols et des nuages, et de l'albédo de surface. Supposant connues les valeurs de l'angle zénithal, des quantités gazeuses, et de l'albédo de surface au moment de la mesure par le satellite, la confrontation de la valeur mesurée de l'albédo au sommet de l'atmosphère avec des valeurs calculées par un modèle de transfert radiatif permet de déterminer l'épaisseur optique des aérosols (pour les pixels clairs) ou des nuages (pour les pixels nuageux). Une fois cette épaisseur optique connue, le modèle peut être utilisé pour calculer l'éclairement à la surface. Le modèle radiatif calcule les flux transmis et réfléchis dans cinq intervalles spectraux (0.2-0.4 μm , 0.4-0.5 μm , 0.5-0.6 μm , 0.6-0.7 μm et 0.7-4.0 μm) pour une atmosphère supposée plane-parallèle, en utilisant l'approximation delta-Eddington du transfert radiatif (Joseph *et al.*, 1976). Il prend en compte (1) l'absorption par l'ozone et la vapeur d'eau, (2) la diffusion multiple par les molécules, (3) la diffusion multiple et l'absorption par les aérosols et les gouttelettes des nuages et (4) la réflexion multiple entre l'atmosphère et la surface. Les quantités d'eau précipitable sont dérivées du sondeur vertical opérationnel TIROS (« TOVS », TIROS Operational Vertical Sounder). Les quantités d'ozone sont disponibles à partir des données ISCCP C1 (Pinker *et Laszlo*, 1992a,b). La distribution verticale des aérosols est décrite par le profil approprié, choisi parmi les quatre profils (deux profils marins et deux profils continentaux) de SRA (Standard Radiation Atmosphere) (WCP-55, 1983).

En pratique, étant donné le coût informatique élevé des calculs radiatifs, on a recours à des bibliothèques pré-calculées des valeurs de l'albédo et des composantes directe et diffuse de la transmittance pour un ensemble réaliste d'angles zénithaux solaires, de quantités d'ozone et de vapeur d'eau, et d'épaisseurs optiques des aérosols et des nuages. Les transmittances ainsi déterminées permettent de calculer les composantes directe et diffuse du rayonnement solaire descendant $SW \downarrow$ pour chaque intervalle spectral. L'éclairement global spectral est obtenu en sommant les composantes directe et diffuse. Les éclairagements solaire et visible (PAR) sont calculés en sommant, respectivement, les éclairagements sur les cinq intervalles spectraux et sur les intervalles 0.4-0.7 μm . Finalement, les résultats pour un ciel clair et pour un ciel nuageux sont combinés en tenant compte de la fraction nuageuse correspondant à l'observation. La précision des éclairagements (solaire et visible (PAR)) est estimée à $\pm 10 \text{ W m}^{-2}$ en moyenne sur un mois (Pinker *et Laszlo*, 1992a,b).

5.2.3 Climatologie de Leemans et Cramer, LC

Les champs météorologiques utilisés par Guenther *et al.* (1995) pour la compilation de l'inventaire GEIA sont issus de la climatologie de Leemans *et Cramer* (1991), que nous noterons « LC ». Elle comprend des distributions globales (moyennes mensuelles sur la période 1931-1960) de

- température
- précipitation
- fraction nuageuse

La résolution spatiale est de $0.5^\circ \times 0.5^\circ$. Comme dans le cas de la climatologie CRU, ces données ont été collectées à partir de différentes stations météorologiques réparties inégalement sur la planète. Le nombre de stations retenues pour la climatologie de Leemans et Cramer (LC) est de 6280 pour la température, 6090 pour les précipitations et 1597 pour les nuages. En général, la couverture des données est bonne pour l'Europe, les Etats-Unis, le Sud du Canada, l'Est de l'Asie et le Japon. Elle est plus pauvre pour l'Afrique et l'Australie. Elle est particulièrement faible pour les régions de hautes latitudes, les régions arides et les régions montagneuses. Les données ont ensuite été interpolées par triangulation en fonction de la latitude et de la longitude.

Ces données sont disponibles sur le site :
http://www.ngcd.noaa.gov/seg/cdroms/ged_ii/datasets/a03/lc.htm

5.2.4 Comparaison des climatologies CRU, ISCCP et de Leemans et Cramer (LC)

Couverture nuageuse

La Figure 5.2 montre les couvertures nuageuses d'après les climatologies CRU (*a*), ISCCP (*b*) et de Leemans et Cramer (LC) (*c*) pour le mois de juillet. Les trois distributions montrent des valeurs faibles de la couverture nuageuse dans les régions arides, en particulier l'Afrique du Nord et le Proche-Orient, l'Afrique Australe et l'Australie. Les valeurs les plus élevées sont rencontrées en Afrique Equatoriale et en Asie du Sud. Il existe cependant des différences notables entre les trois distributions. La différence systématique la plus importante est une sous-estimation presque générale de la couverture nuageuse de Leemans et Cramer (LC), comparée aux deux autres distributions. Les couvertures nuageuses selon CRU et ISCCP diffèrent principalement dans les régions tropicales et en Asie centrale : par exemple, le minimum sur le Brésil est particulièrement moins important dans CRU ; le maximum sur l'est de l'Afrique Centrale est plus marqué dans CRU, alors que le maximum en Asie du Sud est plus marqué dans ISCCP. Le minimum est plus marqué sur l'Asie centrale dans CRU. En janvier, les maxima comme les minima sont plus marqués dans CRU que dans ISCCP. La couverture nuageuse de Leemans et Cramer (LC) ne présente pas de maximum dans les régions équatoriales en janvier et montre un minimum (0.00-0.30) prononcé sur les Etats-Unis et sur le Brésil en juillet. Par contre, aux hautes latitudes en janvier, elle est nettement supérieure à celles de CRU et ISCCP.

Température et précipitation

La Figure 5.3 montre la différence de température entre les distributions de CRU et de Leemans et Cramer (LC) ($T_{LC} - T_{CRU}$) au mois de juillet. En général, les deux

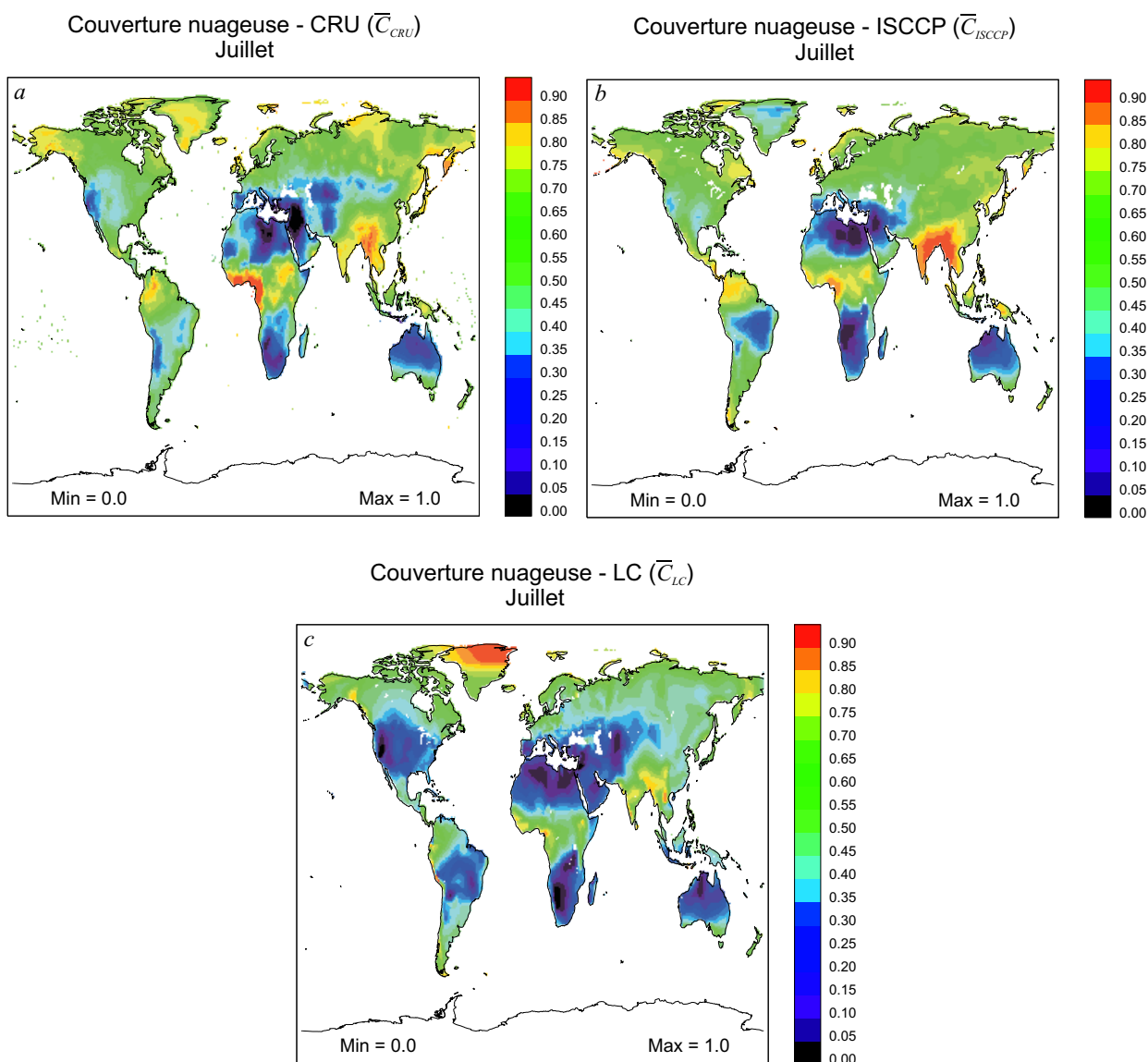


FIG. 5.2: Comparaison des couvertures nuageuses provenant des différentes climatologies : (a) CRU (\bar{C}_{CRU}), (b) ISCCP (\bar{C}_{ISCCP}) et (c) de Leemans et Cramer (LC) (\bar{C}_{LC}) pour le mois de juillet.

climatologies sont très similaires : les différences s'échelonnent entre -1°C et 1°C dans la plupart des régions. Les différences sont cependant plus marquées en hiver dans l'Hémisphère Nord.

La répartition des précipitations provenant des climatologies CRU et de Leemans et Cramer (LC) sont très semblables. En moyenne zonale, elles ne diffèrent qu'aux hautes latitudes (New *et al.*, 1999).

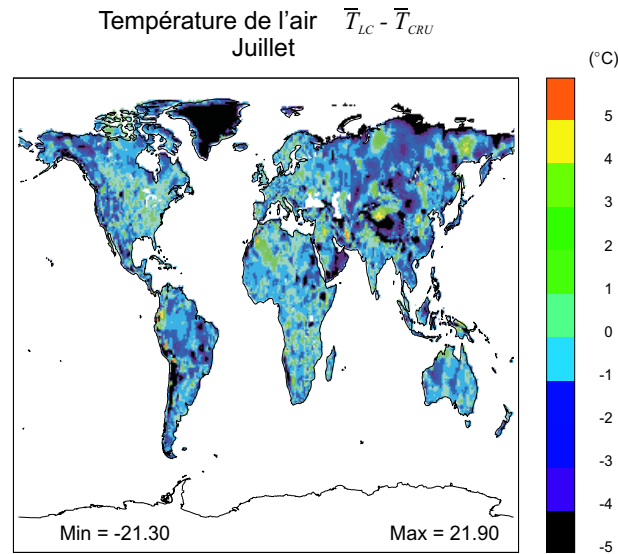


FIG. 5.3: Différence entre la température de l'air selon *Leemans et Cramer* (1991) (\bar{T}_{LC}) et celle selon CRU (\bar{T}_{CRU}) pour le mois de juillet.

5.2.5 Détermination de l'éclairement visible

Les climatologies CRU et de Leemans et Cramer (LC) n'incluant pas de distribution de l'éclairement visible (PAR), elles ont été complétées en suivant les procédures décrites ci-après.

CRU

La distribution de l'éclairement visible (PAR) est déduite de celle de l'éclairement solaire global (SW) fournie par CRU, tenant compte de ce que le rapport des éclairagements visible (PAR) et solaire (SW) est relativement constant dans le temps et l'espace. Le rapport des moyennes mensuelles de l'éclairement visible (PAR) (\overline{PAR}_{ISCCP}) à l'éclairement solaire global (\overline{SW}_{ISCCP}) dans ISCCP vaut

$$R_{ISCCP} = \frac{\overline{PAR}_{ISCCP}}{\overline{SW}_{ISCCP}} \quad (5.1)$$

Ici comme dans le reste de ce chapitre, les barres dénotent les moyennes mensuelles. Les valeurs les plus élevées de ce rapport (environ 0.5) sont rencontrées dans les régions tropicales humides, en raison de l'absorption importante du proche infrarouge par la vapeur d'eau. R_{ISCCP} avoisine 0.45 aux latitudes moyennes en été et 0.42 dans les régions arides, où la vapeur d'eau est peu abondante. En supposant ce rapport constant au cours de chaque mois, l'éclairement visible (PAR) moyen mensuel dans CRU (PAR_{CRU}) est déterminé par :

$$\overline{PAR}_{CRU} = R_{ISCCP} \times \overline{SW}_{CRU} \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (5.2)$$

où \overline{SW}_{CRU} est la moyenne mensuelle du rayonnement solaire global selon CRU.

Leemans et Cramer (LC)

Dans l'étude de *Guenther et al.* (1995), l'éclairement visible (PAR) est déterminé à partir de sa valeur pour un ciel clair corrigée selon *Holtzlag et Van Ulden* (1983) pour tenir compte de la fraction nuageuse dont la distribution est fournie par la climatologie de *Leemans et Cramer* (1991). Nous déterminons l'éclairement visible (PAR) pour un ciel clair par interpolation linéaire à partir de valeurs tabulées pré-calculées par le modèle radiatif atmosphérique décrit au Chapitre 2. Ces valeurs sont corrigées pour tenir compte de variations de la distance Terre-Soleil (*Spencer*, 1971). La moyenne mensuelle est construite à partir des valeurs calculées toutes les demi-heures aux jours 5, 15 et 25 de chaque mois :

$$\overline{PAR}_{clair} = \frac{1}{N_1} \frac{1}{N_2} \sum_{i_1=1}^{N_1} \sum_{i_2=1}^{N_2} PAR_{mod}(\theta(i_1, i_2), \tau = 0) \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (5.3)$$

où

N_1 (= 3) est le nombre de jours considérés par mois,

N_2 (= 48) est le nombre de pas de temps considérés par jour,

$PAR_{mod}(\theta(i_1, i_2), \tau = 0)$ est l'éclairement visible (PAR) pour un angle zénithal $\theta(i_1, i_2)$ correspondant au pas de temps considéré et pour une épaisseur optique des nuages τ nulle.

La climatologie de l'éclairement visible (PAR) selon *Guenther et al.* (1995) (PAR_{G95}) est déterminée en appliquant la correction proposée par *Holtzlag et Van Ulden* (1983) pour tenir compte des nuages :

$$\overline{PAR}_{G95} = \overline{PAR}_{clair} (1 - 0.75 \overline{C}_{LC}^{3.4}) \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (5.4)$$

où

\overline{C}_{LC} est la moyenne mensuelle de la fraction nuageuse, donnée par la climatologie de *Leemans et Cramer* (LC).

Comparaison des éclairagements visibles des différentes climatologies

Les distributions de l'éclairement visible (PAR) selon les trois climatologies (CRU, ISCCP et G95) sont illustrées à la Figure 5.4. De manière générale, les valeurs prédites par G95 sont nettement supérieures à celles des climatologies CRU et ISCCP. En janvier dans l'Hémisphère Sud, des différences relatives atteignant 50% voire 100% sont observées entre PAR-G95 et PAR-CRU. En juillet, ces différences, moins prononcées (10-60%), se produisent particulièrement dans l'Hémisphère Nord. L'allure générale des distributions prédites par CRU et ISCCP est relativement similaire. Cependant, en juillet, le maximum observé en Afrique du Nord et au Proche-Orient est environ 20% plus élevé

dans CRU. CRU présente un minimum très prononcé à l'est de l'Afrique Centrale qui est absent dans la climatologie ISCCP. En janvier, les éclaircissements visibles (PAR) prédits par ISCCP sont nettement plus élevés dans l'Hémisphère Sud, particulièrement dans les régions tropicales humides (Amazonie, Afrique Centrale et Asie du Sud-Est). Les différences relatives entre les valeurs prédites par ISCCP et par CRU dans ces régions sont supérieures à 50%.

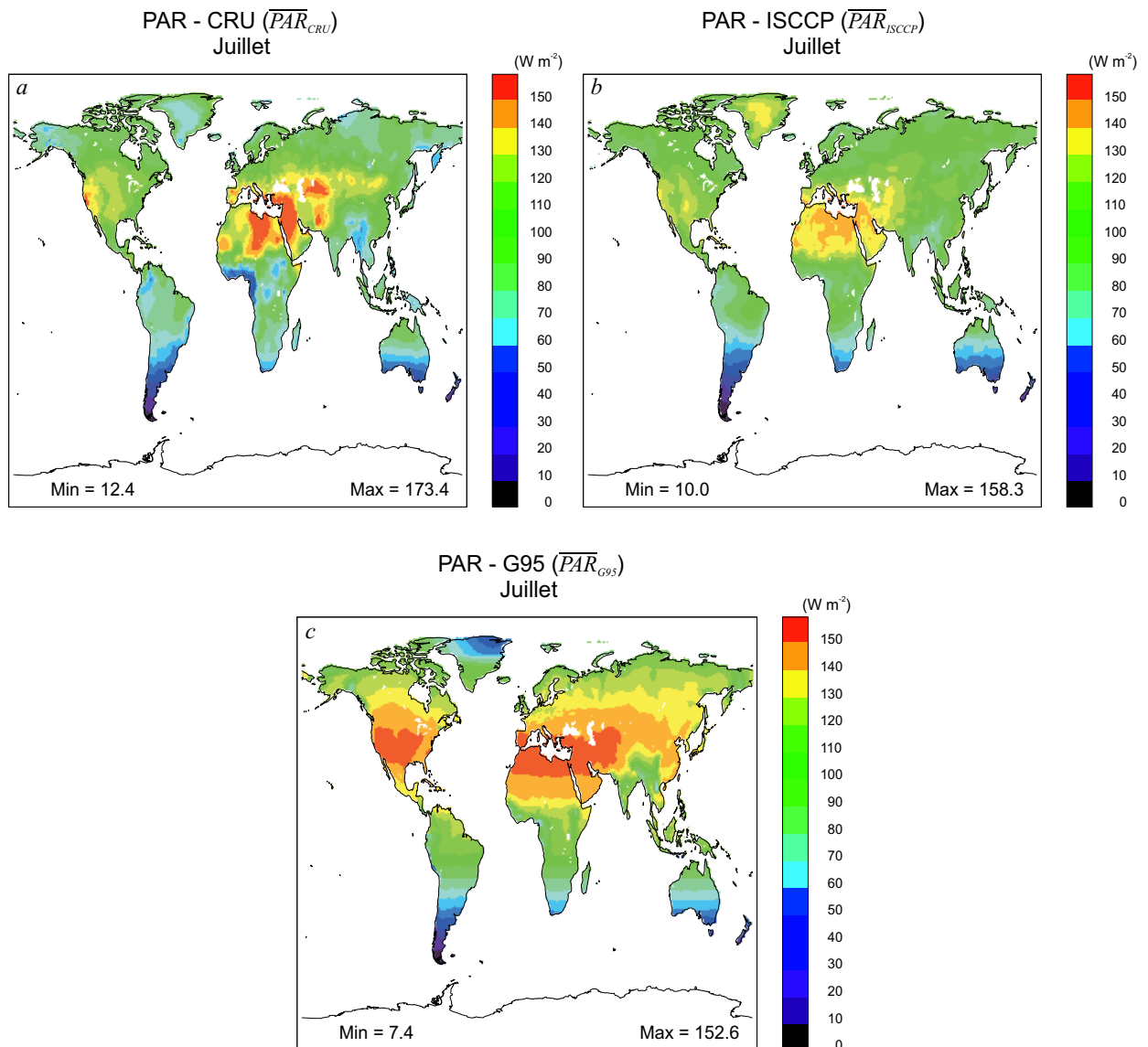


FIG. 5.4: Comparaison des éclaircissements visibles (PAR) d'après les trois climatologies considérées : (a) CRU (\overline{PAR}_{CRU}), (b) ISCCP (\overline{PAR}_{ISCCP}) et (c) G95 (\overline{PAR}_{G95}) pour le mois de juillet.

5.3 Caractéristiques de la végétation

5.3.1 Classification des écosystèmes - Les écosystèmes de la base de données de Olson

Comme indiqué plus haut, dans le but de faciliter nos comparaisons avec l'inventaires GEIA, nous avons adopté la classification des écosystèmes selon *Olson* (1992). Cette base de données comprend 74 types d'écosystèmes, dont les grands groupes sont, entre autres, les forêts de conifères, les forêts de feuillus, les forêts mixtes, les forêts tropicales humides, les savanes, la taïga, les déserts et les zones marécageuses. La résolution spatiale est de $0.5^\circ \times 0.5^\circ$. Chaque cellule de la grille est occupée par l'un des 74 écosystèmes d'Olson.

Le Tableau 5.1 donne une description de quelques écosystèmes de cette classification, à savoir, les conifères boréaux, les feuillus des régions sèches, les forêts tropicales saisonnières et humides et la savane. La Figure 5.5 montre la localisation de ces 5 écosystèmes.

TAB. 5.1: Quelques écosystèmes typiques de la classification de *Olson* (1992).

Code d'Olson	Classification	Description
21	Conifères boréaux	Principales forêts boréales composées de conifères
29	Forêts tropicales saisonnières	Forêts tropicales saisonnières de feuillus, avec une saison sèche ou froide
32	Feuillus des régions sèches	Forêts saisonnières des régions sèches; très fréquemment brûlées
33	Forêts tropicales humides	Forêts tropicales humides
43	Savane	Savane, prairie, bois saisonniers : des arbres ou des broussailles au-dessus des herbes couvrant le sol peuvent être entremêlés dans la savane; la fréquence des feux y est élevée

5.3.2 Les facteurs d'émission standard, ε

Les facteurs d'émission standard adoptés dans notre travail pour l'isoprène, les monoterpènes et les autres composés organiques volatils sont ceux de l'inventaire GEIA (*Guenther et al.*, 1995). Chaque écosystème terrestre est caractérisé par l'une des cinq valeurs suivantes de ε pour l'isoprène : 5, 8, 16, 24 et 45 $\mu\text{g C g}^{-1} \text{h}^{-1}$. Les cinq catégories de ε pour les monoterpènes sont 0.2, 0.4, 0.8, 1.2 et 2.4 $\mu\text{g C g}^{-1} \text{h}^{-1}$. Les valeurs par défaut de ε sont de 5 $\mu\text{g C g}^{-1} \text{h}^{-1}$ (isoprène) et de 0.2 $\mu\text{g C g}^{-1} \text{h}^{-1}$

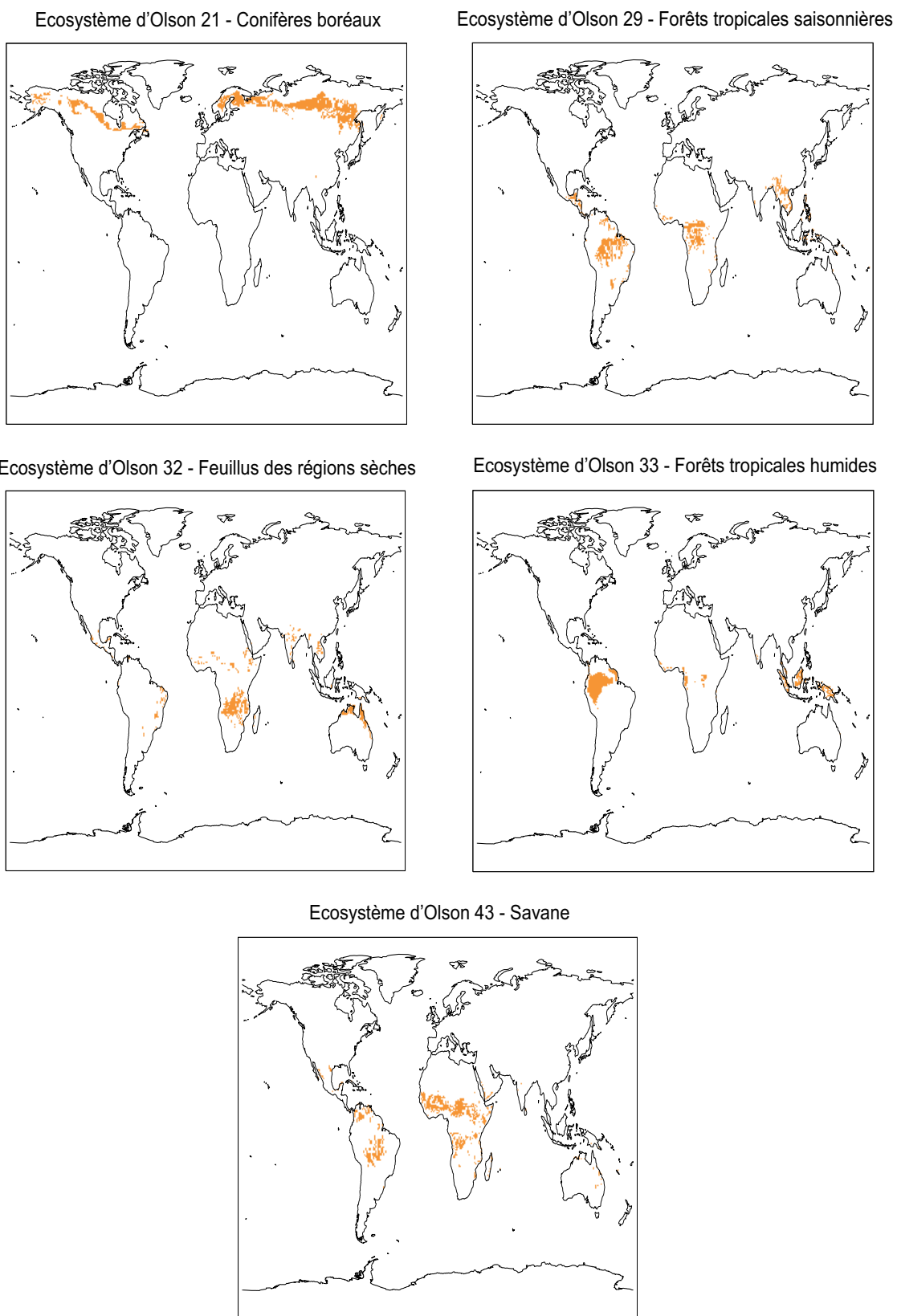


FIG. 5.5: Localisation des écosystèmes d'Olson du Tableau 5.1.

(monoterpènes) pour les cultures et les prairies, et de $16 \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$ (isoprène) et de $0.8 \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$ (monoterpènes) pour tous les écosystèmes pour lesquels aucune mesure n'a été reportée. *Guenther et al.* (1995) ont fait l'hypothèse d'un facteur d'émission standard unique de $1.5 \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$ pour les ORVOC et pour les OVOC.

Nous avons établi une correspondance entre les écosystèmes d'Olson et les types de végétation du modèle MOHYCAN. Les types de végétation 1 et 2 dans MOHYCAN étant très similaires, seul le type de végétation 1 (résineux sempervirents) est retenu dans l'inventaire global. Les valeurs des facteurs d'émission standard adoptés dans ce travail sont les suivantes : pour l'isoprène et les monoterpènes respectivement, $\varepsilon_{isop} = 8 \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$ et $\varepsilon_{monot} = 2.4 \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$ pour les résineux sempervirents, $\varepsilon_{isop} = 24 \mu\text{g C g}^{-1}$ et $\varepsilon_{monot} = 0.8 \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$ pour les feuillus à feuilles caduques et sempervirents, $\varepsilon_{isop} = 45 \mu\text{g C g}^{-1}$ et $\varepsilon_{monot} = 2.4 \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$ pour les broussailles, et $\varepsilon_{isop} = 5 \mu\text{g C g}^{-1}$ et $\varepsilon_{monot} = 0.2 \mu\text{g C g}^{-1} \text{ h}^{-1}$ pour les herbes et les cultures. Pour chaque écosystème de la classification d'Olson, nous avons attribué les fractions occupées par les types de végétation du modèle de telle sorte que les facteurs d'émission standard pour l'écosystème composé des types de végétation de MOHYCAN correspondent à ceux donnés par *Guenther et al.* (1995).

5.3.3 La densité foliaire et l'indice de surface de feuille

La densité foliaire est liée à l'indice de surface de feuille (LAI) selon *Guenther et al.* (1995) :

$$LAI = \frac{\overline{D_f}}{S_f} \quad [\text{m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}] \quad (5.5)$$

où

$\overline{D_f}$ est la moyenne mensuelle de la densité foliaire [g_{ms} (matière sèche) $\text{m}_{\text{sol}}^{-2}$] et S_f est le poids spécifique de la feuille [g m^{-2}]. Les valeurs de S_f , pour chaque écosystème d'Olson, sont estimés selon *Box* (1981); *Guenther et al.* (1995). Les valeurs adoptées pour S_f sont typiquement 150 g m^{-2} pour les résineux sempervirents, 100 g m^{-2} pour les feuillus sempervirents et 125 g m^{-2} pour les caducifoliés, les broussailles, les herbes et les cultures.

Dans les sous-sections suivantes, nous présentons trois estimations de la distribution de l'indice de surface de feuille basées sur les mesures par satellite de NDVI (Normalized Difference Vegetation Index) ou de GVI (Global Vegetation Index).

Nous noterons ces trois estimations respectivement « LAI-Myneni », « LAI-G95 (CRU) » et « LAI-G95 (LC) » en fonction des algorithmes et des climatologies utilisés pour ces estimations.

Les mesures AVHRR

L'instrument AVHRR (Advanced Very High Resolution Radiometer) à bord des satellites à orbite polaire NOAA (National Oceanic and Atmospheric Administration) balaye

la Terre à une altitude d'environ 833 km. Il mesure les rayonnements dans différentes bandes spectrales à une résolution allant jusqu'à environ 1 km au nadir.

NDVI L'indice de végétation appelé NDVI est une mesure de la présence de végétation. Il est défini comme

$$\frac{\rho_{NIR} - \rho_R}{\rho_{NIR} + \rho_R} \quad (5.6)$$

où ρ_{NIR} et ρ_R sont les réflectances dans les bandes spectrales du proche infrarouge (NIR) (0.725-1.1 μm) et du rouge (0.58-0.68 μm) respectivement. Le GVI est lié au NDVI par (Guenther et al., 1995) :

$$GVI = 100(1 + NDVI) \quad (5.7)$$

Le principe est basé sur les propriétés d'absorption du rayonnement par les feuilles dans ces deux gammes de longueur d'onde (Tucker, 1979). Les réflectances sont corrigées pour tenir compte des propriétés de l'atmosphère (absorption, diffusion).

LAI-Myneni

Des algorithmes élaborés permettent de déterminer l'indice de surface de feuille à partir de mesures de l'indice NDVI (Myneni et al., 1995, 1997). Le principe est le suivant. Une classification des écosystèmes, compatible avec ces algorithmes, doit d'abord être développée. Les écosystèmes sont classés en 6 types dépendant de la structure de leur canopée : (1) herbes/cultures céréalières, (2) broussailles, (3) cultures à larges feuilles, (4) savanes, (5) forêts de feuillus et (6) forêts de conifères. Un modèle de transfert radiatif dans la canopée capable de simuler l'absorption et la diffusion dans ces six classes structurales est nécessaire pour estimer l'indice de surface de feuille à partir des mesures de réflectance. La variation saisonnière de l'indice NDVI permet de séparer les zones de végétation des zones sans végétation. Le globe est divisé en trois zones (tropicale, tempérée et boréale) sur base de la durée de la période de gel. Dans chaque zone, les forêts sont d'abord sélectionnées à partir de la valeur de l'indice NDVI lorsque la température de surface est maximale. Dans les régions tempérées et boréales, la distinction entre feuillus et conifères est effectuée sur base de la valeur de la réflectance dans le proche infrarouge lorsque l'indice NDVI est maximal. Les zones non forestières sont classées en savanes, cultures à larges feuilles, broussailles et herbes/cultures céréalières. La distinction entre ces différents types de végétation est effectuée grâce à la valeur de la réflectance dans le rouge lorsque l'indice NDVI est maximal. Les résultats indiquent que cet algorithme identifie avec succès les biomes 2, 5 et 6 dans 75% des cas. Par contre, les cultures à larges feuilles sont identifiées comme des forêts dans 40% des cas.

Cette classification des écosystèmes a l'avantage d'être simple et opérationnelle. Le principal désavantage de cet algorithme est la validité limitée des seuils de l'indice NDVI à partir desquels la classification est faite.

L'indice de surface de feuille est ensuite estimé à l'aide des algorithmes décrits par *Myneni et al.* (1995, 1997). Sa valeur ainsi estimée varie entre 0.1 et $6 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$, avec une incertitude de 50%. Ces estimations sont valables pour les écosystèmes connaissant un maximum saisonnier. Ces données d'indice de surface de feuille (LAI) sont disponibles, pour chaque mois de juillet 1981 à mai 2001, sur les sites :

<http://cybele.bu.edu/modismisr/products/avhrr/avhrrlaifpar.html> et

ftp://crsa.bu.edu/pub/rmyneni/myneniproducts/datasets/AVHRR_DATASETS/PATHFINDER/VERSION3_DATA/

La résolution spatiale est de $0.5^\circ \times 0.5^\circ$. Les moyennes sur 20 ans des valeurs mensuelles seront utilisées dans ce travail. Dans la suite, nous noterons cette estimation de l'indice de surface de feuille « LAI-Myneni »

LAI-G95

Guenther et al. (1995) estiment l'indice de surface de feuille à l'aide de l'équation 5.5, à partir de la densité foliaire. Cette dernière est estimée à partir des mesures de la température, des précipitations et de l'indice de végétation GVI. Le pic annuel de la densité foliaire est déterminé à partir la productivité primaire nette (NPP³) annuelle en chaque point de grille ($0.5^\circ \times 0.5^\circ$). Celle-ci est estimée suivant les algorithmes empiriques de *Lieth* (1975) comme

$$NPP = \min(NPP_T, NPP_P) \quad [\text{g}_{\text{ms}} \text{ m}^{-2} \text{ an}^{-1}] \quad (5.8)$$

où

$$NPP_T = \frac{3000}{1 + \exp(1.315 - 0.119 T)} \quad [\text{g}_{\text{ms}} \text{ m}^{-2} \text{ an}^{-1}] \quad (5.9)$$

et

$$NPP_P = 3000 [1 - \exp(-0.000664 P)] \quad [\text{g}_{\text{ms}} \text{ m}^{-2} \text{ an}^{-1}] \quad (5.10)$$

T et P sont ici la température moyenne annuelle [°C] et le taux de précipitation cumulée sur l'année [mm].

La Figure 5.6 illustre les distributions de la productivité primaire nette obtenues à l'aide des climatologies CRU et de Leemans et Cramer (LC). Les deux distributions sont très similaires. Notons simplement de légères différences sur l'Amazonie et l'Afrique centrale, qui sont liées aux légères différences de température et de précipitation entre CRU et Leemans et Cramer (LC).

Le pic de la densité foliaire est le maximum de la moyenne mensuelle de la densité foliaire au cours de l'année. Il est estimé comme

$$D_p = D_r NPP \quad [\text{g}_{\text{ms}} \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}] \quad (5.11)$$

³Cf. Annexe B.

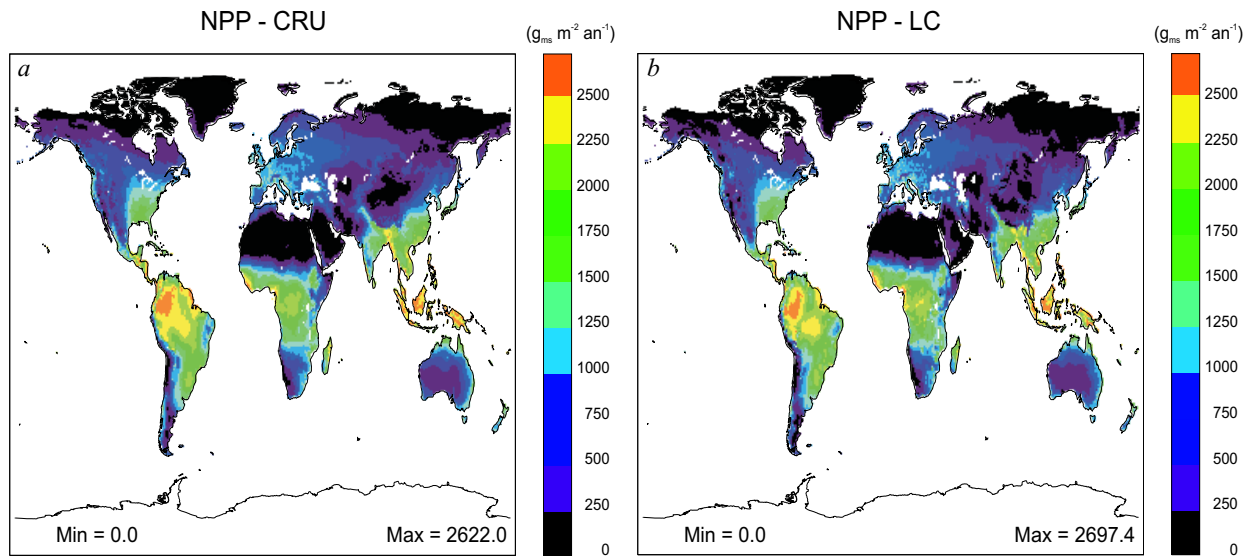


FIG. 5.6: Comparaison de la productivité primaire nette (NPP) obtenue à l'aide des climatologies CRU (a) et de Leemans et Cramer (LC) (b).

où D_r est un coefficient empirique dépendant de l'écosystème [an] dont les valeurs sont obtenues de *Guenther et al. (1995)*. Elles sont plus grandes que 1 pour les écosystèmes dominés par les plantes qui retiennent leur feuillage plus d'un an.

La densité foliaire, tout comme l'indice de surface de feuille (LAI), peut varier considérablement avec la saison et d'une année à l'autre (*Burton et al., 1991*). Ces variations peuvent être estimées à partir des mesures par satellite de GVI.

La moyenne mensuelle de la densité foliaire ($\overline{D_f}$), en chaque point de grille, est liée à l'indice GVI et est estimée selon *Guenther et al. (1995)*. $\overline{D_f}$ est négligeable quand la moyenne mensuelle du GVI (G) est inférieure à un seuil G_2 et augmente exponentiellement au-delà :

$$\overline{D_f} = \begin{cases} 0 & \text{si } G < G_2 \\ D_p \left[2^{\frac{G-G_2}{G_{\text{max}}-G_2}} - 1 \right] & \text{si } G > G_2 \end{cases} \quad [\text{g}_{\text{ms}} \text{m}_{\text{sol}}^{-2}] \quad (5.12)$$

où G_{max} est le maximum des moyennes mensuelles de l'indice GVI (G) estimées durant l'année.

Les valeurs de G_2 ont été déterminées par *Guenther et al. (1995)* : $G_2 = 110$ pour les régions boisées et $G_2 = 102$ pour tous les autres écosystèmes.

Deux bases de données de l'indice NDVI sont à notre disposition :

– les données disponibles, pour chaque mois de juillet 1981 à mai 2001, sur les sites :

<http://cybele.bu.edu/modismisr/products/avhrr/avhrrlaifpar.html> et

ftp://crsa.bu.edu/pub/rmyneni/myneniprducts/datasets/AVHRR_DATASETS/PATHFINDER/VERSION3_DATA/

La résolution spatiale est de $0.5^\circ \times 0.5^\circ$. Les moyennes sur 20 ans des valeurs

mensuelles seront utilisées dans ce travail. Ces données combinées à l'estimation de la productivité primaire nette à l'aide de la climatologie CRU nous donneront une estimation de l'indice de surface de feuille que nous noterons dans la suite « LAI-G95 (CRU) ».

- les données utilisées par *Guenther et al.* (1995) basées sur les estimations de l'indice GVI de *Gallo* (1992) (NOAA/NESDIS National Environmental Satellite, Data, and Information Service) pour l'année de référence 1990. Ces données, à haute résolution ($0.167^\circ \times 0.167^\circ$) ont été adaptées à notre grille $0.5^\circ \times 0.5^\circ$. Elles sont disponibles sur le site :

http://www.ngcd.noaa.gov/seg/eco/cdroms/ged_ii/datasets/a02/mev.htm

En accord avec *Guenther et al.* (1995), l'indice de surface de feuille est estimée à l'aide de ces valeurs et de l'estimation de la productivité primaire nette basée sur la climatologie de Leemans et Cramer (LC). Dans la suite, nous noterons ces estimations « LAI-G95 (LC) ».

Comparaison des distributions de l'indice de surface de feuille La Figure 5.7 compare les distributions obtenues pour le mois de juillet. De manière générale, les deux distributions basées sur l'algorithme de *Guenther et al.* (1995) (LAI-G95 (CRU) et LAI-G95 (LC)) sont similaires. Elles sont toutes deux plus contrastées et montrent des valeurs supérieures aux valeurs prédites par l'algorithme de *Myneni et al.* (1995, 1997) (LAI-Myneni). Rappelons que cet algorithme impose une limite supérieure égale à $6.0 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$. L'indice de surface de feuille calculée selon *Guenther et al.* (1995) atteint $10 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$ sur les forêts tropicales humides. Cependant, elle est inférieure à $3 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$ en Sibérie Orientale et en Alaska en juillet, alors que les valeurs prédites par *Myneni et al.* (1995, 1997) avoisinent $6.0 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$.

En général, la LAI-G95 (LC) est légèrement inférieure à la LAI-G95 (CRU). Ces résultats sont liés en partie aux différences entre les mesures par satellite sur lesquelles ces distributions sont basées : une moyenne sur 20 ans dans le cas de LAI-G95 (CRU) et une année particulière (1990) dans le cas de LAI-G95 (LC). D'autre part, nous avons vu qu'il existe de légères différences entre les distributions de la productivité primaire nette (NPP) dérivées des climatologies CRU et de Leemans et Cramer (LC) (Cf. Figure 5.6).

Comparaison avec des mesures sur le terrain Etant données les très grandes différences entre les distributions de l'indice de surface de feuille, nous les avons confrontées à des mesures sur le terrain.

Une base de données de mesure de l'indice de surface de feuille a été créée par l'ORNL – DAAC (Oak Ridge National Laboratory – Distributed Active Archive Center). Elle inclut approximativement 1000 estimations publiées de l'indice de surface de feuille sur environ 450 sites de mesure, couvrant la période de 1932 à 2000 (*Scurlock et al.*, 2001). Elle est disponible sur le site internet :

http://daac.ornl.gov/daacpages/vegetation_collections.html.

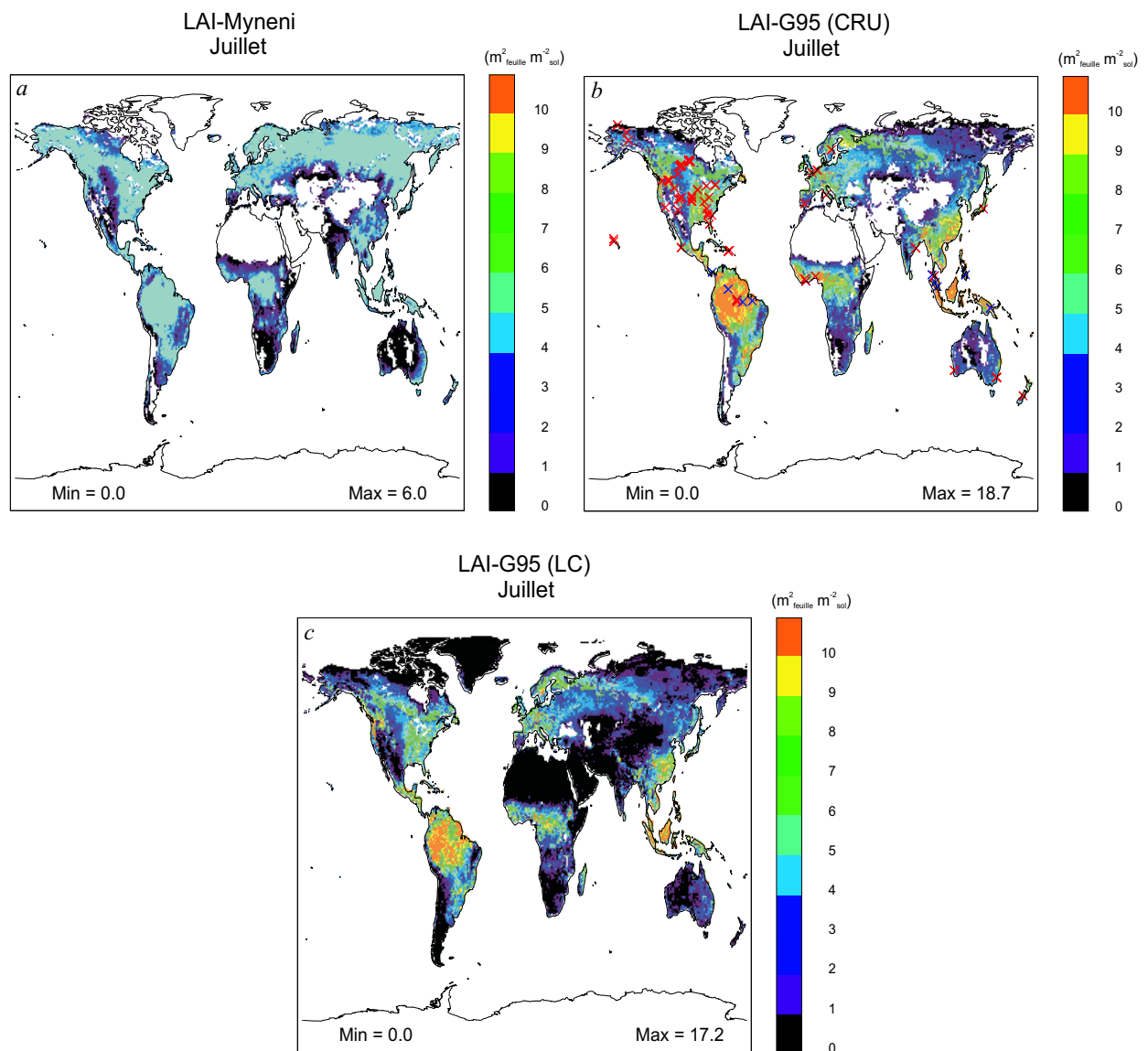


FIG. 5.7: Distributions de l'indice de surface de feuille basées sur les mesures AVHRR, (a) obtenue par *Myneni et al.* (1995, 1997), et (b) et (c) obtenues selon l'algorithme de *Guenther et al.* (1995) utilisant les estimations de la productivité primaire nette basées sur les climatologies CRU et de Leemans et Cramer (LC), respectivement (juillet). Les croix sur la figure b indiquent les sites de mesure de l'indice de surface de feuille sur le terrain sélectionnés à partir des données ORNL – DAAC. Les croix rouges indiquent les sites pour lesquels la période de mesure est connue et les croix bleues indiquent les sites dans les forêts tropicales humides.

Pour notre comparaison, nous avons sélectionné d'une part, les données pour lesquelles la période de mesure est connue et appropriée pour la comparaison, et d'autre part, les sites des forêts tropicales humides. Nous les noterons « LAI-terrain ». La Figure 5.7 b indique par les croix les sites que nous avons repris pour notre comparaison.

La Figure 5.8 compare les mesures sur le terrain avec les estimations LAI-Myneni (en bleu) et LAI-G95 (CRU) (en rouge) pour différentes bandes de latitude. En général, les deux algorithmes basés sur la télédétection tendent à surestimer l'indice de surface de feuille, en particulier aux latitudes moyennes et élevées, et aux Tropiques dans le cas de LAI-G95. L'algorithme de *Myneni et al.* (1995, 1997) (LAI-Myneni) reproduit également particulièrement mal la variabilité observée sur le terrain, quoiqu'il convienne de rappeler que l'on compare ici des mesures locales (dans le temps et l'espace) avec des estimations climatologiques à une résolution d'environ 50 km×50 km. En dépit de cette difficulté, il apparaît probable que l'algorithme de *Myneni et al.* (1995, 1997) surestime l'indice de surface de feuille aux latitudes élevées, tandis que LAI-G95 le surestime à toutes les latitudes.

Ceci nous informe des grandes précautions à prendre lors de l'analyse des résultats obtenus pour les émissions de composés organiques volatils biogéniques en utilisant les estimations obtenues par télédétection.

5.4 Procédure pour calculer les émissions

Les différentes climatologies météorologiques et de l'indice de surface de feuille (LAI) présentées dans les sections précédentes sont des moyennes mensuelles. Étant données les variations temporelles importantes des émissions de BVOC, il est nécessaire de calculer ces émissions en différents pas de temps répartis sur une journée et sur le mois considéré : les émissions seront calculées pour $N'_1 = 3$ jours par mois (les jours 5, 15 et 25) et $N'_2 = 12$ temps par jour (aux heures locales 1h00, 3h00, 5h00, ..., 23h00). En outre, les émissions seront calculées séparément pour les situations de ciel clair et de ciel nuageux (sauf lorsque la procédure de *Guenther et al.* (1995) est appliquée).

5.4.1 Variation diurne du rayonnement et séparation ciel clair/nuageux

Les valeurs moyennes de l'éclairement visible (PAR) pour des conditions claires et pour des conditions nuageuses sont déterminées en chaque pas de temps à partir des valeurs mensuelles (\overline{PAR}) de la façon suivante. Supposant que la fraction nuageuse et l'épaisseur optique des nuages sont constantes sur tout le mois, nous écrivons

$$\overline{PAR} = (1 - \overline{C}) \overline{PAR}_{clair} + \overline{C} \overline{PAR}_{nuageux} \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (5.13)$$

où

\overline{C} est la fraction nuageuse et \overline{PAR}_{clair} et $\overline{PAR}_{nuageux}$ représentent respectivement la moyenne mensuelle de l'éclairement visible (PAR) dans les situations de ciel clair et de ciel complètement nuageux.

\overline{PAR}_{clair} est déterminé conformément à l'équation 5.3. $\overline{PAR}_{nuageux}$ est alors obtenu à partir de l'équation 5.13 :

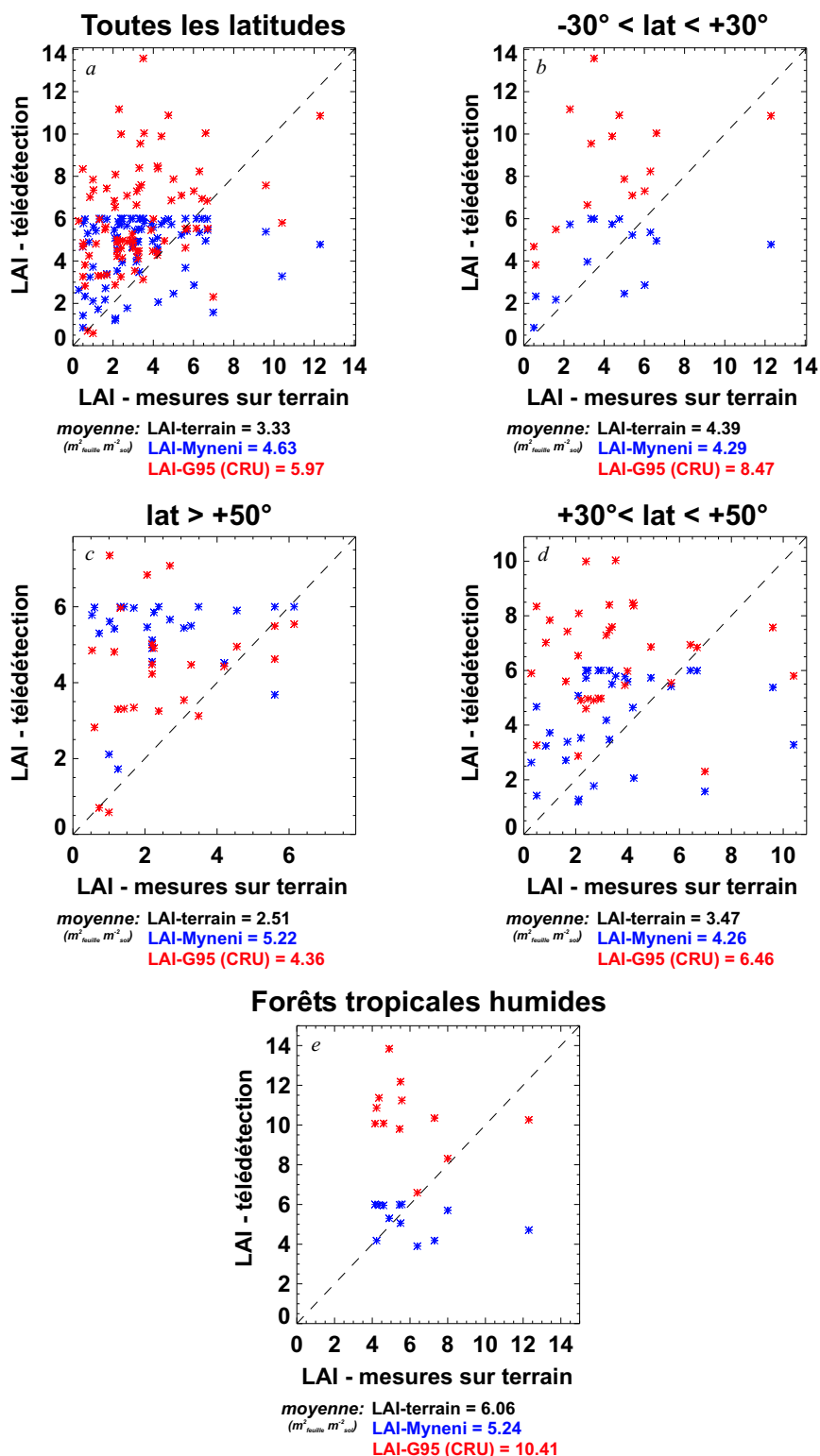


FIG. 5.8: Comparaison de l'indice de surface de feuille mesuré sur le terrain avec les estimations à partir des données par satellite : l'indice de surface de feuille estimé par *Myneni et al.* (1995, 1997) (LAI-Myneni, en bleu) et selon *Guenther et al.* (1995) (LAI-G95 (CRU), en rouge). Les valeurs moyennes sont également indiquées pour les mesures sur le terrain (LAI-terrain, en noir), pour LAI-Myneni (en bleu) et pour LAI-G95 (CRU) (en rouge).

$$\overline{PAR}_{nuageux} = \frac{\overline{PAR} - (1 - \overline{C}) \overline{PAR}_{clair}}{\overline{C}} \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (5.14)$$

L'épaisseur optique des nuages est alors déterminée en confrontant la valeur de $\overline{PAR}_{nuageux}$ avec les valeurs tabulées de la moyenne mensuelle de l'éclairement visible (PAR) calculée pour des épaisseurs optiques comprises entre 0 et 20 (0,1,2,3,...,20)

$$\overline{PAR}_{mod} = \frac{1}{N_1} \frac{1}{N_2} \sum_{i_1=1}^{N_1} \sum_{i_2=1}^{N_2} PAR_{mod}(\theta(i_1, i_2), \tau = 0, 1, 2, 3 \dots, 20) \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (5.15)$$

où

N_1 (= 3) est le nombre de jours considérés dans le mois,

N_2 (= 48) est le nombre de pas de temps par jour considérés pour déterminer la moyenne mensuelle,

$PAR_{mod}(\theta(i_1, i_2), \tau)$ est l'éclairement visible (PAR) modélisé pour un angle zénithal $\theta(i_1, i_2)$ correspondant au pas de temps considéré et pour une épaisseur optique des nuages τ .

Supposant que l'éclairement visible (PAR) varie exponentiellement avec l'épaisseur optique des nuages entre deux valeurs suffisamment proche de τ , celle-ci est alors déterminée par interpolation entre deux valeurs successives de τ .

Connaissant l'épaisseur optique des nuages, supposée constante durant le mois, l'éclairement visible (PAR) et les fractions diffuses du rayonnement actif pour la photosynthèse et du proche infrarouge, traités séparément pour les situations de ciel clair et de ciel nuageux, sont interpolés à partir des valeurs tabulées calculées par le modèle radiatif atmosphérique. L'éclairement visible (PAR) est ensuite corrigé pour tenir compte de la distance Terre-Soleil.

L'éclairement dans le proche infrarouge (NIR) est déterminé à l'aide du rapport observé entre l'éclairement visible (PAR) et l'éclairement solaire global, rapport supposé constant sur le mois. On a :

$$NIR = \left(\frac{1}{R_{ISCCP}} - 1 \right) PAR \quad [\text{W m}^{-2}] \quad (5.16)$$

où R_{ISCCP} est la valeur de ce rapport fournie par la climatologie ISCCP (Cf. Eq.: 5.1).

Selon *Guenther et al.* (1995), les situations de ciel clair et de ciel nuageux ne sont pas traitées séparément. L'éclairement visible (PAR), à chaque pas de temps du modèle, est déterminé à partir des valeurs calculées pour un ciel clair en fonction de l'angle zénithal local, et corrigées par la fraction nuageuse selon une équation similaire à l'équation 5.4. Les fractions diffuses sont déterminées comme :

$$f_{dif} = \overline{C}_{LC} + (1 - \overline{C}_{LC}) f_{dif,clair} \quad (5.17)$$

où

f_{dif} et $f_{dif,clair}$ sont respectivement la fraction diffuse moyenne et la fraction diffuse pour un ciel clair, et

\bar{C}_{LC} est la moyenne mensuelle de la fraction nuageuse, supposée constante durant le mois, donnée par la climatologie de Leemans et Cramer (LC).

5.4.2 Variations diurnes des autres paramètres météorologiques

La température de l'air

Alors que dans le travail de *Guenther et al.* (1995), la variation diurne de la température de l'air est ignorée, la climatologie CRU fournit des moyennes mensuelles de la température minimale de l'air et de l'écart diurne de température, à partir desquelles la variation diurne de la température de l'air peut être déterminée.

Comme illustré à la Figure 5.9, nous avons supposé que la température de l'air suit une progression sinusoïdale pendant le jour et une décroissance exponentielle durant la nuit (*Goudriaan et van Laar*, 1994). Ces formes analytiques ne sont de bonnes approximations qu'en l'absence de nuages (*Matveev*, 1967; *Parton et Logan*, 1981; *De Moor*, 1983; *Hufty*, 2001). En période nuageuse, l'amplitude moyenne observée ($\overline{\Delta T}_{air}$) est faible et le choix de ces paramétrisations n'a que peu d'influence.

Durant le jour, la température de l'air est calculée par (*Goudriaan et van Laar*, 1994) :

$$T_{air} = \bar{T}_{min} + \overline{\Delta T}_{air} \sin \frac{\pi(t_h - 12 + d/2)}{d + 2p} \quad [^{\circ}\text{C}] \quad (5.18)$$

où

T_{air} est la température de l'air pour ($12 - d/2 < t_h < 12 + d/2$),

\bar{T}_{min} est la moyenne mensuelle de la température minimale de l'air [$^{\circ}\text{C}$] donnée par la climatologie CRU,

$\overline{\Delta T}_{air}$ est l'écart mensuel moyen de la température de l'air [$^{\circ}\text{C}$] donné par la climatologie CRU,

d est la longueur du jour [heure],

t_h est le temps [heure], et

p l'intervalle de temps entre le midi solaire vrai et le maximum de température [heure] (par défaut $p = 1.5$ heures).

Pendant la nuit, la température de l'air est déterminée comme (*Goudriaan et van Laar*, 1994) :

$$T_{air} = \frac{\bar{T}_{min} - T_{coucher} \exp\left[\frac{-d_n}{n_c}\right] + (T_{coucher} - \bar{T}_{min}) \exp\left[\frac{-(t_h - t_{coucher})}{n_c}\right]}{1 - \exp\left[\frac{-d_n}{n_c}\right]} \quad [^{\circ}\text{C}] \quad (5.19)$$

où

$T_{coucher}$ est la température de l'air au coucher du soleil [$^{\circ}\text{C}$]. Elle est obtenue en substituant $t_h = t_{coucher} = 12 + d/2$, dans l'équation 5.18.

d_n est la durée de la nuit [heure], $d_n = 24 - d$ et

n_c est appelé le coefficient nocturne [heure] et vaut approximativement 4 heures.

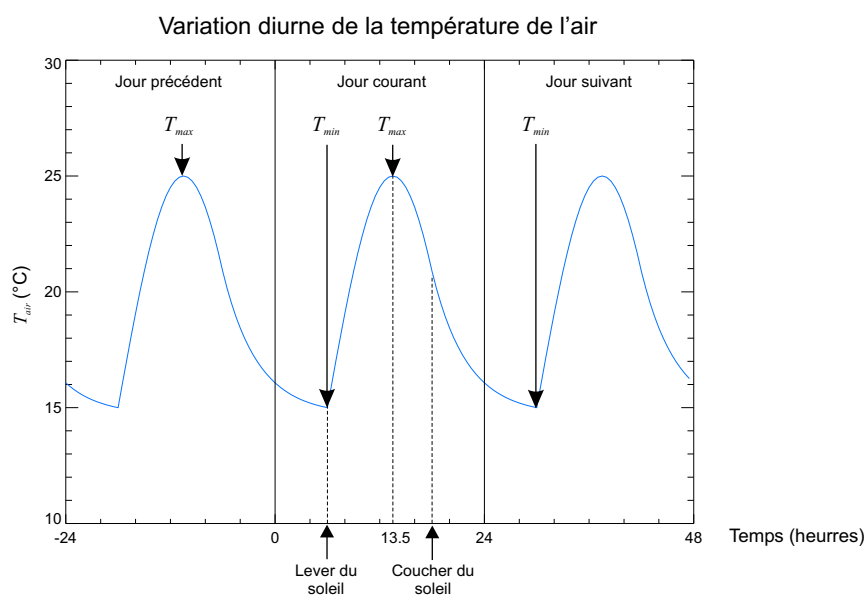


FIG. 5.9: Illustration de la progression diurne de la température de l'air paramétrisée selon *Goudriaan et van Laar* (1994).

L'humidité relative

La climatologie CRU nous fournit les valeurs moyennes mensuelles de la pression de vapeur, que nous supposons constante au cours de la journée. Étant donné que l'humidité relative dépend de la température de l'air, l'humidité relative varie également au cours de la journée et est déterminée par l'équation B.4⁴.

La vitesse du vent

Dans notre étude, la variation diurne du vent est décrite par (*Goudriaan et van Laar*, 1994). La vitesse du vent à la surface de la Terre atteint son maximum approximativement au même moment que la température de l'air (*De Moor*, 1983). La nuit, le vent est relativement stable, et le jour, le vent suit une progression quasi-sinusoïdale. Supposant un facteur deux entre le maximum (atteint le jour) et le minimum (atteint la nuit) de la vitesse du vent, cette dernière, à chaque pas de temps du modèle, est déterminée comme (*Goudriaan et van Laar*, 1994) :

$$u = \frac{2}{3} \bar{u}_{CRU} \left(1 + \frac{\max(0, \cos \theta)}{(\sin \phi_l \sin \delta + \cos \phi_l \cos \delta)} \right) \quad [\text{m s}^{-1}] \quad (5.20)$$

où

u est la vitesse du vent, fonction de l'angle zénithal θ ,

\bar{u}_{CRU} est la valeur moyenne de la vitesse du vent [m s^{-1}] donnée par la climatologie

⁴Cf. Annexe B.

CRU et

ϕ_l et δ sont respectivement la latitude du lieu et la déclinaison [degrés].

Notons cependant qu'aux latitudes moyennes le vent est principalement déterminé par le champ de pression (approximation géostrophique) dont la variation diurne est faible. L'amplitude de la variation diurne du vent décrite par l'équation 5.20 est donc surestimée dans ce cas.

Le facteur de stress hydrique

Le facteur de stress hydrique $f(\psi_f)$ intervenant dans le calcul de la résistance stomatique est déterminé en fonction de la fréquence mensuelle des jours de pluie dont la distribution est fournie par la climatologie CRU : quand le nombre de jours de pluie est suffisant, il n'y a pas de stress hydrique et $f(\psi_f)$ vaut 1, par contre lorsqu'il n'y a pas de pluie, ce stress est très grand et $f(\psi_f)$ tend vers 0. Une simple relation linéaire entre le facteur de stress hydrique et la fréquence mensuelle des jours de pluie ν_{pluie} est donc utilisée :

$$f(\psi_f) = \begin{cases} 1 & \text{si } \nu_{pluie} \geq 15 \text{ jours/mois} \\ 10^{-3} & \text{si } \nu_{pluie} = 0 \text{ jour/mois} \\ \frac{\nu_{pluie}}{15} & \text{si } 0 < \nu_{pluie} < 15 \text{ jours/mois} \end{cases} \quad (5.21)$$

5.4.3 Calcul des émissions de composés organiques volatils biogéniques

Les algorithmes d'émission utilisés sont les mêmes que ceux de *Guenther et al.* (1995). Des tests de sensibilité ont montré que la division de la canopée en 8 couches au lieu de 16 engendre une erreur sur les émissions de BVOC inférieure à 1%. La canopée est donc divisée en 8 couches dans les calculs présentés ici.

Les émissions sont calculées pour un ciel clair et pour un ciel nuageux en chaque point de grille, pour chaque pas de temps considéré, et pour chaque type de végétation présent au point de grille considéré.

Les émissions sont estimées à chaque niveau vertical pour les feuilles au soleil et les feuilles à l'ombre. Ces émissions sont pondérées par les fractions de feuilles au soleil et à l'ombre, et par la densité de feuillage présente dans la couche. L'émission totale par la canopée, pour chaque type de végétation présent au point de la grille considéré, est alors la somme des émissions par les différentes couches. Les émissions sont ensuite pondérées par les fractions occupées par les types de végétation présents au point de grille. Notons qu'une fraction parfois importante des quantités émises sont oxydées dans la canopée. Par exemple, dans le cas des sesquiterpènes dont le temps de vie photochimique n'excède pas quelques minutes (*Fuentes et al.*, 2000), l'émission vers l'atmosphère (au-dessus de la canopée) est négligeable. Finalement, les émissions totales sont obtenues en pondérant les émissions dans les situations de ciel clair et de ciel nuageux par les fractions nuageuses correspondantes.

Les moyennes mensuelles des émissions sont alors obtenues en sommant les émissions calculées sur le mois considéré et en divisant par le nombre de pas de temps dans le mois.

Comme dans le Chapitre 3, nous avons calculé une température effective du feuillage, séparément pour les situations de ciel clair et de ciel nuageux. La température effective totale est la moyenne des températures effectives de ciel clair et de ciel nuageux, pondérée par les émissions mensuelles associées.

Le temps nécessaire pour effectuer un inventaire complet des émissions (12 mois par an, cycle diurne, ...) est d'environ 30 heures sur une machine de type SGI origin 3400, le code n'étant pas parallélisé.

5.5 Inventaires des émissions

5.5.1 Influence du traitement du transfert radiatif sur les émissions

Dans un premier temps, nous allons évaluer l'impact du traitement plus détaillé du transfert radiatif dans MOHYCAN, par rapport au modèle utilisé par *Guenther et al.* (1995). Dans ce but, nous utilisons les mêmes climatologies que dans cet inventaire (la climatologie de Leemans et Cramer (LC) pour la température et la couverture nuageuse, et LAI-G95 (LC) pour l'indice de surface de feuille). Comme dans le travail de *Guenther et al.* (1995), il n'y a pas de distinction entre situations de ciel clair et de ciel nuageux, et les émissions sont calculées en utilisant la température de l'air dans les algorithmes d'émission. Les seules différences sont donc celles liées à la résolution horizontale ($0.5^\circ \times 0.5^\circ$ contre $1^\circ \times 1^\circ$) et au transfert radiatif dans la canopée.

Le transfert radiatif n'intervenant pas dans les émissions de monoterpènes puisque celles-ci ne dépendent que de la température, nous ne nous attarderons qu'aux résultats obtenus pour l'isoprène. Les émissions calculées avec MOHYCAN (Figure 5.10) sont en général inférieures aux émissions de l'inventaire GEIA, principalement aux latitudes moyennes de l'Hémisphère Nord en été et dans les régions tropicales pendant l'année entière. Les différences relatives des émissions d'isoprène par rapport à celles de GEIA sont en général de l'ordre de -20% à -30% (voire -40%) dans les régions principalement composées de forêts. Elles sont imputables au fait que MOHYCAN prédit une atténuation plus forte du rayonnement dans la canopée, particulièrement lorsque le coefficient de cluster⁵ est élevé. Par exemple, ce facteur vaut 0.9 pour les feuillus sempervirents, alors qu'il ne vaut que 0.65 pour les caducifoliés. Lorsque ce facteur est élevé, l'éclairement visible (PAR) est plus atténué et les émissions sont plus faibles. C'est ce qui est observé dans le cas des forêts tropicales humides et des forêts de conifères.

Le Tableau 5.2 compare les estimations par MOHYCAN et par GEIA des flux annuels globaux d'isoprène pour 5 écosystèmes importants de la classification d'Olson (dont l'étendue géographique a été illustrée à la Figure 5.5). A l'échelle globale, les émissions d'isoprène sont d'environ 10.5% plus faibles que dans GEIA.

⁵Cf. Chapitre 2.

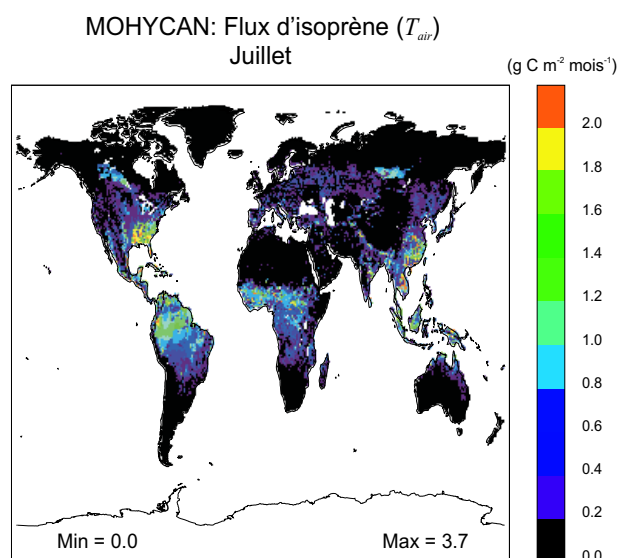


FIG. 5.10: MOHYCAN : Distribution des émissions globales d'isoprène pour le mois de juillet, utilisant les mêmes données d'entrées que celles de *Guenther et al.* (1995).

TAB. 5.2: Estimations des émissions annuelles globales d'isoprène pour certains écosystèmes définis par *Olson* (1992), selon GEIA et selon MOHYCAN.

Code d'Olson	Classification	Estimations annuelles globales (Tg C an ⁻¹)	
		GEIA ^a Isoprène	MOHYCAN Isoprène
21	Conifères boréaux	2.3	1.7
29	Forêts tropicales saisonnières	65.2	55.4
32	Feuillus des régions sèches	60.5	60.4
33	Forêts tropicales humides	84.4	69.0
43	Savane	48.3	45.2
Total global		503	450

^a *Guenther et al.* (1995)

La Figure 5.11 montre la variation saisonnière des émissions d'isoprène pour les conifères boréaux, les feuillus des régions sèches et les forêts tropicales humides. A nouveau, les émissions estimées à l'aide de MOHYCAN sont en général inférieures à celles estimées selon *Guenther et al.* (1995). Cependant, les variations saisonnières sont bien reproduites.

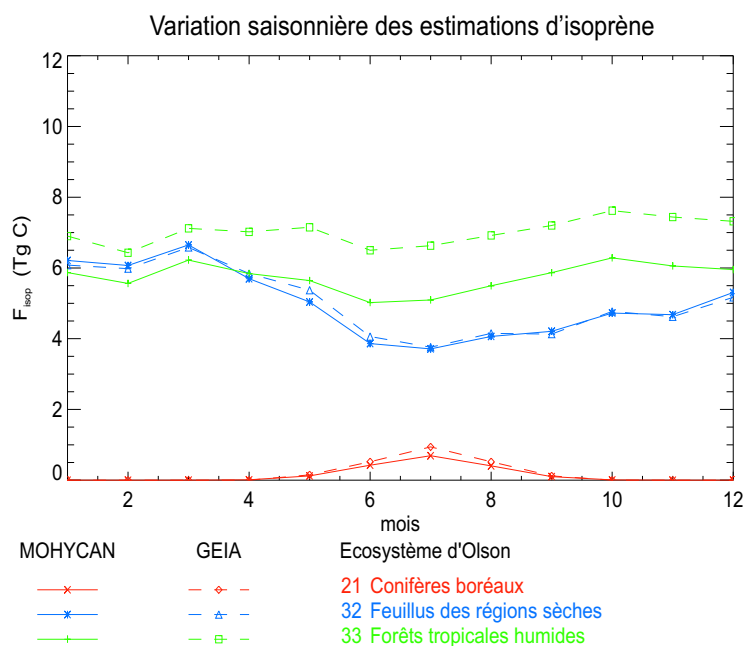


FIG. 5.11: Comparaison des valeurs mensuelles des flux d'isoprène estimés par MOHYCAN (traits pleins) et par *Guenther et al.* (1995) (en tirets), pour les conifères boréaux (en orange), les feuillus des régions sèches (en bleu) et les forêts tropicales humides (en vert).

5.5.2 Inventaire MOHYCAN de référence

Comme la climatologie CRU représente l'ensemble le plus complet de distributions climatologiques des paramètres météorologiques, nous l'avons adopté pour établir notre inventaire MOHYCAN de référence. La distribution adoptée de l'indice de surface de feuille (LAI) est celle fournie par *Myneni et al.* (1995, 1997) (LAI-Myneni). Cette partie du chapitre présente les résultats ainsi obtenus. Nous discuterons ensuite l'influence de l'utilisation d'autres climatologies, ainsi que d'autres tests de sensibilités.

La Figure 5.12 présente, pour le mois de juillet, les distributions des émissions d'isoprène et de monoterpènes utilisant la température de la feuille dans les algorithmes d'émission. Comme nous pouvons le voir à la Figure 5.13, ces distributions présentent d'importantes différences par rapport à celles de l'inventaire GEIA (Cf. Figure 5.1). Les émissions de monoterpènes sont généralement inférieures à celles de GEIA dans les régions tropicales, et supérieures dans les régions boréales. Ces différences sont dues principalement aux différences de l'indice de surface de feuille entre les deux modèles (Cf. Figures 5.7 et 5.8). Le cas des émissions d'isoprène est plus complexe, en raison de leur dépendance au rayonnement actif pour la photosynthèse. Les valeurs beaucoup plus faibles de l'éclairement visible (PAR) sur les forêts tropicales humides dans la climatologie CRU (Cf. Figure 5.4) expliquent ainsi les émissions plus faibles calculées dans ces régions. La prise en compte du cycle diurne de la température de l'air (absent le traitement de *Guenther et al.* (1995)) conduit à une augmentation des émissions

dans la plupart des régions. Les émissions calculées par MOHYCAN dans les régions boréales sont jusqu'à $\geq 100\%$ plus élevées que dans l'inventaire GEIA. Ces différences sont dues d'une part aux valeurs plus élevées de l'indice de surface de feuille dans ces régions, et à l'effet (40-60%) du cycle diurne de la température de l'air. Dans les régions arides, comme les forêts tropicales saisonnières à la saison sèche, le calcul de la température de la feuille dans MOHYCAN conduit à une augmentation considérable des émissions d'isoprène, tandis que les émissions de monoterpènes sont comparativement moins affectées.

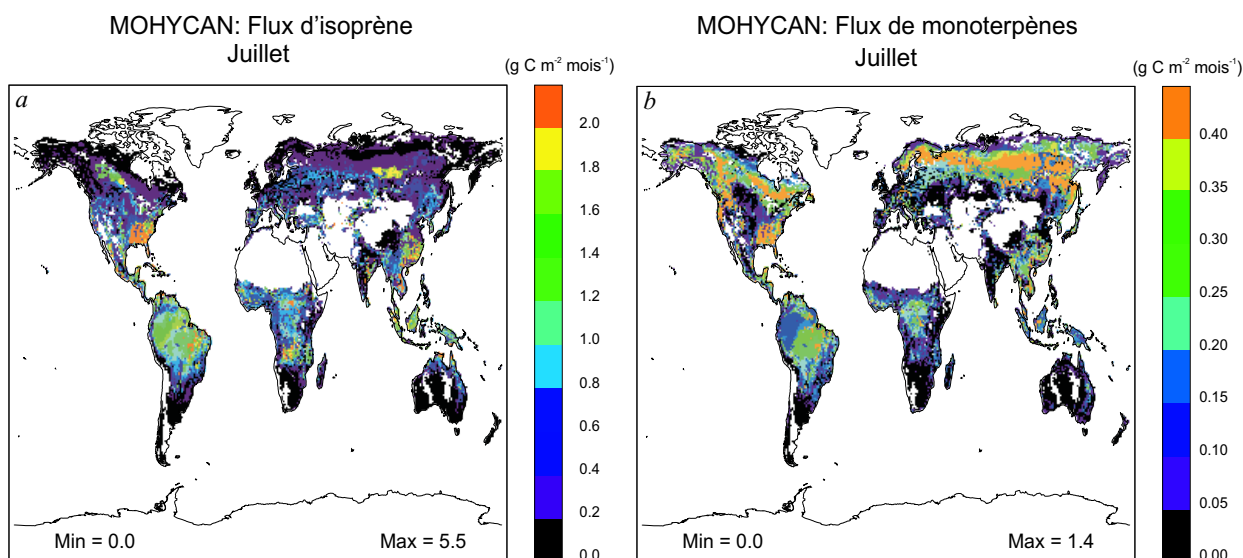


FIG. 5.12: Inventaire MOHYCAN de référence : Distributions des émissions en juillet (a) d'isoprène et (b) des monoterpènes estimées par le modèle MOHYCAN en utilisant la température de la feuille dans les algorithmes d'émission, la climatologie CRU pour les variables météorologiques et la climatologie de *Myneni et al.* (1995, 1997) pour l'indice de surface de feuille (juillet).

La Figure 5.14 montre (a) la différence entre la température effective du feuillage et la température de l'air ($\Delta T_{eff} = T_{eff} - T_{air}$) et (b) la différence relative entre les émissions d'isoprène calculées avec la température de la feuille et celles calculées en utilisant la température de l'air.

On peut voir que les différences en température (ΔT_{eff}) sont comprises entre +2 et +3°C dans les régions arides (Afrique australe et régions méditerranéennes). Ailleurs, cette différence s'échelonne entre 0 et 1°C. L'augmentation des émissions due à l'utilisation de la température de la feuille est comprise entre 16 et 30% dans les régions arides susmentionnées et entre 0 et 6% ailleurs. Ces températures plus élevées sont liées à la faible couverture nuageuse (conduisant à des valeurs élevées de l'éclairement) et aux facteurs de stress hydrique et de déficit en vapeur d'eau importants dans ces régions, conduisant à un écart de température plus important entre la feuille et l'air.

Le Tableau 5.3 donne les émissions annuelles d'isoprène et de monoterpènes, calculées avec la température de la feuille ou la température de l'air dans les algorithmes

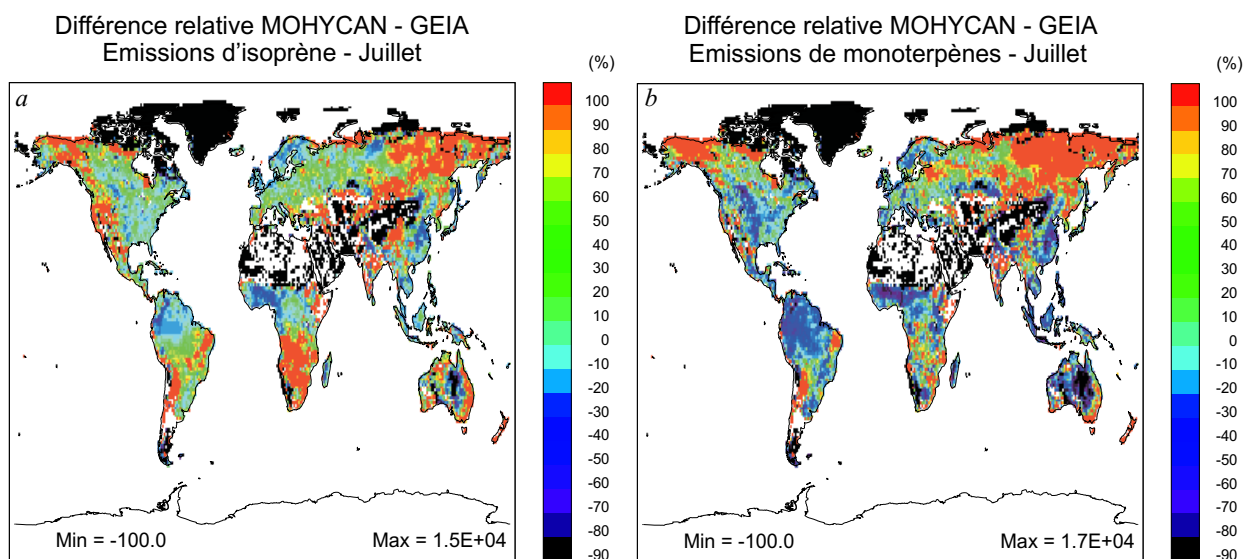


FIG. 5.13: Distribution des différences relatives entre les émissions (*a*) d'isoprène et (*b*) de monoterpènes calculées dans l'inventaire MOHYCAN de référence et dans l'inventaire GEIA, en juillet.

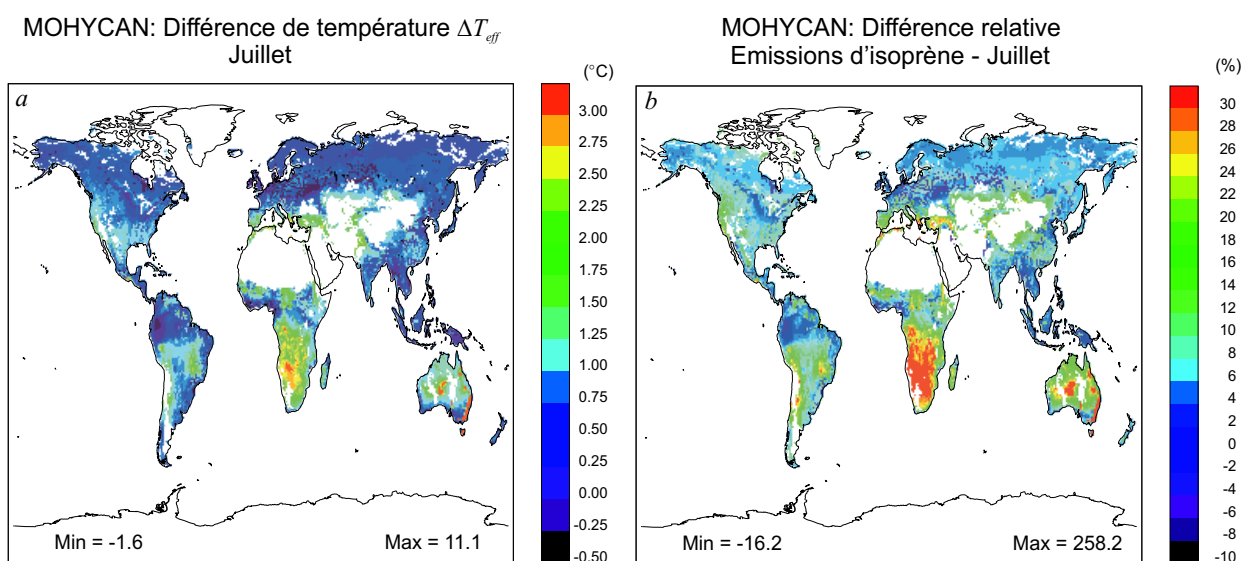


FIG. 5.14: Inventaire MOHYCAN de référence : (*a*) Différence entre la température effective du feuillage et la température de l'air ($\Delta T_{eff} = T_{eff} - T_{air}$) et (*b*) différences relatives entre les émissions d'isoprène calculées avec la température de la feuille dans l'algorithme d'émission et celles calculées en utilisant la température de l'air, pour le mois de juillet.

TAB. 5.3: Estimations des émissions annuelles globales par plusieurs écosystèmes définis par *Olson* (1992) dans notre inventaire MOHYCAN de référence.

Estimations annuelles globales - MOHYCAN					
(Tg C an⁻¹)					
Code d'Olson	Classification	utilisant T_f		utilisant T_{air}	
		Isoprène	Monoterpènes	Isoprène	Monoterpènes
21	Conifères boréaux	3.4	8.1	3.2	8.1
29	Forêts tropicales saisonnnières	70.2	18.2	65.2	18.1
32	Feuillus des régions sèches	109.2	10.0	96.3	9.7
33	Forêts tropicales humides	76.9	7.3	74.6	7.4
43	Savane	61.2	11.8	54.5	11.4
Total global		620	126	561	123

d'émission, pour 5 écosystèmes d'Olson. Considérons d'abord les résultats obtenus lorsque la température de l'air est utilisée dans les algorithmes d'émission. Les émissions annuelles de monoterpènes par les forêts boréales sont plus élevées que dans l'inventaire GEIA (environ +75%) à cause des valeurs nettement plus faibles de l'indice de surface de feuille utilisé par *Guenther et al.* (1995) (LAI-G95) par rapport à celles estimées par *Myneni et al.* (1995, 1997) dans ces bandes de latitude. Les émissions d'isoprène sont également plus élevées que dans GEIA mais cette différence est moins marquée (environ 40% en différence relative) du fait des valeurs plus faibles de l'éclairement du rayonnement actif pour la photosynthèse dans la climatologie CRU. Les émissions de monoterpènes par les forêts tropicales humides et saisonnières sont plus faibles que dans GEIA (-20 à -30% en différence relative) en raison des valeurs plus faibles de l'indice de surface de feuille de *Myneni et al.* (1995, 1997). Pour l'isoprène, les effets combinés de l'indice de surface de feuille et des différences d'éclairement conduisent à des différences relatives quasiment nulles dans le cas des forêts tropicales saisonnières, et de l'ordre de -11.5% dans le cas des forêts tropicales humides. Les émissions de monoterpènes par les feuillus des régions sèches sont plus élevées (+50%) dans l'inventaire MOHYCAN de référence à cause des valeurs plus élevées de l'indice de surface de feuille. Finalement, les émissions par la savane calculées dans notre inventaire sont proches de celles de l'inventaire GEIA (-12% pour les monoterpènes et +12-13% pour l'isoprène).

L'influence sur les émissions de l'emploi de la température de la feuille est comprise entre 0.35 et 3.5% dans le cas des monoterpènes et entre 3 et 13.5% dans le cas de l'isoprène. Les différences les plus marquées se présentent dans les régions les plus sèches (les feuillus des régions sèches et la savane).

En moyenne globale, les émissions annuelles des monoterpènes et des autres composés organiques volatils (ORVOC+OVOC) sont plus faibles que dans GEIA lorsque la température de l'air est utilisée dans le calcul des émissions et valent respectivement 123 et 435 Tg C contre 127 et 520 Tg C dans GEIA. Les émissions annuelles globales d'isoprène dans l'inventaire MOHYCAN de référence s'élèvent à 561 Tg C, contre 503 Tg C dans GEIA. Ces résultats montrent ainsi une diminution des émissions respectivement de 2.8% et 16.4% pour les monoterpènes et pour les autres composés organiques, et une augmentation d'environ 11.5% pour l'isoprène dans l'inventaire MOHYCAN de référence. Lorsque la température de la feuille est utilisée, les émissions d'isoprène et de monoterpènes sont plus élevées, 620 et 126 Tg C respectivement.

5.5.3 Effet de l'utilisation d'une climatologie alternative de l'indice de surface de feuille

Etant données les différences notables constatées entre la distribution de l'indice de surface de feuille (LAI) adoptée dans notre inventaire de référence et celle dérivée à l'aide de l'algorithme de *Guenther et al.* (1995) utilisant la climatologie CRU, nous avons calculé les émissions en utilisant cette climatologie alternative de l'indice de surface de feuille, toutes les autres variables restant égales. La Figure 5.15 montre la distribution des changements sur les émissions résultant de l'utilisation de ces valeurs.

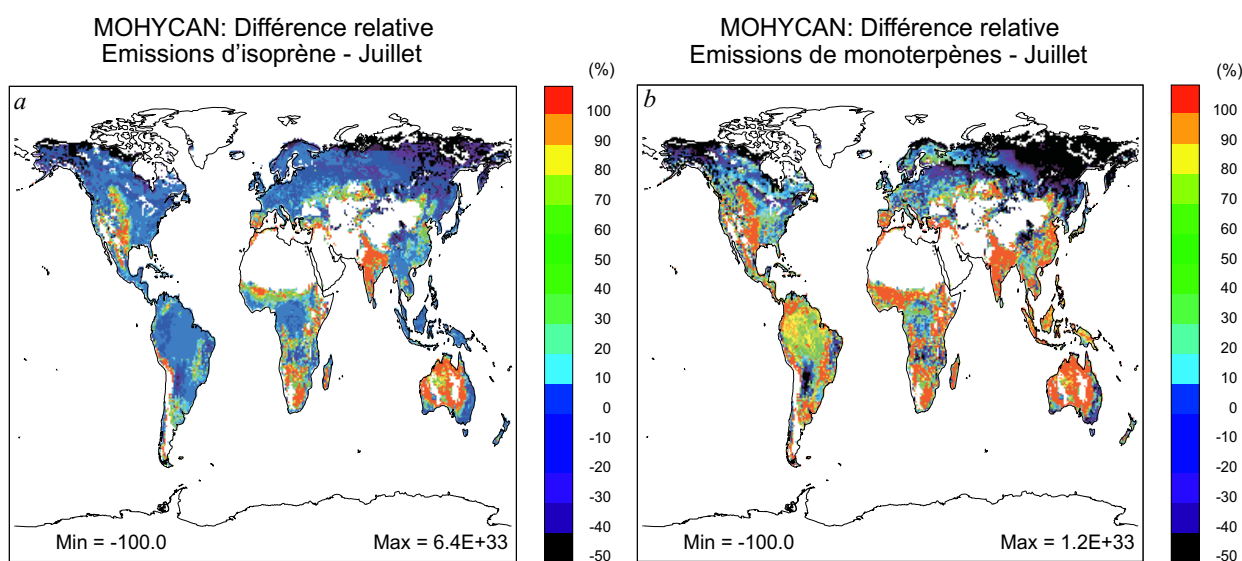


FIG. 5.15: Distribution des différences relatives entre les émissions en juillet (a) d'isoprène et (b) de monoterpènes calculées avec la LAI-G95 (CRU) et celles calculées dans l'inventaire MOHYCAN de référence.

Dans le cas des monoterpènes, les émissions augmentent (+60-100%) sauf dans les régions boréales où elles diminuent ($\leq -20\%$). Les émissions de monoterpènes étant linéairement dépendantes de l'indice de surface de feuille, les différences relatives sur les émissions sont similaires aux différences relatives de l'indice de surface de feuille.

Dans le cas de l'isoprène, les effets sont moins prononcés du fait que l'atténuation du rayonnement dans la canopée augmente avec l'indice de surface de feuille. Dans les principales régions boisées, les effets sur les émissions sont faibles ($< 10\%$) du fait de la saturation des émissions lorsque l'indice de surface de feuille augmente (Cf. Figure 4.5 *a*). Les différences relatives faiblement négatives rencontrées par endroits dans les régions tropicales sont un artefact dû aux erreurs numériques lorsque l'indice de surface de feuille est élevé, en raison de la relation fortement non-linéaire entre l'indice de surface de feuille et le facteur d'activité C_L .

Les émissions annuelles globales montrent une augmentation des émissions d'isoprène d'environ 20%, de monoterpènes d'environ 40%, et des autres composés organiques d'environ 57%.

5.5.4 Effet de l'utilisation de la climatologie ISCCP

Les émissions ont été calculées en remplaçant dans le modèle les distributions de l'éclairement visible (PAR) et de la couverture nuageuse issues de la climatologie CRU par les distributions correspondantes fournies par ISCCP décrites dans la Section 5.2.5.

La Figure 5.16 illustre les changements sur les émissions d'isoprène, en juillet, résultant de l'utilisation de ces valeurs.

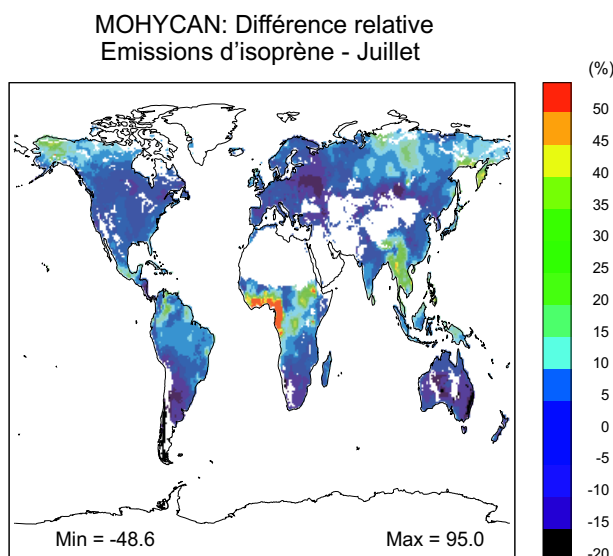


FIG. 5.16: Distribution des différences relatives entre les émissions d'isoprène calculées en utilisant l'éclairement visible (PAR) fourni par la climatologie ISCCP et celles de l'inventaire MOHYCAN de référence (juillet).

Ces changements reflètent les différences d'éclairement (Cf. Figure 5.4). Les émissions d'isoprène sont ainsi plus élevées (+5 à +50%) dans la plupart des régions sous les Tropiques, en particulier sur l'Afrique de l'Ouest (en juillet) et sur l'Afrique Centrale et l'Amazonie (en janvier). Ces régions sont celles où les différences d'éclairement visible

(PAR) fournie par les deux climatologies sont les plus grandes ($> 50\%$). Aux latitudes moyennes des deux Hémisphères, les valeurs souvent plus faibles de l'éclairement visible (PAR) de la climatologie ISCCP (différences relatives, par rapport aux valeurs de la climatologie CRU, comprises entre -5 et -20%) conduisent à des émissions d'isoprène plus faibles dans ces régions (jusqu'à -15%). A l'échelle globale, les émissions d'isoprène sont environ 12% plus élevées lorsque la climatologie ISCCP est utilisée. Dans le cas des monoterpènes, les différences relatives sont très faibles (entre -1 et $+4\%$, et $+0.5\%$ à l'échelle globale) du fait que le rayonnement n'intervient que dans la détermination de la température de la feuille.

5.5.5 Effet du stress hydrique

Rappelons que le facteur de stress hydrique est déterminé dans le modèle en fonction de la fréquence des jours de pluie, fournie par la climatologie CRU, conformément à l'équation 5.21. De manière à quantifier l'impact de cette paramétrisation, nous avons calculé la température de la feuille et les émissions en l'absence de stress hydrique ($f(\psi_f) = 1$).

La Figure 5.17 montre la distribution de la diminution des émissions d'isoprène résultant de l'omission du stress hydrique en juillet. Cette diminution est généralement faible sauf dans les régions arides (situées en juillet dans le sud de l'Afrique et de l'Amérique du Sud, en Europe méditerranéenne et en Australie) où elle atteint jusqu'à -20% . Globalement, les émissions d'isoprène calculées en l'absence de stress hydrique sont environ 2.5% plus faibles que dans l'inventaire MOHYCAN de référence.

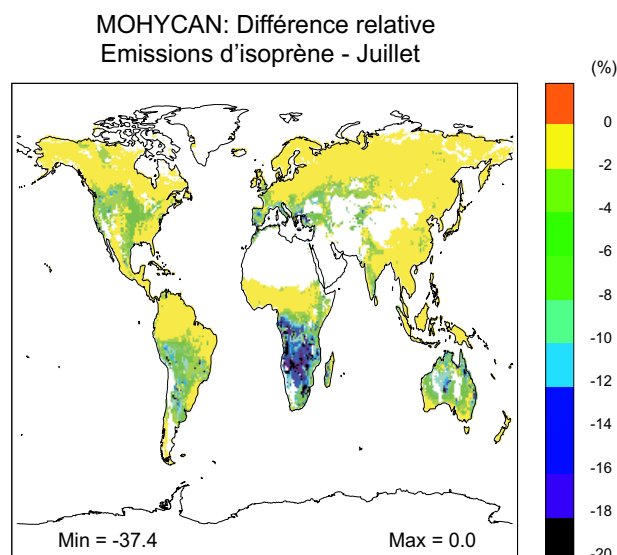


FIG. 5.17: Distribution des différences relatives entre les émissions d'isoprène calculées en l'absence de stress hydrique et celles de l'inventaire MOHYCAN de référence (juillet).

Comme discuté dans le Chapitre 4, l'influence du stress hydrique est la plus marquée dans les régions sèches. Lorsque le stress hydrique est important, la résistance stoma-

tique augmente, augmentant ainsi l'écart de température entre la feuille et l'air. La Figure 5.18 montre la distribution de la différence entre la température effective du feuillage et celle de l'air ($\Delta T_{eff} = T_{eff} - T_{air}$) en l'absence de stress hydrique pour le mois de juillet. La comparaison de cette figure avec la Figure 5.14 *a* permet d'apprécier l'importance du stress hydrique dans les régions sèches, en particulier en Afrique australe, où la température du feuillage est entre 1° et 3°C plus élevée lorsque le stress hydrique est pris en compte.

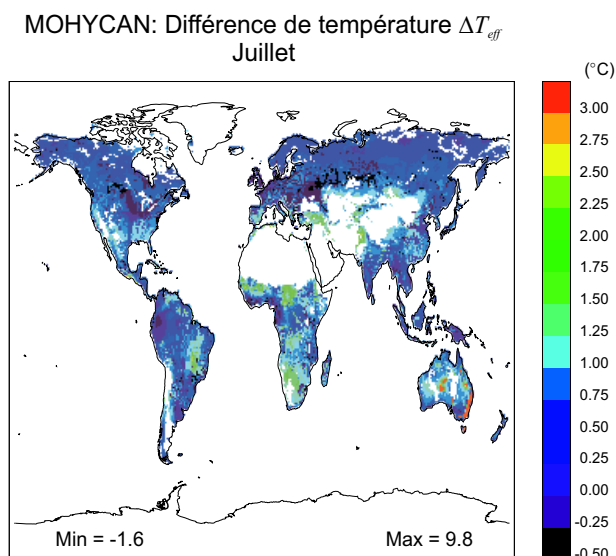


FIG. 5.18: Distribution de la différence entre la température effective du feuillage et la température de l'air en absence de stress hydrique, pour le mois de juillet.

5.5.6 Effet de la résolution verticale du modèle

Dans les calculs présentés dans ce chapitre, la canopée a été divisée en 8 couches. Afin d'évaluer l'impact de la résolution verticale du modèle, nous avons calculé les émissions en adoptant un nombre de couches égal à 2 ou 4.

Ces calculs montrent que les émissions d'isoprène diminuent généralement lorsque le nombre de couches est réduit, indiquant que le rayonnement est d'avantage atténué dans ce cas. Les différences relatives entre les émissions d'isoprène calculées avec 4 couches et celles calculées avec 8 couches sont inférieures à -4%. La Figure 5.19 illustre l'impact sur les émissions d'isoprène, en juillet, d'une division de la canopée en 2 couches, au lieu de 8. Les différences relatives les plus notables (-18-20%) se produisent dans les forêts tropicales humides. Dans les autres régions où l'indice de surface de feuille est élevé (aux hautes latitudes de l'Hémisphère Nord), elles sont comprises entre -4 et -12%. La diminution des émissions annuelles globales vaut environ -1.4% et -6.5% lorsque la canopée est divisée respectivement en 4 et 2 couches. On constate donc que l'erreur sur les émissions due à la division de la canopée en un nombre fini (n) de couches diminue approximativement comme $1/n^2$, d'où l'on déduit que l'erreur

commise lorsque $n=8$ est de l'ordre de 0.3% pour les émissions globales d'isoprène. Les émissions de monoterpènes sont pratiquement insensibles au nombre de couches puisqu'elles ne changent que d'environ -0.08 et -0.25% à l'échelle globale lorsque la canopée est divisée en 4 et 2 couches, respectivement.

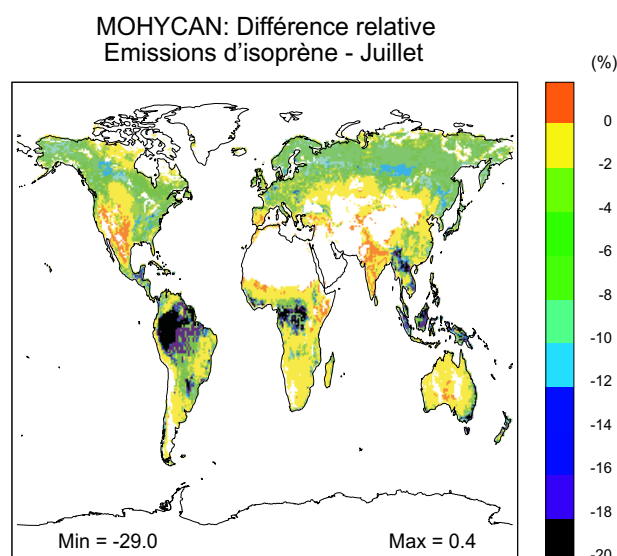


FIG. 5.19: Distribution de la différence relative entre les émissions d'isoprène calculées en divisant la canopée en 2 couches et celles calculées dans l'inventaire MOHYCAN de référence (8 couches) (juillet).

5.5.7 Sensibilité des émissions à la température de l'air

De façon à quantifier la sensibilité des émissions à la température de l'air, nous avons calculé l'impact sur les émissions d'une augmentation uniforme de 2°C de la température de l'air (Figure 5.20). Les émissions augmentent de 20 à 30% sur la plupart des régions continentales. L'augmentation est de l'ordre de 10-15% dans les régions plus chaudes.

Le Tableau 5.4 résume l'impact de l'augmentation de la température sur les émissions annuelles. L'augmentation des émissions globales d'isoprène est d'environ 23% lorsque la température de la feuille est utilisée dans le calcul des émissions. Elle est très similaire (~25%) lorsque c'est la température de l'air qui est utilisée. Dans le cas des monoterpènes, les émissions augmentent dans tous les cas d'environ 20%. Notons finalement que les écarts de température entre le feuillage et l'air sont très similaires à ceux de l'inventaire MOHYCAN de référence.

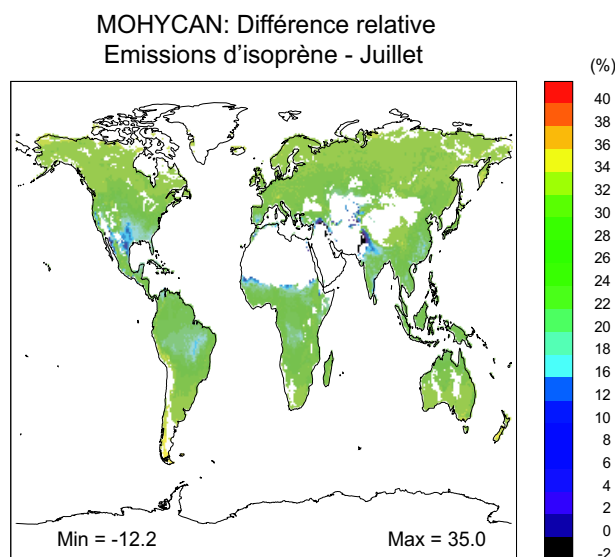


FIG. 5.20: Distribution de l'augmentation des émissions d'isoprène résultant d'une augmentation de la température de l'air de 2°C (juillet).

TAB. 5.4: Augmentation calculée des émissions annuelles de composés organiques volatils biogéniques en réponse à une augmentation de la température de l'air de 2°C, pour cinq écosystèmes importants.

Estimations annuelles globales - MOHYCAN						
(changement en %)						
Code	d'Olson	Classification	utilisant T_f		utilisant T_{air}	
			Isoprène	Monoterpènes	Isoprène	Monoterpènes
21		Conifères boréaux	30.9	19.8	30.8	19.7
29		Forêts tropicales saisonnnières	23.4	19.8	24.6	19.7
32		Feuillus des régions sèches	22.8	20.0	24.5	19.8
33		Forêts tropicales humides	23.9	19.6	24.6	19.7
43		Savane	20.6	19.7	23.4	19.8
Total global			23.2	19.8	24.8	19.8

5.6 Conclusions

En conclusion, nous avons présenté et comparé différentes climatologies de variables importantes dans le calcul des émissions, et nous avons pu voir comment leurs différences se répercutent dans les estimations des émissions de composés organiques volatils à l'échelle globale.

Par exemple, nous avons vu que les grandes différences entre les distributions de l'indice de surface de feuille utilisées se traduisent par d'importantes différences sur les émissions calculées. Ni l'une ni l'autre n'est cependant en accord satisfaisant avec les mesures sur le terrain.

Les différences entre les deux distributions du rayonnement actif pour la photosynthèse (selon CRU et ISCCP) que nous avons utilisé conduisent également à des différences significatives sur les émissions d'isoprène.

D'autre part, nous avons évalué l'impact des raffinements de notre modèle par rapport à celui utilisé par *Guenther et al.* (1995) pour établir l'inventaire GEIA. Par exemple, la représentation plus détaillée du transfert radiatif produit une diminution des émissions d'isoprène pouvant atteindre 25% dans certaines régions, tandis que le calcul la température de la feuille induit une augmentation de ces émissions qui peut excéder 30% dans les régions sèches. Le facteur de stress hydrique joue un rôle important dans ces régions.

Nous avons quantifié l'impact de la résolution verticale du modèle sur les émissions. L'erreur commise sur les émissions diminue approximativement comme $1/n^2$, où n est le nombre de couches.

CHAPITRE 6

Impact des émissions biogéniques de composés organiques volatils sur la composition de la troposphère

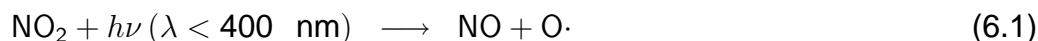
La dernière étape de ce travail est l'évaluation de l'influence des émissions de composés organiques volatils dans l'atmosphère. Dans un premier temps, nous décrivons les processus chimiques intervenant dans l'oxydation des hydrocarbures dans la troposphère. Ensuite, nous décrivons succinctement le modèle IMAGES, modèle de chimie et de transport à l'échelle globale, que nous avons utilisé pour étudier l'impact des émissions de composés biogéniques sur la composition chimique de la troposphère. Finalement, nous comparerons les résultats obtenus par ce modèle avec et sans émissions de composés organiques biogéniques.

6.1 Mécanismes réactionnels

Les réactions atmosphériques d'un hydrocarbure débutent habituellement par son attaque par un oxydant efficace tel que le radical hydroxyle ($\text{OH}\cdot$), l'ozone (O_3) ou le radical nitrate ($\text{NO}_3\cdot$) (*Brasseur et al.*, 1999). La réaction avec le radical $\text{OH}\cdot$ est généralement la plus rapide durant le jour et contrôle le temps de vie de la plupart des espèces organiques. Par exemple, à une concentration de $\text{OH}\cdot$ de 10^6 molécule cm^{-3} typique de la basse atmosphère, les temps de vie de l'isoprène et des pinènes sont de quelques heures seulement. La nuit, lorsque le radical $\text{OH}\cdot$ n'est pas produit, seuls le radical $\text{NO}_3\cdot$ et l'ozone initient l'oxydation des composés organiques biogéniques. Alors que ces réactions sont presque négligeables pour l'isoprène, elles sont importantes (voire parfois dominantes) pour les terpènes.

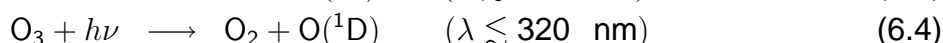
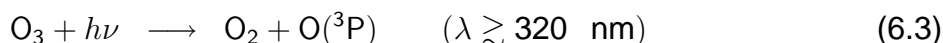
Avant de présenter les mécanismes réactionnels des hydrocarbures, nous décrivons brièvement les sources et les pertes principales de l'ozone troposphérique et du radical hydroxyle.

Ozone troposphérique La seule production directe importante de l'ozone dans l'atmosphère résulte de la réaction de recombinaison d'un atome d'oxygène O· avec l'oxygène moléculaire O₂, en présence d'un troisième corps qui stabilise les produits de la réaction. Dans la troposphère, l'atome d'oxygène nécessaire à cette production d'ozone est produit à partir de la photodissociation du dioxyde d'azote NO₂, aux longueurs d'onde inférieures à 400 nm (*Crutzen, 1970, 1979*) :



Une autre source importante d'ozone dans la troposphère est l'intrusion d'ozone stratosphérique.

Dans la troposphère, l'ozone absorbe le rayonnement solaire dans le domaine des longueurs d'onde visibles, entre 410 et 850 nm, et ultra-violettes, entre 290 et 350 nm. Cette absorption conduit à la photodissociation de l'ozone qui produit de l'oxygène atomique dans l'état fondamental O(³P) ou excité O(¹D) (*Chapman, 1930*) :



La photodissociation (6.3) n'a pas d'effet majeur sur l'ozone, car celui-ci est immédiatement reformé par recombinaison de O(³P) avec O₂ :



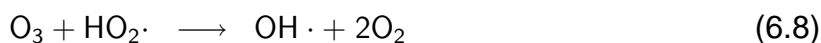
L'atome O(¹D) produit par (6.4) entre le plus souvent en collision avec N₂ ou O₂, lui enlevant l'excès d'énergie et le remettant dans son état fondamental (*Seinfeld et Pandis, 1998; Brasseur et al., 1999*) :



Cette réaction est suivie de la recombinaison de l'ozone par la réaction 6.2 conduisant ainsi à un cycle nul (réactions 6.4, 6.6 et 6.2). En revanche, lorsque l'atome O(¹D) réagit avec la vapeur d'eau, pour former deux radicaux hydroxyles OH· (Cf. réaction 6.7) (*Levy II, 1971, 1974*), la molécule d'ozone détruite en (6.4) n'est pas reformée.



Les réactions directes de l'ozone avec les radicaux hydroperoxyde HO₂· et hydroxyle OH· constituent une autre perte importante d'ozone :



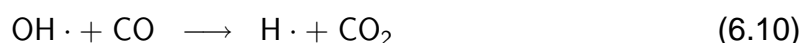
Comme nous le verrons dans la suite, la production ou la perte nette d'ozone dépend de la teneur en oxydes d'azote NO_x de l'atmosphère : pour de faibles teneurs en NO_x , inférieures à environ 10-20 pptv, les chaînes d'oxydation du monoxyde de carbone (CO) et des hydrocarbures (méthane compris) conduisent à une destruction de l'ozone, principalement par la réaction (6.8). Par contre, lorsque ces teneurs en NO_x sont supérieures à 30 pptv, la production d'ozone (par le biais des réactions 6.1 et 6.2) excède la perte d'ozone.

Famille HO_x La famille chimique HO_x est composée du radical hydroxyle $\text{OH}\cdot$, du radical hydroperoxyde $\text{HO}_2\cdot$ et du peroxyde d'hydrogène H_2O_2 .

La source primaire principale de HO_x provient de la photolyse de l'ozone. Une production secondaire significative est la photolyse des aldéhydes. Les pertes sont principalement liées à la production d'acide nitrique, à la déposition de peroxyde d'hydrogène H_2O_2 et à sa réaction avec $\text{OH}\cdot$. Les réactions rapides de conversion des radicaux hydroxyles $\text{OH}\cdot$ en radicaux hydroperoxydes $\text{HO}_2\cdot$, et inversement, conservent la famille des HO_x .

L'atome $\text{O}(^1\text{D})$, produit par la réaction 6.4, réagit avec la vapeur d'eau pour former deux radicaux hydroxyles ($\text{OH}\cdot$) (réaction 6.7). Comme le rapport de mélange de la vapeur d'eau dans la basse atmosphère atteint souvent environ 10^4 ppmv (1%), et comme la réaction 6.7 procède avec une vitesse dix fois plus élevée que la réaction 6.6 avec N_2 ou O_2 , environ 10% de $\text{O}(^1\text{D})$ réagit avec H_2O pour générer du $\text{OH}\cdot$. Comme deux radicaux hydroxyles sont formés par la réaction 6.7, ceci conduit à un taux d'environ 0.2 molécules de $\text{OH}\cdot$ par molécule d'ozone photolysée (*Seinfeld et Pandis, 1998*).

Les radicaux hydroxyles $\text{OH}\cdot$ réagissent avec CO (et dans une moindre mesure avec l'ozone, réaction 6.9) :



Dans un milieu riche en oxyde d'azote, la réaction atmosphérique la plus importante du radical hydroperoxyde $\text{HO}_2\cdot$ est celle avec NO :



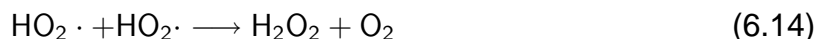
Le dioxyde d'azote NO_2 ainsi formé est photolysé, conduisant à une production nette d'ozone (bilan net des réactions 6.10, 6.11, 6.12, 6.1 et 6.2). La famille HO_x est conservée dans ce cycle. Le radical hydroxyle réagit aussi avec le dioxyde d'azote :



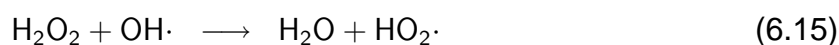
Le dépôt à la surface est la principale perte de l'acide nitrique HNO_3 dans la troposphère. Nous verrons dans la suite que lors de l'oxydation des composés organiques volatils dans un milieu pauvre en oxydes d'azote, il y a perte nette de HO_x . Dans un milieu riche

en oxyde d'azote, le radical hydroxyle $\text{OH}\cdot$ est converti en radical hydroperoxyde $\text{HO}_2\cdot$ et il y a production nette d'ozone (réactions 6.17, 6.19, 6.1 et 6.2).

Dans un milieu pauvre en oxyde d'azote NO_x , on observe aussi une recombinaison partielle des radicaux $\text{HO}_2\cdot$:



Le peroxyde d'hydrogène est l'oxydant dominant dans les nuages, le brouillard ou la pluie dans l'atmosphère (*Seinfeld et Pandis*, 1998). Les principales voies de destruction en phase gazeuse du peroxyde d'hydrogène sont sa réaction avec le radical hydroxyle et sa photolyse :



Notons encore que le peroxyde d'hydrogène H_2O_2 est éliminé aussi par dépôt humide par les précipitations et par dépôt sec.

Les mécanismes d'oxydation des composés organiques volatils sont décrits ci-dessous dans le cas général. Les importances relatives de différentes voies de propagation de l'oxydation varient d'un composé à l'autre. Le mécanisme d'oxydation des composés organiques volatils peut généralement se décomposer en quatre étapes, la complexité du mécanisme complet augmentant très rapidement avec la taille du composé de départ (*Mégie et al.*, 1993; *Seinfeld et Pandis*, 1998; *Brasseur et al.*, 1999). L'isoprène et les terpènes, faisant parties de la famille des alcènes, possèdent une (voire plusieurs) liaison double $\text{C} = \text{C}$.

6.1.1 1^{re} étape : réaction d'oxydation du composé organique volatil

De manière générale, des radicaux organiques alkyles ($\text{R}\cdot$) sont formés lors de l'oxydation des composés organiques par $\text{OH}\cdot$, O_3 et $\text{NO}_3\cdot$.



Quelques constantes de réaction à 298 K sont données au Tableau 6.1 pour l'isoprène, α - et β -pinène.

6.1.2 2^e étape : réaction des radicaux alkyles $\text{R}\cdot$

Le radical alkyle ainsi formé réagit très rapidement avec une molécule d'oxygène pour former un radical peroxyde $\text{RO}_2\cdot$:



TAB. 6.1: Constantes des réactions de quelques hydrocarbures biogéniques importants avec le radical hydroxyle (OH·), l'ozone (O₃) et le radical nitrate (NO₃·), d'après *Atkinson et al.* (1997); *Atkinson* (1997); *DeMore et al.* (1997); *Brasseur et al.* (1999).

<i>Molécules</i>	<i>Constantes de réaction</i> <i>(cm³ molécule⁻¹ s⁻¹)</i>		
	$10^{12}k_{\text{OH}\cdot}$	$10^{18}k_{\text{O}_3}$	$10^{16}k_{\text{NO}_3\cdot}$
isoprène	100	12.8	6800
α -pinène	54	87	62000
β -pinène	79	15	25000

6.1.3 3^e étape : réactions des radicaux peroxyes RO₂·

Le temps de vie des radicaux peroxyes est très court (de quelques secondes à quelques minutes). Parmi ces radicaux peroxyes, distinguons les radicaux alkylperoxyes (RO₂·) des radicaux acylperoxyes (RC(O)O₂·) possédant une double liaison C = O. Ces radicaux sont notamment formés par la séquence de réactions 6.17-6.18 lorsque le composé organique initial est un aldéhyde.

D'une manière générale, les radicaux peroxyes réagissent avec les oxydes d'azote (NO, NO₂), avec d'autres radicaux peroxyes (organiques RO₂· ou inorganiques HO₂·) et dans une moindre mesure avec NO₃·. Les deux premières classes de réactions représentent une bifurcation importante dans la voie d'oxydation des hydrocarbures, qui dépend de la concentration ambiante des oxydes d'azote. Dans la suite, il importe donc de distinguer les régions polluées de celles qui sont éloignées des sources de pollution.

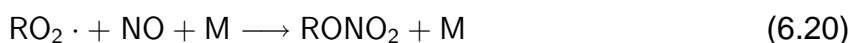
Réactions avec NO

Dans une atmosphère polluée où les concentrations de NO_x sont suffisamment élevées (30 pptv ou plus), le puits du radical peroxye est dominée par la réaction avec NO :



formant alors le radical alkoxye RO· et le dioxyde d'azote NO₂. Dans ces conditions, il existera une production d'ozone, résultant de la réaction 6.2.

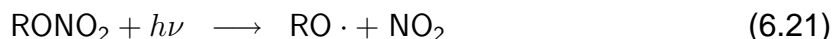
D'autre part, les radicaux alkylperoxyes (RO₂·) réagissent avec NO pour former des nitrates organiques (RONO₂) relativement inertes :



Ce canal est en général minoritaire. La fraction de radicaux peroxyes réagissant avec NO par l'équation 6.20 ($\frac{k_{20}}{k_{19}+k_{20}}$ où k_{19} et k_{20} sont les constantes des réactions 6.19 et

6.20) dépend de la structure de R. Elle est particulièrement élevée dans l'oxydation des terpènes (*Capouet et al.*, 2004).

Les nitrates d'alkyle RONO_2 ainsi formés peuvent réagir avec le radical hydroxyle $\text{OH}\cdot$ ou photodissocier :



Lorsque la photodissociation de RONO_2 (réaction 6.21) est dominante, les nitrates organiques jouent le rôle d'un réservoir d'oxydes d'azote, puisque cette photolyse restitue le dioxyde d'azote. La réaction avec $\text{OH}\cdot$ (réaction 6.22) induit une séquence de réactions qui en général ne restitue pas l'oxyde d'azote NO consommé dans la réaction 6.20. Celle-ci représente alors un puits net d'oxydes d'azote (*Chen et al.*, 1998).

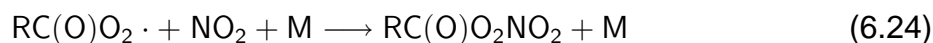
Réactions avec NO_2

Les radicaux alkylperoxy $\text{RO}_2\cdot$ La réaction des radicaux $\text{RO}_2\cdot$ avec NO_2 forment des peroxydes nitrates :



Ces nitrates étant thermiquement instables, leurs concentrations sont faibles à température ambiante. Le temps de vie est de l'ordre de 0.1-1s à 298 K et pression ambiante (*Atkinson et al.*, 2003; *Capouet et al.*, 2004). Ces réactions peuvent donc être négligées dans la basse atmosphère.

Les radicaux acylperoxy $\text{RC(O)O}_2\cdot$ Les radicaux acylperoxy $\text{RC(O)O}_2\cdot$ réagissent avec NO_2 pour former des espèces plus stables connues sous le nom de peroxyacyles nitrates :

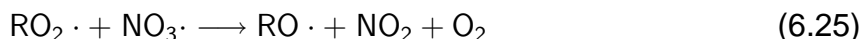


Dans le cas particulier le plus important où le radical $\text{R}\cdot$ est le groupement CH_3 , la molécule ainsi formée, $\text{CH}_3\text{C(O)O}_2\text{NO}_2$, est le peroxyacétyle nitrate (PAN).

Sa réaction avec le radical $\text{OH}\cdot$, sa photodissociation et sa solubilité dans l'eau étant très faibles, son principal mécanisme de perte est la décomposition thermique, par réaction inverse de la réaction 6.24. Cette décomposition thermique n'a lieu qu'à haute température, si bien qu'aux températures de la haute troposphère (-55°C), le PAN est relativement stable et peut être transporté sur de grandes distances (par exemple sur les océans) (*Seinfeld et Pandis*, 1998; *Brasseur et al.*, 1999; *Capouet et al.*, 2004). A titre indicatif, le temps de vie du peroxyacétyle nitrate, dépendant fortement de la température, vaut environ 30 minutes à 298 K et environ 8 heures à 273 K (*Seinfeld et Pandis*, 1998).

Réactions avec $\text{NO}_3\cdot$

La nuit, lorsque la concentration de $\text{NO}_3\cdot$ est élevée, les radicaux peroxydes peuvent réagir avec $\text{NO}_3\cdot$ pour former un radical alkoxyde $\text{RO}\cdot$ et du dioxyde d'azote :



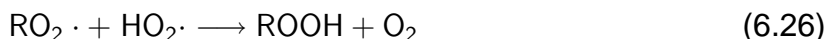
Cette réaction est généralement mineure.

Réactions avec $\text{HO}_2\cdot$ ou avec un autre radical peroxyde $\text{RO}_2\cdot$

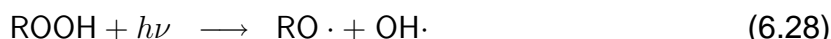
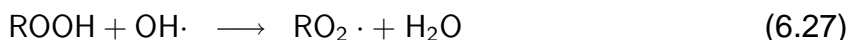
Dans une atmosphère non polluée, la réaction avec le radical hydroperoxyde ($\text{HO}_2\cdot$) ou avec un autre radical peroxyde ($\text{RO}_2\cdot$) devient dominante.

Réactions avec $\text{HO}_2\cdot$

Les radicaux alkylperoxydes $\text{RO}_2\cdot$ La réaction de la plupart des radicaux alkylperoxydes avec $\text{HO}_2\cdot$ procède exclusivement via la formation d'un hydroperoxyde ROOH (*Atkinson et al.*, 2003) :



L'hydroperoxyde peut réagir avec le radical hydroxyle ou photodissocier :

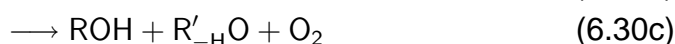
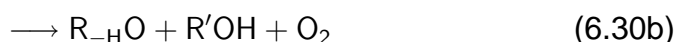
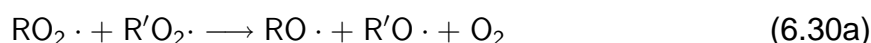


ROOH , qui est soluble dans l'eau, est aussi lessivé par les précipitations.

Les radicaux acylperoxydes $\text{RC(O)O}_2\cdot$ Dans le cas des radicaux acylperoxydes, leur réaction avec $\text{HO}_2\cdot$ conduit à la formation d'acides organiques :



Réactions avec les autres radicaux peroxydes $\text{R}'\text{O}_2\cdot$ Ces réactions dites de permutation génèrent plusieurs produits : des radicaux alkoxydes et des produits non radicalaires incluant les cétones, les alcools et les acides organiques (*Brasseur et al.*, 1999) :



où $RO\cdot$ et $R'O\cdot$ sont des radicaux alkoxy, $R-HO$ et $R'-H$ sont des carbonyles, ROH et $R'OH$ sont des alcools.

Les réactions 6.30b et 6.30c constituent des puits effectifs de radicaux, au contraire de la réaction 6.30a. Sous certaines conditions (faible concentration de NO_x et concentration élevée d'hydrocarbures), ces réactions ont un effet significatif sur les concentrations totales de radicaux et donc sur la capacité oxydante de l'atmosphère (Mégie *et al.*, 1993; Brasseur *et al.*, 1999; Capouet *et al.*, 2004).

6.1.4 4^e étape : réactions des radicaux alkoxy $RO\cdot$

Le radical alkoxy, formé lors des réactions 6.19, 6.21, 6.25, 6.28 et 6.30a, réagit avec l'oxygène moléculaire pour former un composé carbonylé (aldéhyde ou cétone) et le radical $HO_2\cdot$. Le radical $RO\cdot$ peut également se décomposer ou isomériser pour former un nouveau radical $R\cdot$ qui, après réaction avec l'oxygène moléculaire (réaction 6.18), produit finalement un nouveau radical peroxyde de type $RO_2\cdot$.

Nous avons vu ci-dessus que l'oxydation des VOC conduit à des espèces partiellement oxydées, appelées hydrocarbures oxygénés, incluant des aldéhydes, des cétones, des alcools, des acides organiques, etc. Dans le cas de l'isoprène, les produits les plus importants sont le MVK (methyl vinyl ketone) et le MACR (methacrolein). Ces hydrocarbures oxygénés vont être oxydés (réaction 6.17), principalement par réaction avec le radical hydroxyle $OH\cdot$, et une nouvelle chaîne d'oxydation commence (Mégie *et al.*, 1993; Seinfeld *et Pandis*, 1998; Brasseur *et al.*, 1999).

La Figure 6.1 schématise l'oxydation des VOC dans la troposphère, décrite ci-dessus.

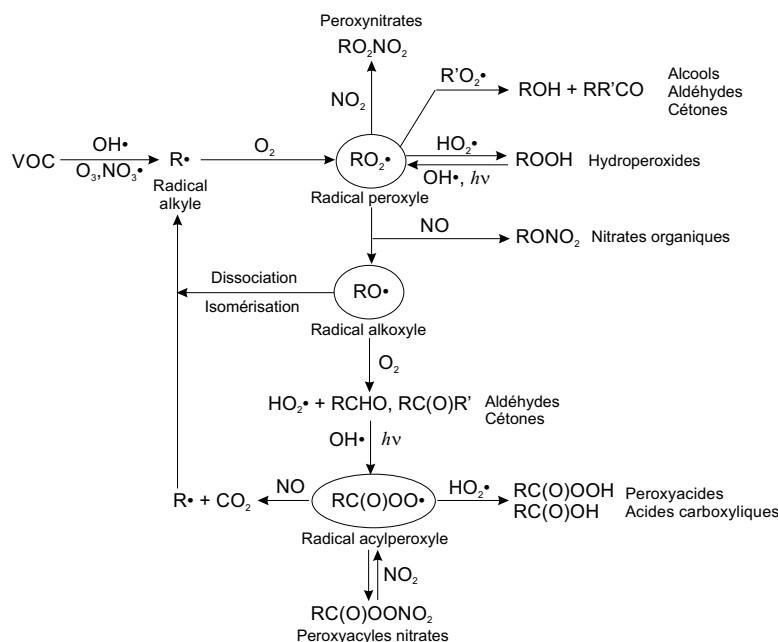


FIG. 6.1: Schéma général de l'oxydation d'une molécule organique, d'après Seinfeld *et Pandis* (1998).

6.2 Le modèle IMAGES

Les principales caractéristiques du modèle IMAGES sont décrites par *Müller et Brasseur* (1995). Ce modèle tridimensionnel de chimie et de transport calcule la distribution d'environ 60 espèces incluant O_3 , HO_x , NO_x , les oxydes de soufre, le méthane et les hydrocarbures non-méthaniques (éthane, éthylène, propylène, isoprène α -pinène, n-butane représentant les hydrocarbures plus élevés, propane et acétone) et leurs produits de dégradations. La résolution horizontale est de 5° en latitude et en longitude. Selon la verticale, le modèle compte 25 niveaux σ depuis la surface terrestre jusqu'à la basse stratosphère (50 hPa ou approximativement 20 km d'altitude). La coordonnée σ est définie comme :

$$\sigma = \frac{p - p_t}{p_s - p_t} \quad (6.31)$$

où p est la pression au niveau considéré, p_s est la pression à la surface et $p_t = 50$ hPa. Les niveaux verticaux du modèle tiennent donc compte implicitement de l'orographie. Bien que le transport ne soit pas considéré dans le calcul des espèces les plus réactives telles que $O(1D)$, $OH\cdot$ et $HO_2\cdot$, le comportement des gaz en trace est généralement décrit par l'équation de continuité :

$$\frac{\partial \mu}{\partial t} = \left(\frac{\partial \mu}{\partial t} \right)_{advection} + \left(\frac{\partial \mu}{\partial t} \right)_{diffusion} + \left(\frac{\partial \mu}{\partial t} \right)_{convection} + \left(\frac{\partial \mu}{\partial t} \right)_{chimie} \quad (6.32)$$

où μ représente le rapport de mélange en volume et t est le temps. Le membre de droite de cette équation inclut (1) la contribution du transport par la circulation à grande échelle, (2) la contribution des mouvements non résolus représentés par le terme de diffusion, (3) la contribution de la convection profonde dans les systèmes nuageux et (4) la tendance due à la chimie. Le transport à grande échelle utilise des vents moyennés mensuellement obtenus à partir d'une analyse du Centre Européen de Prédiction du Temps « ECMWF¹ » (climatologie 1985-1989). La tendance due à l'advection s'écrit :

$$\left(\frac{\partial \mu}{\partial t} \right)_{advection} = -\mathbf{v} \cdot \nabla \mu \quad (6.33)$$

où $\mathbf{v} = (u, v, w)$ est le vecteur vitesse du vent dont la moyenne mensuelle de chaque composante est fournie par ECMWF.

La variabilité des vents à une échelle de temps inférieure à un mois est prise en compte dans le terme de diffusion de l'équation de continuité 6.32, le coefficient de diffusion étant estimé à partir des variances du vent fournies par l'ECMWF. Le mélange vertical dans la couche limite planétaire est aussi pris en compte dans le terme de diffusion. L'effet de la convection profonde sur le transport vertical est paramétrisé suivant le schéma de *Costen et al.* (1988). Dans la version du modèle IMAGES utilisée ici (*Müller*

¹Cf. Annexe A.

et Stavrou, 2004), la distribution des nuages est paramétrisée en utilisant la distribution de Cumulo-nimbus estimée par ISCCP (climatologie « D2 » 1983-2001). Pour de plus amples détails, voir les travaux de Müller et Brasseur (1995).

Le dernier terme de l'équation de continuité 6.32 décrit l'effet de la chimie sur les gaz en trace. Il s'écrit comme

$$\left(\frac{\partial \mu}{\partial t}\right)_{chimie} = S - P\mu \quad (6.34)$$

où S et P représentent la production photochimique et le taux de perte au premier ordre, respectivement. Comme mentionné plus haut, les concentrations des espèces ayant des temps de vie courts sont calculées en négligeant l'effet du transport.

Le modèle de chimie inclut 60 espèces et 133 réactions chimiques dont 29 réactions de photodissociation (Müller et Stavrou, 2004). La distribution de la vapeur d'eau est également fournie par l'analyse de l'ECMWF. Le mécanisme chimique est entièrement décrit par Müller et Stavrou (2004).

Une simulation du modèle débute le 1^{er} septembre et se termine au 31 décembre de la seconde année. Les résultats présentés et discutés dans la partie suivante correspondent à la seconde année de la simulation. Le pas de temps utilisé est de 6 heures. Approximativement 4 heures sont nécessaires pour une simulation de deux ans sur le SGI Origin 3400 de l'IASB.

6.3 Modélisation de l'impact des émissions de composés organiques volatils sur la composition atmosphérique

L'impact des émissions biogéniques de composés organiques volatils sur la composition chimique de la troposphère est évalué en comparant les résultats du modèle IMAGES obtenus avec et sans émissions de composés organiques. Nous quantifions ces effets dans une atmosphère actuelle (caractérisée par une forte pollution au-dessus des régions industrielles) et dans une atmosphère pré-industrielle (supposée non polluée). Les émissions de composés organiques volatils biogéniques (isoprène et monoterpènes) utilisés dans le modèle IMAGES sont celles de notre inventaire MOHYCAN de référence décrit au chapitre précédent. Les sources des autres espèces considérées dans le modèle IMAGES sont décrites en détail par Müller et Brasseur (1995); Müller et Stavrou (2004).

6.3.1 Impact des émissions de composés organiques volatils sur la composition chimique dans une atmosphère polluée

La distribution du rapport de mélange de l'isoprène à la surface dans une atmosphère actuelle est présentée à la Figure 6.2. De manière générale, cette distribution est similaire à celle des émissions en raison du faible temps de vie photochimique de l'isoprène

(1-2 heures), qui limite l'effet du transport de cette espèce dans le modèle. Le rapport de mélange de l'isoprène atteint plus de 10 ppbv là où les émissions sont les plus élevées : Amérique du Sud, Afrique Tropicale et Australie. En été en Amérique du Nord et en Sibérie, le rapport de mélange de l'isoprène est généralement supérieur à 1 ppbv et inférieur à 5 ppbv.

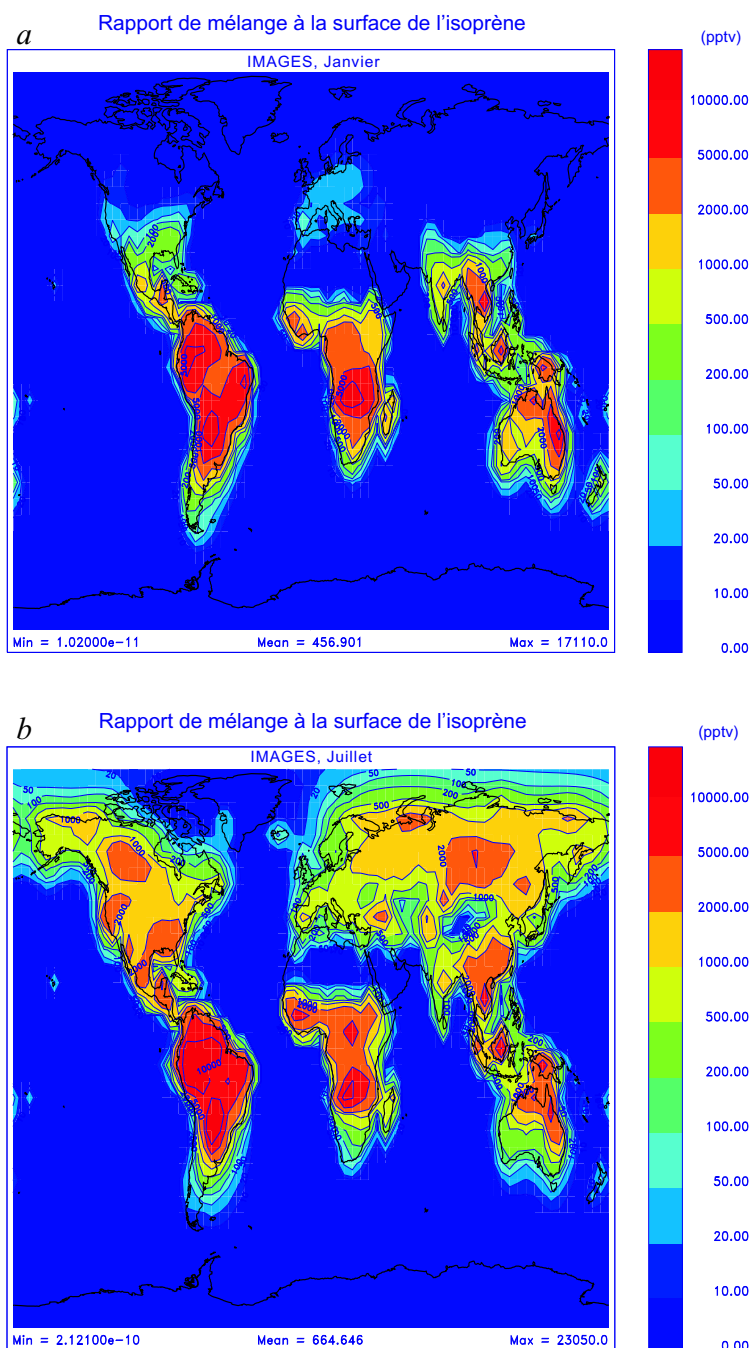


FIG. 6.2: Distribution des rapports de mélange à la surface de l'isoprène calculés par le modèle IMAGES pour une atmosphère actuelle, en janvier (*a*) et en juillet (*b*).

De manière analogue, la distribution des rapports de mélange d' α -pinène reflète la distribution des émissions. Ces rapports de mélange sont compris entre 200 et 500 pptv en Amazonie et en Afrique Tropicale. Ils atteignent environ 500 pptv dans les régions boréales en été. En moyenne globale et annuelle, le rapport de mélange à la surface d' α -pinène est environ 10 fois plus faible que celui de l'isoprène.

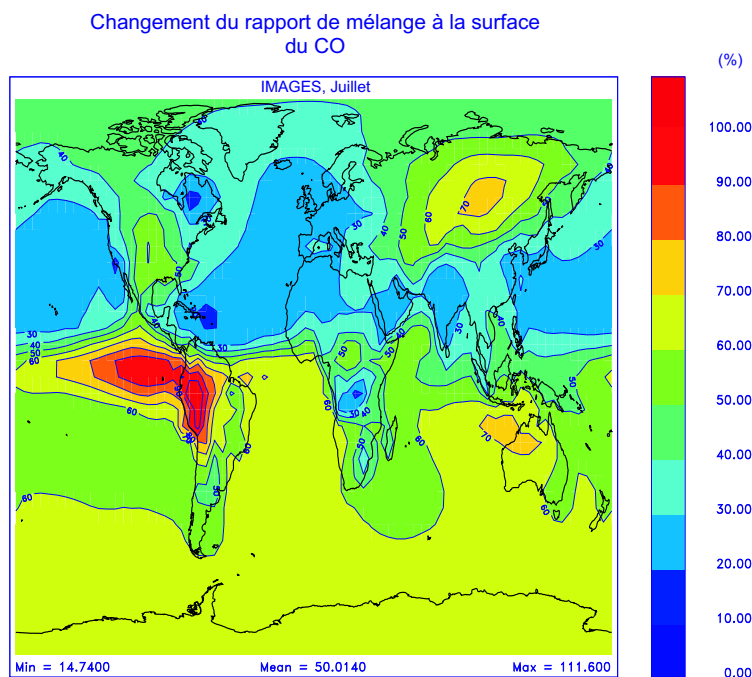


FIG. 6.3: Distribution des changements du rapport de mélange à la surface du monoxyde de carbone (CO), dus aux émissions de composés organiques biogéniques. Ces valeurs ont été calculées par le modèle IMAGES pour une atmosphère actuelle, en juillet.

L'une des espèces produites lors de l'oxydation des composés organiques volatils est le monoxyde de carbone. La Figure 6.3 présente la distribution de l'augmentation du rapport de mélange à la surface du CO pour le mois de juillet. Cette augmentation excède 100% en Amazonie. La grande étendue des régions où ces augmentations sont importantes est liée au transport du CO, le temps de vie du CO étant supérieur à un mois. Le rapport de mélange à la surface du CO augmente généralement de 20 à 40% dans l'Hémisphère Nord, atteignant 70% en Sibérie Orientale. Dans l'Hémisphère Sud, l'augmentation est de l'ordre de 60% sur les océans. Les valeurs plus faibles de l'augmentation notées dans l'est du Brésil et surtout en Afrique Tropicale sont dues à la prépondérance des émissions dues aux feux de forêts et de savane dans ces régions. L'oxydation des composés organiques volatils biogéniques entraîne une augmentation moyenne du monoxyde de carbone d'environ 25% en janvier et de l'ordre de 50% en juillet. La quantité totale intégrée du monoxyde de carbone augmente de 248 à 347 Tg, indiquant une augmentation d'environ 40%. Cette augmentation est en grande partie liée à l'augmentation du temps de vie global du CO. Ce dernier passe en effet de

38 à 48 jours, soit une augmentation d'environ 25%, lorsque l'oxydation des composés organiques volatils biogéniques est considérée.

Le formaldéhyde, CH_2O est un autre produit de l'oxydation des composés organiques volatils biogéniques. Il est particulièrement abondant au-dessus des sources de composés biogéniques. La Figure 6.4 montre les changements de la colonne de CH_2O en juillet due à l'oxydation de l'isoprène et d' α -pinène. La colonne de formaldéhyde est plus élevée (40-100%), particulièrement dans les régions boréales, en Amazonie et dans le Sud de l'Afrique où les changements peuvent atteindre plus de 200%.

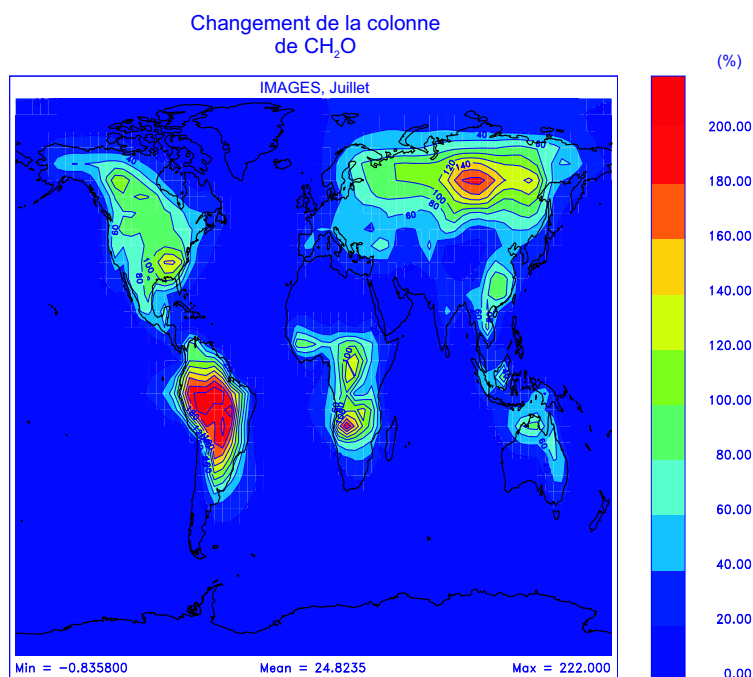


FIG. 6.4: Distribution des changements de la colonne de formaldéhyde (CH_2O), dus aux émissions de composés organiques biogéniques. Ces valeurs ont été calculées par le modèle IMAGES pour une atmosphère actuelle, en juillet.

Dans la section précédente, nous avons vu que la principale voie d'oxydation des composés organiques volatils biogéniques est initiée par réaction avec le radical hydroxyle $\text{OH}\cdot$. La Figure 6.5 montre les changements du rapport de mélange à la surface de $\text{OH}\cdot$ produits par l'introduction de l'isoprène et des terpènes dans le modèle IMAGES, en juillet. De manière générale, le rapport de mélange de $\text{OH}\cdot$ est fortement réduit (-50 à -100%) sur les régions continentales, du fait sa consommation par la réaction 6.17 et par sa réaction avec les produits d'oxydation des composés biogéniques, dont le monoxyde de carbone. Dans le Sahara et dans les régions océaniques aux basses latitudes de l'Hémisphère Nord, une augmentation est notée (jusqu'à plus de 10%), due à l'augmentation des concentrations des NO_x provenant de la décomposition des peroxyacyles nitrates transportés depuis les régions polluées. En effet, des concentrations élevées de NO favorisent la conversion du radical hydroperoxyde $\text{HO}_2\cdot$ en radical hydroxyle $\text{OH}\cdot$ (réaction 6.12). En moyenne, l'oxydation des hydrocarbures biogéniques

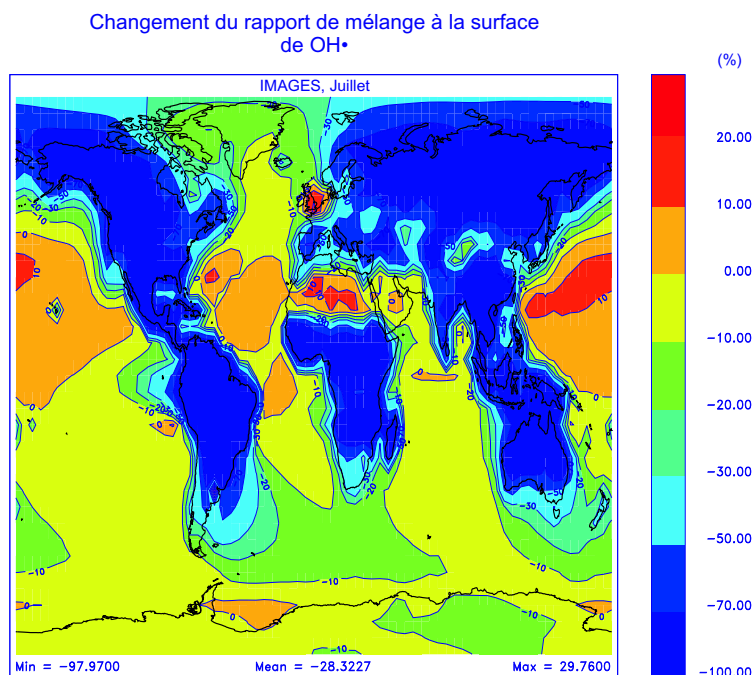


FIG. 6.5: Distribution des changements du rapport de mélange à la surface du radical hydroxyle (OH•), dus aux émissions de composés organiques biogéniques. Ces valeurs ont été calculées par le modèle IMAGES pour une atmosphère actuelle, en juillet.

entraîne une diminution d'environ 30% du radical hydroxyle à la surface terrestre.

Dans les régions polluées où les concentrations d'oxydes d'azote sont particulièrement élevées, l'oxydation des composés organiques biogéniques entraîne une production nette d'ozone (réactions 6.1 et 6.2). La Figure 6.6 illustre les changements des rapports de mélange à la surface (a) de l'ozone et (b) des oxydes d'azote, pour le mois de juillet. Le rapport de mélange de l'ozone à la surface augmente généralement de plus de 10% aux latitudes moyennes, et de plus de 20% au-dessus de l'est des Etats-Unis, de l'Europe méditerranéenne et de l'est de la Chine. Les fortes augmentations ($\geq 20\%$) du rapport de mélange de l'ozone au-dessus du Nord de l'Afrique, et de l'Océan Pacifique et de l'Océan Atlantique sont dues à la décomposition des peroxyacyles nitrates, qui ont été transportés des régions polluées vers des régions moins polluées, libérant des oxydes d'azote (réaction inverse de la réaction 6.24), et favorisant donc la formation d'ozone dans ces régions. La diminution de l'ozone au-dessus des régions continentales de l'Hémisphère Sud est principalement due à la diminution des concentrations d'oxydes d'azote consécutive à la formation de nitrates organiques et de peroxyacyles nitrates. Les différences du rapport de mélange de l'ozone sont de l'ordre de 8 à 12 ppbv (différences absolues) au-dessus des continents aux latitudes moyennes. Ces résultats sont en accord avec ceux de *Wang et Shallcross (2000)*.

Les rapports de mélange des oxydes d'azote ($\text{NO} + \text{NO}_2$) diminuent en effet de 10 à plus de 50% au-dessus de la plupart des régions continentales aux Tropiques ainsi qu'aux hautes latitudes, suite à l'oxydation des composés biogéniques. Par contre, au-dessus

des océans et des régions désertiques comme le Sahara, ces rapports de mélange sont généralement plus élevés ($0 \leq 200\%$). Ces augmentations sont, comme dans le cas de l'ozone, liées à la décomposition des peroxyacyles nitrates transportés depuis les régions polluées.

La Figure 6.7 montre les moyennes zonales des changements de la concentration de $\text{OH}\cdot$ (*a*), de l'ozone (*b*) et de $\text{NO} + \text{NO}_2$ (*c*) en fonction de l'altitude et de la latitude. Les concentrations de $\text{OH}\cdot$ diminuent (de 30 à 60%) principalement près des sources (altitudes inférieures à 2 km) de composés biogéniques (latitudes comprises entre -30 et 30° , et entre 30 et 70°), du fait de leur oxydation par ce radical. Les diminutions de $\text{OH}\cdot$ rencontrées à de plus hautes altitudes (jusqu'à plus de 50% vers 8-12 km au niveau de l'équateur) sont liées à l'oxydation de composés tels que le monoxyde de carbone (réaction 6.10), les nitrates d'alkyles (réaction 6.22), les hydroperoxydes (réaction 6.27) et les espèces partiellement oxydées telles que les cétones et les aldéhydes dont les temps de vie sont plus longs que les composés biogéniques initiaux.

Les rapports de mélange des oxydes d'azote diminuent également au voisinage des sources de composés organiques volatils biogéniques, à des altitudes inférieures à 2 km. Ces diminutions sont dues à la formation de nitrates organiques. Les fortes augmentations de ces oxydes d'azote vers 3 km d'altitude sont dues à la décomposition des peroxydes nitrates. A de plus hautes altitudes, les oxydes d'azotes transportés depuis les altitudes inférieures sont consommés du fait de la formation de nitrates et de PAN qui est stable thermiquement aux basses températures typiques de la troposphère supérieure. Cette consommation entraîne une diminution des oxydes d'azote atteignant plus de 30% dans ces régions.

Les moyennes zonales des changements du rapport de mélange de l'ozone montrent une augmentation dans la plupart des régions et particulièrement (plus de 15%) aux basses altitudes de l'Hémisphère Nord (généralement riches en oxydes d'azote). Au-dessus des océans, l'apport des NO_x par la décomposition des peroxyacyles nitrates transportés depuis les continents contribue à la formation d'ozone. Les valeurs plus faibles, voire négatives à de plus hautes altitudes (vers 7 km) au niveau de l'équateur sont dues à la diminution des concentrations de NO_x notée plus haut, entraînant une consommation nette d'ozone due à l'oxydation d'autres espèces comme le CO (réactions 6.10, 6.11 et 6.8).

Finalement, l'oxydation des composés organiques volatils par le radical hydroxyle $\text{OH}\cdot$ conduit à une augmentation du temps de vie d'autres espèces. Ainsi, le temps de vie du méthane est d'environ 7.57 ans en absence d'émission de composés organiques biogéniques, et de l'ordre de 9.45 ans lorsque ces composés sont pris en compte oxydés, ce qui représente une augmentation d'environ 25%.

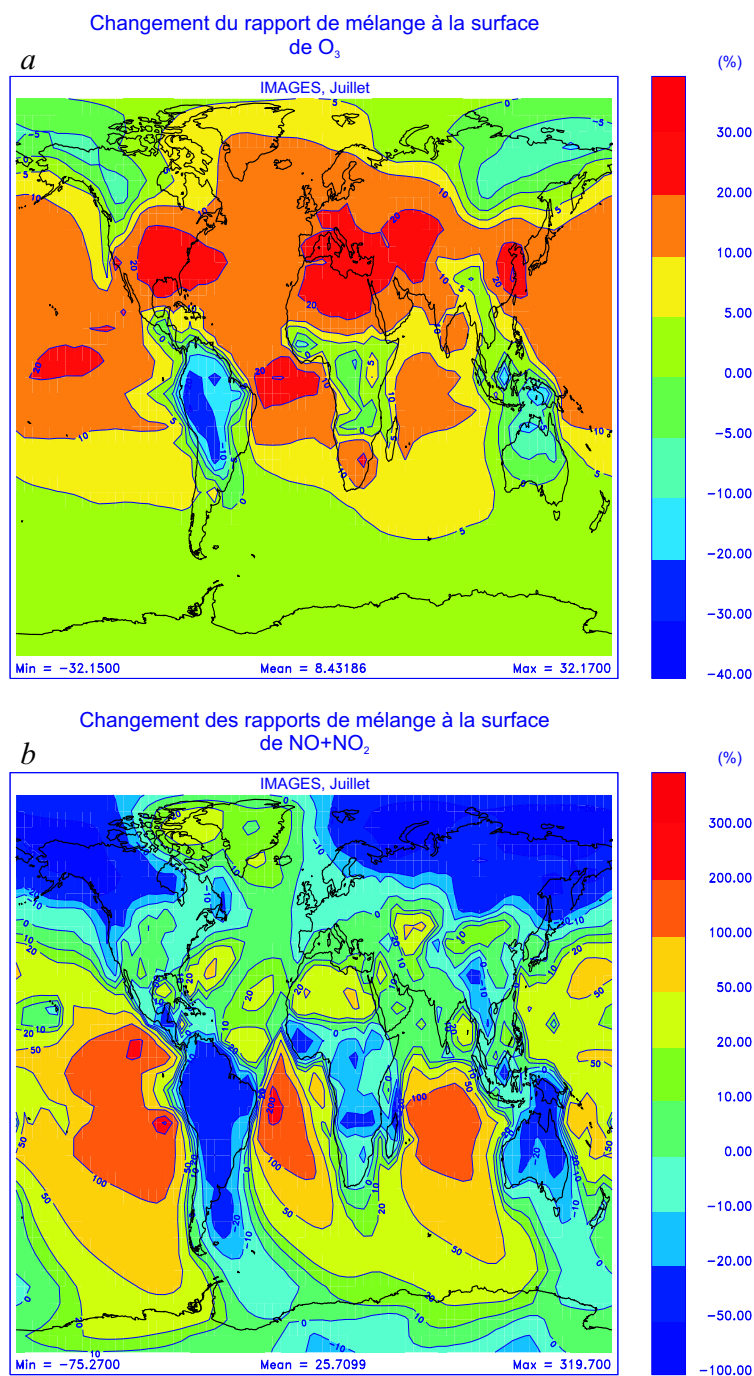


FIG. 6.6: Distribution des changements des rapports de mélange à la surface de l'ozone (O_3) (*a*) et des oxydes d'azote ($NO + NO_2$) (*b*), dus aux émissions de composés organiques biogéniques. Ces valeurs ont été calculées par le modèle IMAGES dans une atmosphère actuelle, en juillet.

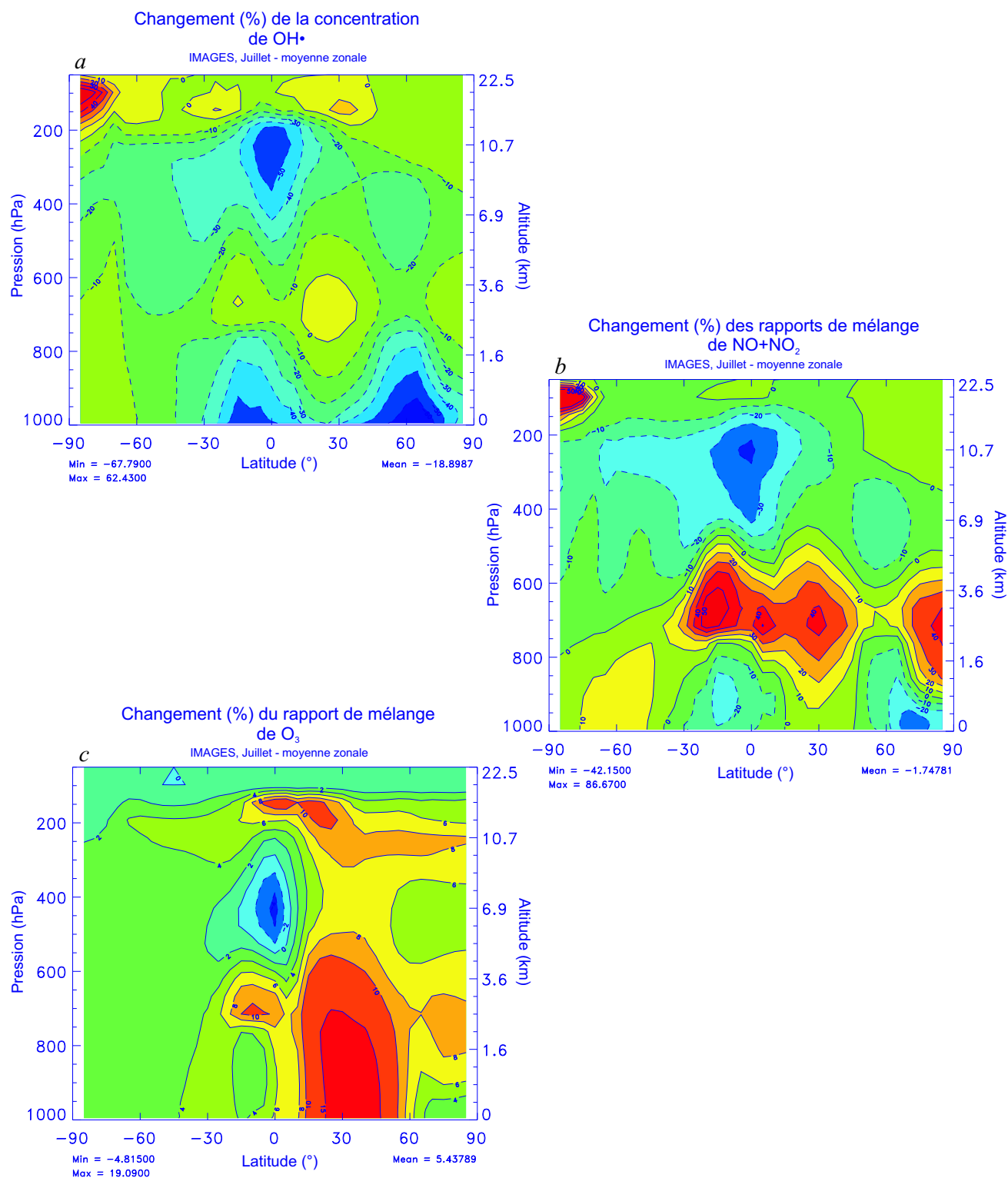


FIG. 6.7: Distribution des moyennes zonales des changements de la concentration du radical hydroxyle (OH \cdot) (*a*), des rapports de mélange de l'ozone (O $_3$) (*b*) et des oxydes d'azote (NO + NO $_2$) (*c*), dus aux émissions de composés organiques biogéniques. Ces valeurs ont été calculées par le modèle IMAGES pour une atmosphère actuelle, en juillet. Les tirets spécifient les valeurs négatives des changements.

6.3.2 Impact des émissions de composés organiques volatils sur la composition chimique dans une atmosphère pré-industrielle (non polluée)

Dans l'atmosphère pré-industrielle, caractérisée par des émissions anthropiques (de CO, de NO_x et d'hydrocarbures anthropiques) nettement plus faibles qu'aujourd'hui, l'oxydation des composés biogéniques possède des conséquences quelque peu différentes sur la composition atmosphérique.

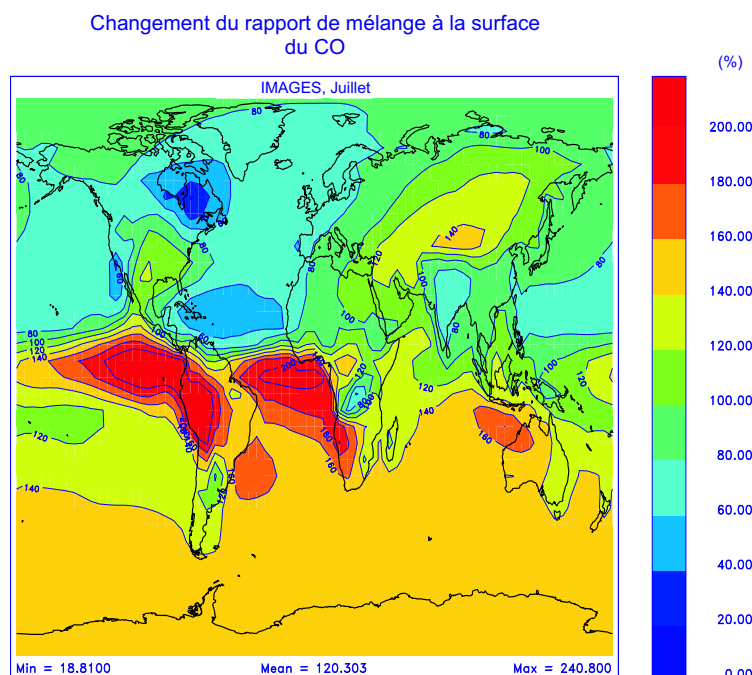


FIG. 6.8: Distribution des changements du rapport de mélange à la surface du monoxyde de carbone (CO), dus aux émissions de composés organiques biogéniques. Ces valeurs ont été calculées par le modèle IMAGES pour une atmosphère pré-industrielle, en juillet.

La Figure 6.8 montre l'augmentation du rapport de mélange à la surface de CO due aux émissions biogéniques de composés organiques en juillet. Bien que ces changements montrent une distribution similaire à celle obtenue pour une atmosphère polluée (Cf. Figure 6.3), leurs valeurs sont environ deux fois plus élevées, en particulier dans les régions tropicales où les émissions biogéniques sont dominantes. Les émissions pré-industrielles dues au brûlage de la biomasse ont été supposées cinq fois plus faibles qu'à l'époque actuelle dans nos calculs, ce qui explique le changement maximum (plus de 200%) observé à l'ouest de l'Afrique. Le rapport de mélange du CO augmente d'environ 120% en moyenne globale en juillet lorsque l'oxydation des composés organiques biogéniques est prise en compte.

Les deux autres espèces présentant des changements importants de leur rapport de mélange en présence de composés organiques biogéniques dans une atmosphère

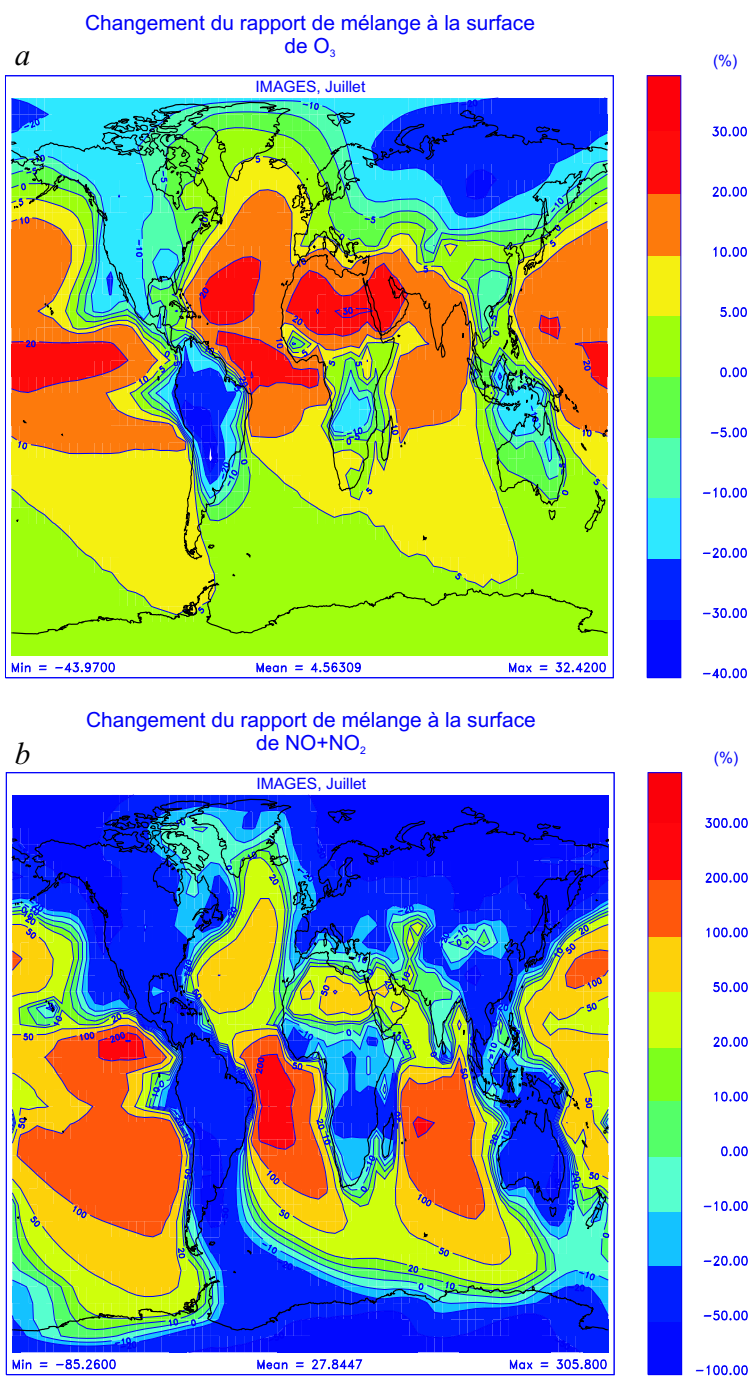


FIG. 6.9: Distribution des changements des rapports de mélange à la surface de l'ozone (O_3) (*a*) et des oxydes d'azote ($NO + NO_2$) (*b*), dus aux émissions de composés organiques biogéniques. Ces valeurs ont été calculées par le modèle IMAGES pour une atmosphère pré-industrielle, en juillet.

non polluée sont l'ozone et les oxydes d'azote. La Figure 6.9 montre les changements des rapports de mélange de l'ozone (*a*) et des oxydes d'azote ($\text{NO} + \text{NO}_2$) (*b*). Dans une atmosphère non polluée, les radicaux alkylperoxy réagissent principalement avec le radical hydroperoxyde (réaction 6.26) ou avec les autres radicaux peroxy (réaction 6.30). Dans ce cas, la production d'ozone n'a pas lieu. De plus, sur les continents, les concentrations d'oxydes d'azote diminuent de 20 à plus de 50% en conséquence de la formation de nitrates organiques et de peroxyacyles nitrates. Sur les océans, les peroxyacyles nitrates transportés depuis les continents se décomposent, libérant des oxydes d'azote. Les valeurs élevées des changements relatifs des rapports de mélange sont liées aux faibles valeurs des rapports de mélange d'oxydes d'azote à l'époque pré-industrielle.

En conséquence, l'ozone au-dessus des continents diminue (5 à 30%, voire 40%), tandis que la décomposition des peroxyacyles nitrates au-dessus des océans et du Sahara entraîne une augmentation de l'ozone atteignant plus de 20%.

Signalons encore que dans une atmosphère pré-industrielle, le temps de vie du méthane est évalué à 7.1 et 11.5 ans en absence et en présence de composés organiques volatils biogéniques, respectivement, montrant ainsi une augmentation d'environ 63% due principalement à la réaction des composés biogéniques et de leurs produits d'oxydation avec le radical hydroxyle $\text{OH}\cdot$.

6.4 Conclusions

En conclusion, nous avons vu que l'oxydation des composés organiques volatils biogéniques entraîne une augmentation des concentrations du monoxyde de carbone pouvant atteindre plus de 100% au-dessus de l'Amazonie dans une atmosphère actuelle, et plus de 200% au-dessus de l'Amazonie et de l'Afrique dans une atmosphère pré-industrielle.

Les oxydes d'azote diminuent (de 0 à plus de 50%) généralement sur les continents (du fait de la formation de nitrates organiques) et augmentent (de 10 à plus de 200%) sur les océans (du fait de la décomposition des peroxyacyles nitrates transportés depuis les continents).

Sur les continents, l'ozone augmente au-dessus des régions riches en oxydes d'azote, cette augmentation pouvant atteindre jusqu'à 20%. Le transport des peroxyacyles nitrates et la libération des oxydes d'azote qui en résulte entraînent une production accrue d'ozone au-dessus des océans.

La concentration du radical hydroxyle $\text{OH}\cdot$ diminue fortement (jusqu'à plus de 70%) sur les continents, tandis qu'elle diminue moins (voire augmente) au-dessus des océans, en conséquence de l'oxydation de composés organiques volatils biogéniques dans une atmosphère actuelle.

Finalement, le temps de vie du méthane augmente de 25% en conséquence de l'oxydation des composés organiques volatils biogéniques par le radical hydroxyle. Dans l'atmosphère pré-industrielle, l'impact des composés organiques biogéniques est plus important (+63%).

CHAPITRE 7

Conclusions générales

Nous avons développé un modèle détaillé de la canopée, MOHYCAN, permettant de calculer les émissions de composés organiques volatils par la végétation à l'aide d'algorithmes basés sur les études de *Guenther et al.* (1993); *Guenther* (1997); *Guenther et al.* (1999). MOHYCAN détermine les éclaircissements visible et infrarouge, direct et diffus, et calcule la température des feuilles, par équilibre d'énergie, à différents niveaux dans la canopée, en distinguant les feuilles au soleil des feuilles à l'ombre. Outre son traitement détaillé du transfert radiatif, ce modèle possède donc l'avantage de permettre le calcul de la température de la feuille, ce qui n'avait pas été fait auparavant dans le modèle de *Guenther et al.* (1995) utilisé pour établir l'inventaire global GEIA (adopté par la plupart des modèles de chimie troposphérique). Nous avons ensuite utilisé des données provenant de campagnes de mesure pour évaluer les émissions de composés organiques volatils biogéniques calculées avec MOHYCAN. Les données des campagnes de mesure nous ont permis d'étudier dans le détail différents aspects du modèle et des algorithmes d'émissions.

Nous avons montré que le modèle de transfert radiatif utilisé dans MOHYCAN reproduit correctement l'atténuation observée du rayonnement actif pour la photosynthèse (PAR) dans la canopée. Il représente particulièrement mieux cette atténuation qu'un modèle simple, et ce sans ajustement du modèle à l'aide d'observations. Le modèle indique que la pénétration du rayonnement est la plus forte pour de faibles valeurs de l'angle zénithal et de la fraction diffuse du rayonnement au sommet de la canopée. Dans un cas de ciel clair, l'atténuation du rayonnement augmente avec l'angle zénithal lorsque cet angle est inférieur ou égal à 80° , et diminue au-delà. Par contre, dans le cas nuageux, cette atténuation est indépendante de l'angle zénithal. Certaines caractéristiques du modèle sont importantes, comme le facteur de cluster, qui influence l'atténuation du rayonnement dans la canopée, et la différenciation des feuilles au soleil et à l'ombre.

Nous avons démontré que la représentation plus détaillée du transfert radiatif dans

la canopée dans MOHYCAN induit une diminution des émissions d'isoprène pouvant atteindre 25% dans certaines régions, par rapport aux émissions de l'inventaire de référence GEIA utilisé dans un grand nombre de modèles de chimie troposphérique.

Nous avons également démontré l'importance de l'utilisation de la température de la feuille, qui induit des augmentations notables des émissions d'isoprène : jusqu'à 50% dans certaines situations, comme c'est le cas à la forêt de Harvard, et pouvant excéder 30% dans de nombreuses régions sèches.

La résistance stomatique est un paramètre important dans la détermination de la température de la feuille. Nous avons démontré que l'utilisation d'une paramétrisation alternative, proposée par A. Guenther, conduit à des écarts de température entre l'air et les feuilles beaucoup plus faibles que lorsque cette résistance est calculée selon la paramétrisation basée sur le modèle SiB (*Sellers et al.*, 1986). Le facteur de stress hydrique joue un rôle particulièrement important dans les régions sèches. Les émissions de ces régions augmentent d'environ 20-25% lorsque le stress hydrique est pris en compte. Ce facteur est cependant très incertain. Une amélioration de sa détermination requerrait le couplage de MOHYCAN à un modèle détaillé de l'eau dans le sol tenant compte de ses propriétés. Cependant, ce modèle serait généralement difficilement applicable dans le cas de comparaisons avec des données provenant de campagnes de mesure, faute de pouvoir disposer des mesures du contenu en eau et des propriétés hydriques du sol.

Le choix des profils verticaux de l'indice de surface de feuille, de la température de l'air et de l'humidité relative de l'air n'a que peu d'influence sur les émissions de composés organiques volatils biogéniques. Il en est de même de l'hétérogénéité de l'indice de surface de feuille, tant que la valeur de cet indice est faible (inférieure à $2 \text{ m}_{\text{feuille}}^2 \text{ m}_{\text{sol}}^{-2}$). Cependant, il n'a pas été possible d'évaluer l'impact du degré d'hétérogénéité de l'indice de surface de feuille dans des écosystèmes plus denses comme les forêts.

Nous avons démontré que l'algorithme d'émission de *Guenther (1997) (G97)* reproduit généralement les variations observées des émissions. Cependant, dans certaines situations, comme par exemple au site de Maun, une version modifiée de cet algorithme donne de meilleurs résultats. Au site de Tapajós, en Amazonie, les émissions calculées avec MOHYCAN sont fortement surestimées (jusqu'à un facteur 11), indiquant donc que la valeur du facteur d'émission standard utilisée pour cet écosystème, tirée de la littérature, est très inappropriée. Ce fait souligne le besoin de nouvelles déterminations expérimentales des facteurs d'émission standard, qui demeurent mal connus dans de nombreux environnements. Ceci est vrai non seulement pour l'isoprène et les monoterpènes, mais aussi et surtout pour les autres composés organiques biogéniques (méthylbuténol, acétone, formaldéhyde, . . .). D'autre part, le nouvel algorithme développé par *Guenther et al. (1999) (G99)* prenant en compte l'influence de la température moyenne des 15 derniers jours, ainsi que l'âge de la feuille, a été également testé. L'effet de la température moyenne des 15 derniers jours n'est pas confirmé par les données expérimentales dont nous disposons et la paramétrisation de l'effet de l'âge de la feuille apparaît trop marquée au printemps et nettement insuffisante en automne. L'algorithme

G97 est donc le plus approprié, compte tenu des difficultés d'application de l'algorithme G99.

Nous avons vu que notre inventaire MOHYCAN de référence prédit des émissions d'isoprène plus élevées (environ 23%) que celles qui figurent dans l'inventaire GEIA.

Les différences entre les diverses climatologies que nous avons considérées pour les variables météorologiques et pour l'indice de surface de feuille ont des répercussions souvent importantes sur les estimations des émissions de composés organiques à l'échelle globale. Dans le cas des variables météorologiques (température, rayonnement, vitesse du vent, ...), l'utilisation d'analyses météorologiques comme celles du ECMWF (European Center for Medium range Weather Forecast), devraient permettre une meilleure estimation de ces variables. Quant à l'indice de surface de feuille, bien que les données par satellite soient prometteuses, nous avons démontré qu'elles présentaient encore des biais systématiques par rapport aux mesures effectuées sur le terrain.

Finalement, nous avons évalué, à l'aide du modèle IMAGES, l'impact des émissions de composés organiques volatils sur la composition chimique de la troposphère dans une atmosphère actuelle et dans une atmosphère pré-industrielle. L'oxydation des composés biogéniques entraîne une augmentation importante de l'abondance du monoxyde de carbone, particulièrement au-dessus des régions sources, atteignant plus de 100% dans une atmosphère actuelle et plus de 200% dans une atmosphère pré-industrielle. Les concentrations du radical hydroxyle diminuent (plus de 70 %) sur les continents, tandis qu'elles augmentent d'environ 10% sur les océans. Les concentrations d'ozone augmentent de 10 à plus de 20% au-dessus des sources dans les régions présentant des niveaux élevés en oxydes d'azote et au-dessus des océans. Elles diminuent ailleurs, jusqu'à environ 30% et 40% dans des atmosphères actuelle et pré-industrielle, respectivement. Les concentrations d'oxydes d'azote diminuent jusqu'à 50% au-dessus de la plupart des régions continentales et augmentent au-dessus des régions désertiques et océaniques, ces augmentations pouvant atteindre 200%. De manière générale, l'impact des émissions de composés organiques volatils est plus marqué dans une atmosphère pré-industrielle.

Une des prochaines étapes de notre recherche sera l'utilisation d'analyses météorologiques pour l'établissement d'inventaires et la détermination de la variabilité inter-annuelle des émissions. Nous pourrions également étudier l'impact de scénarios pour le futur comme la déforestation, l'augmentation du taux de dioxyde de carbone et les changements climatiques. Le modèle MOHYCAN pourra être introduit dans un modèle de chimie et de transport (comme le modèle MOZART) afin de calculer « en direct » les émissions de composés organiques volatils biogéniques ainsi que leurs impacts sur la composition de la troposphère.

ANNEXE A

Liste des acronymes

Les différents acronymes utilisés dans le texte sont les abréviations des expressions anglo-saxonnes.

<i>Acronymes</i>	<i>Appellation anglaise</i>	<i>Description</i>
AVHRR	<u>A</u> dvanced <u>V</u> ery <u>H</u> igh <u>R</u> eso- lution <u>R</u> adiometer	Radiomètre de haute résolution permettant l'observation de la Terre à partir des satellites (NOAA) dans le visible, le proche infra-rouge et l'infra-rouge thermique
AVOC	<u>A</u> nthropogenic <u>V</u> olatile <u>O</u> rga- nic <u>C</u> ompounds	Famille des composés organiques volatils d'origine anthropique
BEMA	<u>B</u> iogenic <u>E</u> missions in the <u>M</u> editerranean <u>A</u> rea	Projet de recherche portant sur les émissions de BVOC dans les régions méditerranéennes
BIM	<u>B</u> iochemical <u>I</u> soprene emis- sion <u>M</u> odel	Modèle de calcul des émissions d'isoprène basé sur la biochimie
BIPHOREP	<u>B</u> logenic VOC emissions and <u>P</u> H <u>O</u> tochemistry in the bo- real <u>R</u> egion in <u>E</u> uro <u>P</u> e	Projet de recherche portant sur les émissions de BVOC, en particulier les terpènes, par les forêts boréales du nord de l'Europe et sur le développement de schémas photochimiques de leur oxydation dans l'atmosphère

BOREAS	<u>B</u> OReal <u>E</u> cosystem- <u>A</u> tmo- <u>s</u> phere <u>S</u> tudy	Projet international de recherche consacré aux forêts boréales au Canada
BVOC	<u>B</u> iogenic <u>V</u> olatile <u>O</u> rganic <u>C</u> ompounds	Famille des composés organiques volatils d'origine biogénique
CFC	<u>C</u> hloro <u>F</u> luoro <u>C</u> arbons	Chlorofluorocarbures
CRU	<u>C</u> limatic <u>R</u> esearch <u>U</u> nit global climate dataset	Climatologie globale de l'Unité de Recherche Climatique à l'Université de East Anglia
CTM	<u>C</u> hemical <u>T</u> ransport <u>M</u> odel	Modèle de chimie et de transport dans l'atmosphère
DES	<u>D</u> isjunct <u>E</u> ddy <u>S</u> ampling	Méthode de mesure des flux de BVOC basée sur la collecte non-continue d'échantillons
DMS	<u>D</u> i <u>M</u> ethyl <u>S</u> ulfide	Sulfure de diméthyle
DU	<u>D</u> obson <u>U</u> nit	Unités Dobson utilisées dans la mesure d'une colonne d'ozone
EA	<u>E</u> ddy <u>A</u> ccumulation method	Méthode de mesure des flux de BVOC basée sur l'accumulation d'air dans deux réservoirs selon la vitesse du vent
EC	<u>E</u> ddy <u>C</u> ovariance method	Méthode de mesure des flux de BVOC basée sur la covariance : produit moyen des fluctuations du vent et de la concentration
ECMWF	<u>E</u> uropean <u>C</u> enter for <u>M</u> edium range <u>W</u> eather <u>F</u> orecast	Centre européen pour la prédiction du temps
ECOVOC	Parameterization of <u>E</u> nvironmental and physiological <u>C</u> ontrols of <u>V</u> olatile <u>O</u> rganic <u>C</u> ompound emissions from European forest	Projet de recherche visant à paramétriser les contrôles environnementaux et physiologiques des émissions de VOC par les forêts européennes
EXPRESSO	<u>E</u> XPeriment for <u>R</u> egional <u>S</u> ources and <u>S</u> inks of <u>O</u> xidants	Programme de recherche portant sur les processus contrôlant la composition chimique en Afrique Centrale

FID	<u>F</u> lame <u>I</u> onization <u>D</u> etector	Détecteur à ionisation de flamme
FIS	<u>F</u> ast <u>I</u> soprene <u>S</u> ensor	Détecteur rapide pour l'isoprène
GC	<u>G</u> az <u>C</u> hromatography	Chromatographie en phase gazeuse
GEIA	<u>G</u> lobal <u>E</u> mission <u>I</u> nv ^e ntory <u>A</u> ctivity	Inventaire des émissions globales
GVI	<u>G</u> lobal <u>V</u> egetation <u>I</u> ndex	Indice (équivalent au NDVI) caractérisant la végétation obtenu à partir de données par satellite
HCFC	<u>H</u> ydro <u>C</u> hloro <u>F</u> luoro <u>C</u> arbons	Hydrochlorofluorocarbures
IMAGES	<u>I</u> ntermediate <u>M</u> odel for the <u>A</u> nnual and <u>G</u> lobal <u>E</u> volution of <u>S</u> pecies	Modèle global, à 3 dimensions, de chimie et de transport (CTM) troposphérique
IPCC	<u>I</u> ntergovernmental <u>P</u> anel on <u>C</u> limate <u>C</u> hange	Groupe intergouvernemental d'experts consacré à l'évolution du climat et dont le but est de donner des avis scientifiques, techniques et socio-économiques à la communauté internationale
ISCCP	<u>I</u> nternational <u>S</u> atellite <u>C</u> loud <u>C</u> limatology <u>P</u> roject	Projet pour l'établissement d'une climatologie globale des nuages utilisant des données par satellite
LAI	<u>L</u> eaf <u>A</u> rea <u>I</u> ndex	Indice de surface de feuille ^a
LBA	<u>L</u> arge scale <u>B</u> iosphere- <u>A</u> tmosphere experiment in Amazonia	Initiative internationale de recherche, focalisée sur les effets des changements d'utilisation du sol et des changements climatiques dans la région amazonienne
LC	<u>L</u> eemans and <u>C</u> ramer climatology	Climatologie de <i>Leemans et Cramer</i> (1991)
LH	<u>L</u> atent <u>H</u> eat	Flux de chaleur latente (échange de vapeur d'eau entre la feuille et l'air)
LW	<u>L</u> ong <u>W</u> ave radiation	Rayonnement de grande longueur d'onde, c-à-d rayonnement thermique (longueurs d'onde comprises entre 3 et 20 μm)

MACR	<u>MethACR</u> olein	Méthacroléine, produit d'oxydation de l'isoprène
MBO	2- <u>Methyl</u> -3- <u>Buten</u> -2- <u>Ol</u>	2-méthyle-3-butène-2-ol, alcool de la famille des hémiterpènes comme l'isoprène
MODIS	<u>MOD</u> erate resolution <u>Ima</u> ging <u>Spe</u> ctrometer instrument	Spectromètre pour l'imagerie à résolution modérée, lancé avec le satellite TERRA-AM en 1999 pour l'observation de la Terre. Les mesures MODIS sont utilisées notamment pour cartographier les aérosols, la LAI, la NPP et l'apparition des feux de forêt.
MOHYCAN	<u>MO</u> del for estimating the <u>HY</u> drocarbons emissions by the <u>CAN</u> opy	Modèle pour le calcul des émissions des hydrocarbures par la canopée
MOZART	<u>MO</u> del for <u>OZ</u> one <u>And</u> <u>Re</u> lated chemical <u>Tr</u> acers	Modèle global, à 3 dimensions, de chimie et de transport (CTM) troposphérique
MS	<u>Mass</u> <u>Spe</u> ctrometer	Spectromètre de masse
MVK	<u>Methyl</u> <u>Vinyl</u> <u>Ketone</u>	Méthyle vinyle cétone, produit d'oxydation de l'isoprène
NDVI	<u>Normal</u> ized <u>Difference</u> <u>Vege</u> tation <u>Index</u>	Indice caractéristique de la végétation estimé à partir de mesures par satellite de la réflectance dans le rouge et proche infrarouge
NIR	<u>Near</u> <u>Infra-Red</u> radiation	Rayonnement proche infrarouge (longueurs d'onde comprises entre ~0.700 et 4 μm)
NMHC	<u>Non-Methane</u> <u>HydroCar</u> bons	Famille des hydrocarbures, sans le méthane
NMVOC	<u>Non-Methane</u> <u>Volatile</u> <u>Orga</u> nic <u>Comp</u> ounds	Famille des composés organiques volatils, sans le méthane
NOAA	<u>National</u> <u>Oceanic</u> and <u>Atmo</u> spheric <u>Admi</u> nistration	Centre national de recherche océanographique et atmosphérique situé à Boulder, aux Etats-Unis
NPP	<u>Net</u> <u>Primary</u> <u>Pro</u> ductivity	Productivité primaire nette ^a

ORNL – DAAC	<u>O</u> ak <u>R</u> idge <u>N</u> ational <u>L</u> abo- <u>r</u> atory – <u>D</u> istributed <u>A</u> ctive <u>A</u> rchive <u>C</u> enter	Centre de distribution de données du laboratoire national de Oak Ridge, aux Etats-Unis
ORVOC	<u>O</u> ther <u>R</u> eactive <u>V</u> olatile <u>O</u> - <u>r</u> ganic <u>C</u> ompounds	Famille des autres VOC réactifs ayant des temps de vie inférieurs à 1 jour
OVOC	<u>O</u> ther <u>V</u> olatile <u>O</u> rganic <u>C</u> om- <u>p</u> ounds	Famille des autres VOC ayant des temps de vie supérieurs à 1 jour
PAN	<u>P</u> eroxy <u>A</u> cetyl <u>N</u> itrate	Peroxyacétyle nitrate
PAR	<u>P</u> hotosynthetically <u>A</u> ctive <u>R</u> - <u>a</u> diation	Rayonnement actif pour la photo- synthèse ^a équivalent à la partie vi- sible du spectre solaire (longueurs d'onde comprises entre 0.380 et 0.710 μm ou encore entre 0.400 et 0.700 μm)
PI	<u>P</u> hotosynthetic <u>I</u> rradiance	Eclairement qui entre en jeu pour la photosynthèse ^a
PPF	<u>P</u> hotosynthetic <u>P</u> hoton <u>F</u> lux	Flux de photons qui entre en jeu pour la photosynthèse ^a
REA	<u>R</u> elaxed <u>E</u> ddy <u>A</u> ccumulation method	Méthode de mesure des flux de BVOC basée sur l'accumulation de l'air dans deux réservoirs en fonction du signe de la vitesse du vent
ROSE	<u>R</u> ural <u>O</u> xidants in the <u>S</u> ou- <u>t</u> hern <u>E</u> nvironment site	Site de mesure dans l'Alabama dans le cadre du projet SOS
SAFARI	The <u>S</u> outhern <u>A</u> frican <u>R</u> egio- <u>n</u> al Science <u>I</u> nitiative	Initiative scientifique internationa- le consacrée au système terre- atmosphère-homme du sud de l'Afri- que
SH	<u>S</u> ensible <u>H</u> eat	Flux de chaleur sensible (échange de chaleur dû à une différence de température)
SiB	<u>S</u> imple <u>B</u> iosphere model	Modèle simple de la biosphère qui calcule le transfert d'énergie, de masse et de quantité de mouvement et qui est utilisé dans les modèles de circulation générale

SIM	<u>S</u> easonal <u>I</u> soprenoid syn- thase emission <u>M</u> odel	Modèle de calcul des variations saisonnières des émissions d'isoprène basé sur l'activité de l'« isoprene synthase »
SOS	<u>S</u> outhern <u>O</u> xidants <u>S</u> tudy	Projet de recherche sur l'ozone et d'autres oxydants photochimiques dans la basse atmosphère
SRA	<u>S</u> tandard <u>R</u> adiation <u>A</u> tmo- sphere	Base de données atmosphériques pour le transfert radiatif
SW	<u>S</u> hort <u>W</u> ave radiation	Rayonnement de courte longueur d'onde, c-à-d rayonnement solaire (longueurs d'onde comprises entre 0.250 et 4 μm)
TIROS	<u>T</u> elevision <u>I</u> nfra <u>R</u> ed <u>O</u> bser- vation <u>S</u> atellite	Satellite d'observation télévision infrarouge
TOVS	<u>T</u> IROS <u>O</u> perational <u>V</u> ertical <u>S</u> ounder	Sondeur vertical opérationnel TIROS à bord des satellites de la NOAA
UNEP	<u>U</u> nited <u>N</u> ations <u>E</u> nvironment <u>P</u> rogramme	Programme environnemental des Nations Unies visant à promouvoir le développement durable
UV	<u>U</u> ltra- <u>V</u> iolet radiation	Rayonnement ultraviolet (longueurs d'onde comprises entre 0.250 et $\sim 0.400 \mu\text{m}$)
VIS	<u>V</u> ISible radiation	Rayonnement visible (longueurs d'onde comprises entre ~ 0.400 et $\sim 0.700 \mu\text{m}$)
VOC	<u>V</u> olatile <u>O</u> rganic <u>C</u> ompounds	Famille des composés organiques volatils
WMO	<u>W</u> orld <u>M</u> eteorological <u>O</u> rga- nization	Organisation mondiale météorologique

^aCf. Annexe B.

ANNEXE B

Quelques définitions et informations utiles

Abondance chimique

L'abondance chimique d'un constituant i dans l'atmosphère est souvent exprimée en terme de densité de particules n_i (particules m^{-3} ou particules cm^{-3}) ou en terme de densité de masse ρ_i (kg m^{-3} ou g cm^{-3}). Fréquemment, cependant, les concepts, sans dimension, de fraction molaire ou de rapport de mélange en volume

$$\mu_i = \frac{n_i}{n_a} \quad (\text{B.1})$$

(où n_a est la densité de particules de l'air) et de fraction massique ou de rapport de mélange en masse

$$\tilde{\mu}_i = \frac{\rho_i}{\rho_a} \quad (\text{B.2})$$

(où ρ_a est la densité de masse de l'air) sont utilisés. Les abondances sont exprimées en parties par million (ppm), parties par milliard (ppb), et parties par trillion (ppt) en volume (v) ou en masse (m), ce qui correspond à des rapports de mélange de 10^{-6} , 10^{-9} , et 10^{-12} , respectivement. La densité du nombre de particules intégrée verticalement (exprimée, par exemple, en molécules m^{-2} ou en molécules cm^{-2}) est appelée une colonne. Dans le cas de l'ozone, elle est habituellement exprimée en unités Dobson (DU). Un DU correspond à 2.687×10^{16} molécules par cm^2 , ce qui représente une épaisseur de 0.01 mm, dans les conditions normales de température et de pression ($T = 0^\circ\text{C}$ (ou 273 K) et $P = 101325 \text{ Pa}$).

Rayonnement actif pour la photosynthèse

Le PAR (en anglais, Photosynthetically Active Radiation, rayonnement actif pour la photosynthèse) est la partie du rayonnement solaire pratiquement équivalente à la par-

tie visible du spectre solaire. Son domaine de longueurs d'onde s'étend de 0.380 à 0.710 μm , ou pour certains auteurs 0.400-0.700 μm . Ce rayonnement est mesuré comme le flux de photons photosynthétiques (« PPF ») ($\text{quanta m}^{-2} \text{s}^{-1}$) ou l'éclairement photosynthétique (« PI ») (W m^{-2}) pour la gamme de longueurs d'onde : 0.380-0.710 μm ou 0.400-0.700 μm . Le flux de photons est la quantité de photons reçue par unité de temps et de surface plane. Il s'exprime en quanta d'énergie électromagnétique par mètre carré par seconde ou en moles de photons par mètre carré par seconde ($\text{q m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ou $\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$). Rappelons que le photon ou quantum est la plus petite particule discrète d'énergie électromagnétique dont l'énergie peut être exprimée comme

$$E = h\nu \quad [\text{J}] \quad (\text{B.3})$$

où

h ($=6.626 \times 10^{-34} \text{J s}$) est la constante de Planck,

$\nu = c/\lambda$ est la fréquence [s^{-1}],

c , la vitesse de la lumière [m s^{-1}] et

λ la longueur d'onde [m].

Le facteur de conversion du PAR ($\mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$) au PAR (W m^{-2}) est environ 4.55 $\mu\text{mol J}^{-1}$ (Ross, 1981; Goudriaan et van Laar, 1994).

L'indice de surface de feuille

L'indice de surface de feuille, noté « LAI » (pour Leaf Area Index), est un indice permettant de quantifier le feuillage. Il représente la quantité de surface de feuille par surface au sol. Les unités sont $\text{m}_{\text{feuille}}^2 \text{m}_{\text{sol}}^{-2}$.

Humidité relative, RH

L'humidité relative de l'air est liée à la tension de vapeur par :

$$RH = 100 \frac{e_{air}}{e_{sat}} \quad [\%] \quad (\text{B.4})$$

où

e_{air} est la tension de vapeur ou pression partielle de vapeur d'eau dans l'air [hPa] et

e_{sat} est la tension de vapeur à saturation [hPa]. Elle est donnée par Goudriaan et van Laar (1994) :

$$e_{sat} = 6.107 \exp \frac{17.4 T_{air}}{239 + T_{air}} \quad [\text{hPa}] \quad (\text{B.5})$$

où T_{air} est la température de l'air [$^{\circ}\text{C}$].

Diffusivité D_{th} et conductivité C_{th} thermique moléculaire de l'air

La diffusivité, ou coefficient de diffusion, thermique moléculaire est fonction de la conductivité thermique de l'air et du produit de la densité de l'air et de sa chaleur massique à pression constante ρc_p ($\sim 1200 \text{ J m}^{-2} \text{ K}^{-1}$ à 293.15 K) (Anderson, 1989; Monteith et Unsworth, 1990) :

$$D_{th} = \frac{C_{th}}{\rho c_p} \quad [\text{m}^2 \text{ s}^{-1}] \quad (\text{B.6})$$

où

C_{th} est la conductivité thermique moléculaire de l'air [$\text{W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$] et vaut (NOAA, 1976; Hilsenrath et al., 1960) :

$$C_{th} = \frac{2.64638 \times 10^{-3} T_{air}^{3/2}}{T_{air} + (245.4 \times 10^{-12}/T_{air})} \quad [\text{W m}^{-1} \text{ K}^{-1}] \quad (\text{B.7})$$

où T_{air} est la température de l'air [K].

Viscosité cinétique ν_c et dynamique ν_d de l'air

Le coefficient de viscosité dynamique ν_d est défini comme un coefficient de friction interne. Cette friction se développe lorsque différentes régions d'un gaz se meuvent les unes par rapport aux autres (NOAA, 1976; Hilsenrath et al., 1960). Son expression est basée sur la théorie cinétique des gaz mais les constantes sont dérivées de l'expérience :

$$\nu_d = \frac{a_1 T_{air}^{3/2}}{T_{air} + Su} \quad [\text{kg m}^{-1} \text{ s}^{-1} \text{ ou Pa s}] \quad (\text{B.8})$$

où

a_1 est une constante ($= 1.458 \times 10^{-6} \text{ kg m}^{-1} \text{ s}^{-1} \text{ K}^{-1/2}$)

T_{air} est la température de l'air [K] et

Su est la constante de Sutherland (110.4 K).

La viscosité cinétique ν_c est définie comme le rapport de la viscosité dynamique à la densité de l'air ρ (NOAA, 1976; Nobel, 1983; Barrow, 1988; Anderson, 1989; Monteith et Unsworth, 1990) :

$$\nu_c = \frac{\nu_d}{\rho} \quad [\text{m}^2 \text{ s}^{-1}] \quad (\text{B.9})$$

Diffusivité de la vapeur d'eau dans l'air, D_{wv}

Le coefficient de diffusion de la vapeur d'eau dans l'air est donné par (Fuller et al., 1966; Nobel, 1983; Barrow, 1988) :

$$D_{wv} = b_1 \frac{10^{-11} T_{air}^{1.75} \sqrt{\frac{1}{M_{air}} + \frac{1}{M_{wv}}}}{p_{tot} (D_{air,v}^{1/3} + D_{wv,v}^{1/3})^2} \quad [m^2 s^{-1}] \quad (B.10)$$

où

T_{air} est la température de l'air [K],

M_{air} est la masse molaire de l'air (= 28.9644 g mol⁻¹) (Dufour et van Mieghem, 1975; Barrow, 1988),

M_{wv} est la masse molaire de l'eau (= 18.0153 g mol⁻¹) (Dufour et van Mieghem, 1975; Barrow, 1988),

p_{tot} est la pression totale de l'air humide [Pa],

$D_{air,v}$ (= 20.1 × 10⁻⁶ m³) et $D_{wv,v}$ (= 12.7 × 10⁻⁶ m³) ont les dimensions d'un volume et caractérisent la diffusion moléculaire l'air sec et de la vapeur d'eau, respectivement (Fuller et al., 1966, 1969) et

b_1 est une constante nécessaire pour obtenir les bonnes dimensions.

b_1 vaut 101325 Pa m⁴ g^{0.5} mol^{-0.5} s⁻¹ K^{-1.75}.

La productivité primaire nette

La productivité primaire nette (NPP) représente la quantité nette de carbone stockée annuellement sous forme de biomasse dans les tiges, les feuilles ou les racines des plantes. Elle est la différence entre la quantité de carbone assimilée par les feuilles pendant la photosynthèse et la quantité de carbone consommée par la respiration des feuilles, des tiges et des racines. Elle est une mesure quantitative de la croissance des plantes et de l'absorption du carbone.

Elle s'exprime en g_{ms} (de matière sèche) m⁻² an⁻¹.

Données par satellite

La télédétection par satellite est devenue une manière utile et nécessaire d'observer la Terre et son atmosphère. Il existe deux types de satellite :

- les satellites géostationnaires : ils apparaissent immobiles au-dessus d'un point de la Terre. Ils doivent donc avoir une vitesse angulaire égale à celle de la rotation de la Terre et décrire dans le sens direct une orbite circulaire dans un plan équatorial. Pour présenter ces caractéristiques, leur altitude doit être d'environ 36000 km ;
- les satellites à défilement (ou à orbite polaire) : contrairement aux précédents, ils ne demeurent pas au-dessus du même point de la Terre, mais se déplacent par rapport à la surface terrestre qui défile sous eux. Pour l'observation de la Terre, ils ont le plus souvent des orbites circulaires ou peu excentriques. Leur altitude est inférieure, en général, à 2000 km ; leur période est relativement courte, inférieure à deux heures.

Les données acquises par les capteurs présents sur le satellite sont des mesures d'énergie dans le spectre électromagnétique. Cette énergie peut avoir sa source dans le spectre solaire (0.25-4 μm) ou terrestre (> 3.5 μm). Le spectre solaire est le plus

fréquemment utilisé. La quantité d'énergie reçue par la surface de la Terre dépend de facteurs astronomiques, météorologiques et topographiques. L'heure, la latitude et la date détermine la hauteur du Soleil au-dessus de l'horizon terrestre et donc l'angle d'incidence des rayons solaires ainsi que la distance sur laquelle ils traversent l'atmosphère. Le rayonnement solaire qui atteint la surface terrestre est atténué par les constituants atmosphériques. Ceux-ci absorbent l'énergie dans certaines bandes de longueurs d'onde. C'est le cas de l'ozone autour de $9.3 \mu\text{m}$, du gaz carbonique autour de 1.6 , 2.0 et surtout 2.75 et $4.25 \mu\text{m}$ et de la vapeur d'eau autour de 0.92 , 1.1 , 1.4 , 1.5 et $2.6 \mu\text{m}$. Ces bandes d'absorption délimitent les fenêtres atmosphériques dans lesquelles la transmission atmosphérique des ondes composant le spectre électromagnétique est suffisante.

Outre ces phénomènes d'absorption, les molécules et les aérosols (y compris les nuages) provoquent des phénomènes de diffusion.

Le rayonnement qui atteint la surface terrestre est soumis à l'absorption, à la réflexion et à la diffusion. Les parts respectives de chacun de ces phénomènes dans les différentes parties du spectre électromagnétique dépendent du milieu. Leur mesure constitue donc par conséquent le fondement de la télédétection qui utilise le rayonnement solaire.

Les différents milieux terrestres n'absorbent pas également l'énergie dans toutes les bandes spectrales : la chlorophylle des plantes, par exemple, absorbe l'énergie dans les bandes spectrales centrées sur 440 et 665 nm .

Le capteur mesure, dans des bandes spectrales données, l'énergie réfléchie ou diffusée vers le satellite, après qu'elle ait une nouvelle fois traversé l'atmosphère du sol au satellite et subi ses divers effets. En outre, la mesure intègre aussi l'énergie rétrodiffusée (fraction de l'énergie diffusée qui repart vers l'espace) par l'atmosphère.

La télédétection utilise aussi le rayonnement propre à la Terre. Ce rayonnement infrarouge (thermique) se produit dans les longueurs d'onde supérieures à $3.5 \mu\text{m}$. Presque entièrement distinct du rayonnement solaire direct, il dépend de la température et de l'émissivité de la surface et n'est que partiellement transmis par l'atmosphère incomplètement transparente dans cette partie du spectre, même dans les fenêtres atmosphériques (Verger, 1982).

ANNEXE C

Valeurs des paramètres et profil de la végétation utilisés dans le modèle MOHYCAN

Le Tableau C.1 donne les valeurs des différents paramètres utilisés dans le modèle MOHYCAN pour les 7 types de végétation, qui sont :

1. les résineux sempervirents,
2. les résineux à aiguilles caduques,
3. les feuillus sempervirents,
4. les feuillus à feuilles caduques,
5. les broussailles,
6. les herbes et
7. les cultures.

TAB. C.1: Valeurs par défaut des différents paramètres utilisés dans le modèle MOHYCAN.

Paramètres de la feuille et de la canopée		Types de végétation						
Noms	Symbole	1	2	3	4	5	6	7
Longueur de la feuille ^{a,b} [m]	L_f	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.15	0.15
Largeur de la feuille ^{a,b} [m]	l_f	0.005	0.005	0.05	0.05	0.01	0.01	0.02
Coefficient de diffusion de la feuille - PAR ^{c,d}	σ_f	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2
Coefficient de diffusion de la feuille - NIR ^{c,d}	σ_f	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8	0.8
Coefficient de réflexion de la canopée - PAR ^{c,d}	$\rho_{can,diff}$	0.057	0.057	0.057	0.057	0.057	0.057	0.057
Coefficient de réflexion de la canopée - NIR ^{c,d}	$\rho_{can,diff}$	0.389	0.389	0.389	0.389	0.389	0.389	0.389
Facteur de « cluster » ^{a,b}		0.85	0.85	0.9	0.65	0.85	0.7	0.7
Emissivité de la feuille ^{e,f,g,h}	ε_f	0.96	0.96	0.96	0.96	0.96	0.96	0.96
Facteur pour le nombre de côtés de la feuille ^{a,g,1}	f_c	1.25	1.25	1.25	1.25	1	1.25	1.25
Résistance cuticulaire ^{a,i,j,k} [s m ⁻¹]	r_c	10000	10000	10000	10000	20000	5000	5000
Résistance stomatique maximale ^{a,b,i,j,k} [s m ⁻¹]	$r_{s,max}$	500	500	200	200	500	200	200
Résistance stomatique minimale ^{a,b,i,j,k} [s m ⁻¹]	$r_{s,min}$	100	100	50	50	100	50	50
Coefficient empirique ^{l,m,n,o} [J m ⁻³]	a_s	2870	870	2336	9802	52847	2582	7459
Coefficient empirique ^{l,m,n,o} [W m ⁻²]	b_s	3.70	3.70	0.0145	10.06	4.50	1.09	5.70
Coefficient empirique ^{l,m,n,o} [s m ⁻¹]	c_s	233	233	154	180	447	110	25
Température inférieure ^{l,m} [K]	T_l	268	268	273	268	268	268	268
Température optimale ^{l,m} [K]	T_o	283	283	303	290	290	290	300
Température supérieure ^{l,m} [K]	T_h	316	316	318	316	315	315	315
Coefficient empirique ^{m,n} [mbar ⁻¹]	d_s	0.0310	0.0310	0.0273	0.0357	0.0308	0.0238	0
Coefficient empirique ^{m,n} [m]	ψ_1	-200	-200	-100	-190	-196	-120	-100
Coefficient empirique ^{m,n} [m]	ψ_2	-250	-250	-500	-250	-340	-230	-200
Hauteur de la canopée ^a [m]	h_c	24	24	32	24	1	0.5	1
Profondeur de la canopée ^a [m]	p_c	19.2	19.2	24	18	1	0.5	1

Paramètres de la feuille et de la canopée		Types de végétation						
Noms	Symbole	1	2	3	4	5	6	7
Indice de surface de feuille (LAI) ^{a,b} [$m^2_{\text{feuille}} m^{-2}_{\text{sol}}$]	L_t	5	3	6	5	5	5	5
Densité foliaire ^{q,p} [$g_{\text{feuille}} m^{-2}_{\text{sol}}$]	D_f	700	375	750	400	525	50	625
Coefficient d'atténuation de la vitesse du vent ^{q,r,s,t,u,v,w,x}	$\overline{at_u}$	1.0	1.0	1.5	1.5	1.0	2.0	2.5

^acommunication personnelle de A. Guenther et de son équipe, ^bLamb et al. (1993), ^cGoudriaan et van Laar (1994), ^dLeuning et al. (1995), ^eLamb et al. (1993), ^fRoss (1981), ^gCampbell (1981), ^hSalisbury (1996), ⁱNobel (1983), ^jLarcher (1980), ^kLarcher (1995), ^lSellers et Dorman (1987), ^mSellers et al. (1989), ⁿDorman et Sellers (1989), ^oXue et al. (1991), ^pGuenther et al. (1995), ^qCionco (1972), ^rDenmead (1976), ^sCionco (1978), ^tCampbell (1981), ^uWilson et al. (1982), ^vRaupach (1988), ^wBaldocchi (1997), ^xParker (1995).

¹ $f_c = 1$ pour les feuilles dites « hypostomateuse » (les stomates ne sont présents que sur un seul côté de la feuille),

$f_c = 2$ pour les feuilles dites « amphistomateuse » (les stomates sont présents sur les 2 côtés de la feuille) et

$f_c = 1.25$ pour les feuilles dites « hypostomateuse » avec une certaine transpiration à travers la cuticule.

La Figure C.1 illustre les différents profils de l'indice de surface de feuille (LAI) et de la densité foliaire pour chacun des types de végétation utilisés dans le modèle MOHYCAN, d'après *Rauner (1976); Meyers et Paw U (1986); Baldocchi et Meyers (1988); Baldocchi (1989); Vose et Swank (1990); Pierce et Waldruff (1991b,a); Lamb et al. (1993); Parker (1995)*. Les fractions sont déterminées en fonction du nombre de couches dans la canopée. Les profils obtenus pour une décomposition en 16, 8, 4 et 2 couches sont illustrés.

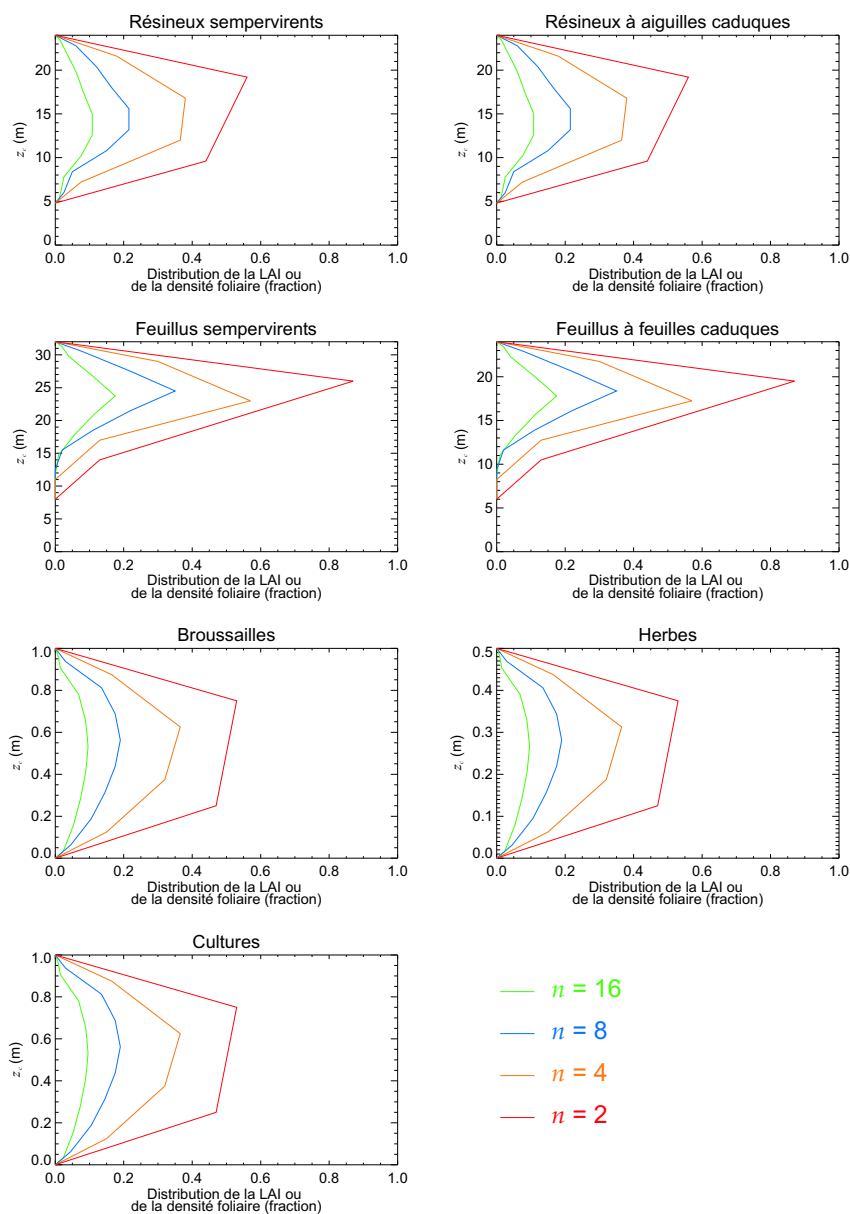


FIG. C.1: Profils de l'indice de surface de feuille (LAI) et de la densité foliaire pour chaque type de végétation utilisé dans le modèle MOHYCAN.

ANNEXE D

Détermination de la convection dans l'échange de chaleur et de vapeur d'eau

Couche limite d'air autour de la feuille

Les interactions dues aux frottements entre l'air en mouvement relatif et la feuille conduisent à la formation d'une couche limite d'air, adhérente à la feuille, à travers laquelle de la chaleur et de la masse sont échangées. La vitesse du vent affecte l'épaisseur de cette couche limite, et donc aussi l'échange de chaleur et finalement la température de la plante. La couche limite d'air est une région dominée par le cisaillement à la surface de la feuille. Adjacente à la feuille, la sous-couche d'air est laminaire (Figure D.1) et le mouvement est parallèle à la surface de la feuille. L'air en mouvement est arrêté à la surface et sa vitesse augmente lorsque sa distance à la surface augmente. La diffusion (normale à la surface de la feuille) est contrôlée par le mouvement des molécules dans la sous-couche laminaire. Plus loin de la surface, particulièrement en aval de la feuille, la couche limite devient turbulente (Figure D.1) et les mouvements de chaleur et de gaz sont caractérisés par des tourbillons. Au lieu d'essayer de décrire les processus de transfert dans les parties laminaire et turbulente, nous utiliserons une couche limite d'épaisseur effective δ_b , moyennée sur l'ensemble de la surface de la feuille. Les principaux facteurs affectant δ_b sont la vitesse du vent et la dimension de la feuille. Basée sur la théorie hydrodynamique et sur des études sur terrain, cette épaisseur est donnée par (Nobel, 1983) :

$$\delta_b = 4.0 \times 10^{-3} \sqrt{\frac{d_f}{u}} \quad [\text{m}] \quad (\text{D.1})$$

où

d_f est la dimension de la feuille [m] (Eq.: 2.43) et
 u est la vitesse du vent [m s^{-1}].

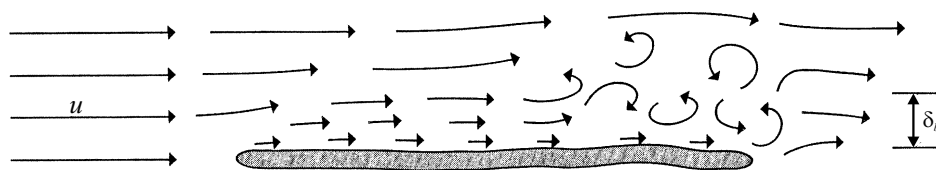


FIG. D.1: Illustration schématique de la circulation de l'air autour d'une feuille plane, indiquant la sous-couche laminaire (petites flèches), la région turbulente et l'épaisseur effective de la couche limite d'air δ_b . Les flèches indiquent la vitesse relative et la direction de l'air en mouvement (Nobel, 1983).

Détermination de la nature de la convection

L'analyse de la convection est grandement simplifiée par l'introduction de quantités sans dimension (Nobel, 1983; Monteith et Unsworth, 1990; Leuning et al., 1995). Le nombre de Nusselt Nu est une quantité sans dimension qui, selon la nature de la convection, nous permet de définir les résistances (1) $r_{b,h}$ (Eq.: 2.42) à l'échange de chaleur due à la couche limite d'air autour de la feuille et (2) $r_{b,v}$ (Eq.: 2.45) à l'échange de vapeur d'eau à travers cette couche limite. Ces résistances sont des paramètres importants pour déterminer les termes de flux de chaleur sensible (Q_{SH}) et de flux de chaleur latente (Q_{LH}) dans le bilan énergétique au niveau de la feuille lors du calcul de la température de la feuille.

Les nombres de Reynolds et de Grashof, autres nombres sans dimension, sont utilisés pour déterminer le type de convection (libre ou forcée) dominant (Nobel, 1983; Monteith et Unsworth, 1990; Leuning et al., 1995).

Le nombre de Reynolds Re décrit les caractéristiques de l'écoulement (laminaire ou turbulent). Cette quantité indique le rapport des forces inertielles (dues à la quantité de mouvement, qui tendent à garder les choses en mouvement) aux forces visqueuses (dues aux interactions de friction, qui tendent à freiner le mouvement). Il vaut :

$$Re = \frac{ud_f}{\nu_c} \quad (D.2)$$

où

ν_c est la viscosité cinétique de l'air¹ [$m^2 s^{-1}$],

u est la vitesse du vent [$m s^{-1}$] et

d_f caractérise la dimension de la feuille [m].

Pour des faibles valeurs de Re , les forces visqueuses prévalent sur les forces d'inertie et l'écoulement tend à être laminaire, tandis que pour des valeurs élevées de Re , l'écoulement devient turbulent en raison de la dominance des forces d'inertie. Pour des vitesses de vent très faibles et de grandes différences entre la température de la feuille et la température de l'air ($T_f - T_{air}$), la convection libre domine la convection forcée pour de grands objets. Dans de telles conditions, le nombre de Reynolds devrait être

¹Cf. Annexe B.

remplacé par le nombre de Grashof qui tient compte des forces de flottabilité (*Nobel, 1983*).

Le nombre de Grashof Gr indique la tendance d'une particule d'air à monter ou à descendre et décrit donc la tendance à la convection libre. En fait, Gr représente le rapport du produit de la flottabilité et des forces inertielles au carré des forces visqueuses (*Nobel, 1983; Monteith et Unsworth, 1990; Leuning et al., 1995*), c-à-d

$$Gr = \frac{g\beta_{th}\Delta T d_f^3}{\nu_c^2} \quad (D.3)$$

où

g est l'accélération gravitationnelle,

β_{th} est le coefficient d'expansion thermique volumique [K^{-1}], c-à-d le changement fractionnel de volume avec la température à pression constante. Pour un gaz parfait tel que l'air, $\beta_{th} = 1/T_{air}$.

ΔT est la différence entre la température de la feuille et la température de l'air ($T_f - T_{air}$) [K].

Re^2/Gr est égal au rapport des forces inertielles aux forces de flottabilité. Donc, Re^2/Gr reflète le rapport de la convection forcée à la convection libre (*Nobel, 1983; Monteith et Unsworth, 1990*). Des expériences montrent que la convection forcée domine lorsque $Re^2/Gr > 10$ tandis que la convection libre prévaut lorsque $Re^2/Gr < 0.1$. Dans la région intermédiaire, la convection est dite mixte, c-à-d que les deux convections, forcée et libre, doivent être considérées, et plus particulièrement lorsque Re^2/Gr est proche de 1 (*Nobel, 1983; Monteith et Unsworth, 1990*).

$$Nu = \begin{cases} 0.5 Gr^{0.25} & \text{si } Re^2/Gr < 0.1 \text{ convection libre (Monteith et Unsworth, 1990)} \\ \frac{d_f}{\delta_b} & \text{si } Re^2/Gr > 10 \text{ convection forcée, } Nu \text{ dépend alors du vent} \\ & \text{(Nobel, 1983; Monteith et Unsworth, 1990)} \end{cases} \quad (D.4)$$

où

d_f est la dimension de la feuille [m] et

δ_b est l'épaisseur de la couche limite d'air autour de la feuille [m], donnée par l'équation D.1.

Dans le cas de la convection mixte, on a $0.1 < Re^2/Gr < 10$ et le nombre de Nusselt Nu est interpolé logarithmiquement entre les deux fonctions définies plus haut (Eq.: D.4).

Le nombre de Sherwood dans l'équation 2.45 est donné par (*Monteith et Unsworth, 1990; Leuning et al., 1995*) :

$$Sh_{wv} = Nu \left(\frac{D_{th}}{D_{wv}} \right)^{0.33} \quad (D.5)$$

où

Nu est le nombre de Nusselt (Eq.: D.4),

D_{th} est la diffusivité thermique moléculaire de l'air [$m^2 s^{-1}$] (Eq.: B.6),

D_{wv} est la diffusivité de la vapeur d'eau dans l'air [$m^2 s^{-1}$] (Eq.: B.10)

Bibliographie

- Anderson, H., *A Physicist's Desk Reference - The Second Edition of Physics Vade Mecum* (pp.356), Second ed., American Institute of Physics, New York, 1989.
- Andersson-Sköld, Y., et D. Simpson, Secondary organic aerosol formation in the northern Europe : A model study, *Journal of Geophysical Research*, 106, 7357–7374, 2001.
- Arya, P., *Introduction to micrometeorology* (pp.307), Academic Press, INC., San Diego - New York - Berkeley - Boston - London - Sydney - Tokyo - Toronto, 1988.
- Atkinson, R., Gas-phase tropospheric chemistry of organic compounds : A review, *Atmospheric Environment*, 24A, 1–41, 1990.
- Atkinson, R., Gas-phase tropospheric chemistry of volatile organic compounds : 1. Alkanes and alkenes, *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 26, 217, 1997.
- Atkinson, R., D. Baulch, R. Cox, R. Hampson, J. Kerr, M. Rossi, et J. Troe, Evaluated kinetic, photochemical, and heterogeneous data for atmospheric chemistry, Supplement V. IUPAC subcommittee on gas kinetic data evaluation for atmospheric chemistry, *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 26, 521, 1997.
- Atkinson, R., D. Baulch, R. Cox, J. Crowley, R. Hampson, J. Kerr, M. Rossi, et J. Troe, Summary of evaluated kinetic and photochemical data for atmospheric chemistry, IUPAC subcommittee on gas kinetic data evaluation for atmospheric chemistry, 2003, available on the subcommittee's website at <http://www.iupac-kinetic.ch.cam.ac.uk>.
- Baker, J., J. Norman, et W. Bland, Field-scale application of flux measurement by conditional sampling, *Agricultural and Forest Meteorology*, 62, 31–52, 1992.
- Baldocchi, D., Turbulent transfer in a deciduous forest, *Tree Physiology*, 5, 357–377, 1989.

- Baldocchi, D., Flux footprint within and over forest canopies, *Boundary-Layer Meteorology*, 85, 273–292, 1997.
- Baldocchi, D., et T. Meyers, Turbulence structure in a deciduous forest, *Boundary-Layer Meteorology*, 43, 345–364, 1988.
- Baldocchi, D., D. Matt, B. Hutchison, et R. McMillen, Solar radiation within an oak-hickory forest : an evaluation of the extinction coefficients for several radiation components during fully-leafed and leafless periods, *Agricultural and Forest Meteorology*, 32, 307–322, 1984.
- Baldocchi, D., S. Vema, N. Rosenberg, B. Blad, et J. Specht, Microclimate-plant architectural interactions : influence of leaf width on the mass and energy exchange of a soybean canopy, *Agricultural and Forest Meteorology*, 35, 1–20, 1985.
- Barrow, G., *Physical Chemistry (pp.859)*, International Edition, McGraw-Hill Book Co, International, 1988.
- Bowling, D., A. Turnispeed, A. Delany, D. Baldocchi, J. Greenberg, et R. Monson, The use of relaxed eddy accumulation to measure biosphere-atmosphere exchange of isoprene and other biological trace gases, *Oecologia*, 116, 306–315, 1998.
- Box, E., Foliar biomass : Data base of the international biological program and other sources, in *Atmospheric Biogenic Hydrocarbons*, edited by J. Bulfalini et R. Arnts, pp. 121–148, Butterworth, Stoneham, Mass., 1981.
- Brasseur, G., D. Hauglustaine, S. Walters, P. Rasch, J.-F. Müller, C. Granier, et X. Tie, MOZART, a global chemical transport model for ozone and related chemical tracers : 1. Model description, *Journal of Geophysical Research*, 103, 28,265–28,289, 1998.
- Brasseur, G., J. Orlando, et G. Tyndall, *Atmospheric Chemistry and Global Change (pp.654)*, Oxford University Press, New York - Oxford, 1999.
- Brunt, D., Notes on radiation in the atmosphere I, *Quarterly Journal of Royal Meteorological Society*, 58, 389–420, 1932.
- Burton, A., K. Pregitzer, et D. Reed, Leaf area and foliar biomass relationship in northern hardwood forest located along an 800 km acid deposition gradient, *Forest Sciences International*, 37, 1041–1059, 1991.
- Businger, J., Aerodynamics of Vegetated Surfaces, in *Heat and Mass Transfer in the Biosphere*, edited by D. de Vries et N. Afgan, John Wiley and Sons, New York - London - Sydney - Toronto, 1975.
- Businger, J., et S. Oncley, Flux measurement with conditional sampling, *Journal of Atmospheric Oceanic Technology*, 7, 349–352, 1990.
- Buzorius, G., U. Rannik, J. Mäkelä, T. Vesala, et M. Kulmala, Vertical aerosol particle fluxes measured by eddy covariance technique using corresponding condensational particle counter, *Journal of Aerosol Science*, 29, 157–171, 1998.

- Campbell, G., Fundamentals of Radiation and Temperature Relations, in *Physiological Plant Ecology I* (pp.625), edited by O. Lange, P. Nobel, C. Osmond, et H. Ziegler, pp. 11–40, Springer-Verlag, Berlin - Heidelberg - New York, 1981.
- Cao, X.-L., et N. Hewitt, The Sampling and Analysis of Volatile Organic Compounds in the Atmosphere, in *Reactive Hydrocarbons in the Atmosphere* (pp.322), edited by N. Hewitt, pp. 119–157, Academic Press, San Diego - London - Boston - New York - Sydney - Tokyo - Toronto, 1999.
- Capouet, M., J. Peeters, B. Nozière, et J.-F. Müller, α -pinene oxidation by OH : Simulation of laboratory experiments, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2004, submitted.
- Chabrilat, S., Modélisation du changement global dans l'atmosphère moyenne, Ph.D. thesis, Université Libre de Bruxelles, 2001.
- Chameides, W., R. Lindsay, J. Richardson, et C. Kiang, The role of biogenic hydrocarbons in urban photochemical smog : Atlanta as a case study, *Sciences*, 241, 1473–1475, 1988.
- Chang, J., R. Brost, I. Isaksen, S. Madronich, P. Middleton, W. Stockwell, et C. Walcek, A three-dimensional eulerian acid deposition model : Physical concepts and formulation, *Journal of Geophysical Research*, 92, 14,681–14,700, 1987.
- Chapman, S., A theory of upper-atmospheric ozone, *Memoirs of the Royal Meteorological Society*, 3, 103–125, 1930.
- Charlson, R., S. Schwartz, J. Hales, R. Cess, J. Coakley, J. Hansen, et D. Hofmann, Climate forcing by anthropogenic aerosols, *Sciences*, 255, 424–430, 1992.
- Chen, X., D. Hulbert, et P. Shepson, Measurement of the organic nitrate yield from OH reaction with isoprene, *Journal of Geophysical Research*, 103, 25,563–25,568, 1998.
- Choudhury, B., Simulating the effects of weather variables and soil water potential on a corn canopy temperature, *Agricultural Meteorology*, 29, 169–182, 1983.
- Cionco, R., A Mathematical Model for Air Flow in a Vegetative Canopy, *Journal of Applied Meteorology*, 4, 517–522, 1965.
- Cionco, R., A wind-profile index for canopy flow, *Boundary-Layer Meteorology*, 3, 255–263, 1972.
- Cionco, R., Analysis of canopy index values for various canopy densities, *Boundary-Layer Meteorology*, 15, 81–93, 1978.
- Costen, R., G. Tennille, et J. Levine, Cloud pumping in a one-dimensional model, *Journal of Geophysical Research*, 93, 15,941–15,954, 1988.
- Cowan, I., Mass, heat and momentum exchange between stands of plants and their atmospheric environment, *Quarterly Journal of Royal Meteorological Society*, 94, 523–544, 1968.

- Crutzen, P., The influence of nitrogen oxides on the atmospheric ozone content, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 96, 320–325, 1970.
- Crutzen, P., The role of NO and NO₂ in the chemistry of the troposphere and the stratosphere, *Annual Review of Earth and Planetary Sciences*, 94, 523–544, 1979.
- De Moor, G., Les théories de la turbulence dans la couche-limite atmosphérique, *Cours et manuels 3*, Ministère des transports - Direction de la météorologie, Boulogne Billancourt, France, 1983.
- De Moraes, C., M. Mescher, et J. Tumlinson, Catterpillar-induced nocturnal plant volatile repel conspecific females, *Nature*, 401, 577–580, 2001.
- Dement, W., B. Tyson, et H. Money, Mechanism of monoterpene volatilization in *Salvia mellifera*, *Phytochemistry*, 14, 2555–2557, 1975.
- DeMore, W., S. Sander, D. Golden, R. Hampson, M. Kurylo, C. Howard, A. Ravishankara, C. Kolb, et M. Molina, *Chemical Kinetics and Photochemical Data for Use in Stratospheric Modeling*, Jet Propulsion Laboratory, California Institute of Technology, 1997, Evaluation No. 12, JPL Publ. 97-4.
- Denmead, O., Temperate Cereals, in *Vegetation and the Atmosphere II (pp.439)*, edited by J. Monteith, pp. 1–32, Academic Press INC., London, 1976.
- Derwent, R., Sources, Distributions, and Fates of VOCs in the Atmosphere, in *Volatile Organic Compounds in the Atmosphere (pp.140)*, edited by R. Hester et R. Harrison, pp. 1–15, The Royal Society of Chemistry, Cambridge, 1995.
- Desjardins, R., Description and evaluation of a sensible heat flux detector, *Boundary-Layer Meteorology*, 11, 147–154, 1977.
- Dickinson, R., Land surface processes and climate-surface albedos and energy balance, *Advances in Geophysics*, 25, 305–353, 1983.
- Dickinson, R., Modeling transpiration for three-dimensional global climate models, in *Climate Processes and Climate Sensitivity*, edited by J. Hansen et T. Takahaski, pp. 58–72, American Geophysical Union, Washington, DC, 1984.
- Dickinson, R., A. Henderson-Sellers, et P. Kennedy, Biosphere-Atmosphere Transfer Scheme (bats) Version 1e as Coupled to the NCAR Community Climate Model, *Technical Note NCAR/TN-387+STR*, NCAR, Boulder, CO, 1993.
- Dorman, J., et P. Sellers, A Global Climatology of Albedo, Roughness Length and Stomatal Resistance for Atmospheric General Circulation Models as Represented by the Simple Biophere Model (SiB), *Journal of Applied Meteorology*, 28, 833–855, 1989.
- Ducoudré, N., K. Laval, et A. Perrier, SECHIBA, a New Set of Parameterizations of the Hydrologic Exchanges at the Land-Atmosphere Interface within the LMD Atmospheric General Circulation Model, *American Meteorological Society*, 6, 248–273, 1993.

- Dufour, L., et J. van Mieghem, *Thermodynamique de l'Atmosphère (pp.278)*, J. Duculot Imprimerie, Belgique, 1975.
- Evans, R., D. Tingey, et M. Gumpertz, Interspecies variation in terpenoid emissions from Engelmann and Sitka spruce seedlings, *Forest Sciences International*, 31, 132–142, 1985.
- Fall, R., Biogenic Emissions of the Volatile Organic Compounds from Higher Plants, in *Reactive Hydrocarbons in the Atmosphere (pp.322)*, edited by N. Hewitt, pp. 41–96, Academic Press, San Diego - London - Boston - New York - Sydney - Tokyo - Toronto, 1999.
- Fall, R., et R. Monson, Isoprene emission rate and intercellular isoprene concentration as influenced by stomatal distribution and conductance, *Plant Physiology*, 100, 987–992, 1992.
- Farman, J., B. Gardiner, et J. Shanklin, Large losses of ozone in Antarctica reveal seasonal ClO_x/NO_x interaction, *Nature*, 315, 207–210, 1985.
- Fehsenfeld, F., J. Calvert, P. Goldan, A. Guenther, N. Hewitt, B. Lamb, S. Liu, M. Trainer, H. Westberg, et P. Zimmerman, Emissions of volatile organic compounds from vegetation and the implications for atmospheric chemistry, *Global Biogeochemical Cycles*, 6, 389–430, 1992.
- Fuentes, J., D. Wang, G. Den Hartog, H. Neumann, T. Dann, et K. Puckett, Modelled and field measurements of biogenic hydrocarbon emissions from a Canadian deciduous forest, *Atmospheric Environment*, 29, 3003–3017, 1995.
- Fuentes, J., M. Lerdau, R. Atkinson, D. Baldocchi, J. Bottenheim, P. Ciccioli, B. Lamb, C. Geron, A. Guenther, T. Sharkey, et W. Stockwell, Biogenic Hydrocarbons in the Atmospheric Boundary Layer : A Review, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 81, 1537–1575, 2000.
- Fuller, E., P. Schettler, et J. Giddings, A new method for prediction of binary gas-phase diffusion coefficients, *Industrial and Engineering Chemistry*, 58, 19–27, 1966.
- Fuller, E., K. Ensley, et J. Giddings, Diffusion of Halogenated Hydrocarbons in Helium - The Effect of Structure on Collision Cross Sections, *Journal of Physical Chemistry*, 73, 3679–3685, 1969.
- Gallo, K., *Monthly Global Vegetation Index from Gallo Bi-Weekly Experimental Calibrated GVI (April 1985-December 1990). Digital Raster Data on a 10-minute Cartesian Orthogonal Geodetic (lat/lon) 1080×2160 grid*, Global Ecosystems Database, National Oceanic Atmospheric Administration, Boulder, CO, Version 2.0, Disc B, National Geographical Data Center ed., 1992.
- Ganzeveld, L., Surface-Atmosphere Trace Gas and Aerosol Exchanges on the Global Scale, Ph.D. thesis, Universiteit Van Utrecht, 2001.

- Garratt, J., *The atmospheric boundary layer (pp.316)*, first paperback edition with correction ed., University Press, Cambridge, UK, 1994.
- Gates, D., *Biophysical Ecology (pp.249)*, Springer-Verlag, New York - Heidelberg - Berlin, 1985.
- Gates, D., et L. Papian, *Atlas of energy budget of plant leaves*, Academic Press, London - New York, 1971.
- Geron, C., D. Nie, R. Arnts, T. Sharkey, E. Singsaas, P. Vanderveer, A. Guenther, J. Sickles II, et T. Kleindienst, Biogenic isoprene emission : Model evaluation in a southeastern United States bottomland deciduous forest, *Journal of Geophysical Research*, 102, 18,889–18,901, 1997.
- Geron, C., R. Rasmussen, R. Arnts, et A. Guenther, A review and synthesis of monoterpene speciation from forests in the United States, *Atmospheric Environment*, 34, 1761–1781, 2000.
- Goldstein, A., M. Goulden, W. Munge, S. Wofsy, et C. Geron, Seasonal course of isoprene emissions from a midlatitude deciduous forest, *Journal of Geophysical Research*, 103, 31,045–31,056, 1998.
- Goudriaan, J., *Crop micrometeorology : a simulation study (pp.249)*, Pudoc, Wageningen ed., Center for Agricultural Publishing and Documentation, The Netherlands, 1977.
- Goudriaan, J., et H. van Laar, *Modelling Potential Crop Growth Processes : Textbook with Exercices (pp.239)*, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht - Boston - London, 1994.
- Granier, C., G. Pétron, J.-F. Müller, et G. Brasseur, The impact of natural and anthropogenic hydrocarbons on the tropospheric budget of carbon monoxide, *Atmospheric Environment*, 34, 5255–5270, 2000.
- Greenberg, J., A. Guenther, P. Harley, L. Otter, E. Veenendaal, C. Hewitt, A. James, et S. Owen, Eddy flux and leaf-level measurements of biogenic VOC emissions from mopane woodland of Botswana, *Journal of Geophysical Research*, 108, 8466, 2003, doi :10.1029/2002JD002317.
- Griffin, R., D. Cocker III, J. Seinfeld, et D. Dabdub, Estimate of global atmospheric organic aerosol from oxidation of biogenic hydrocarbons, *Geophysical Research Letters*, 26, 2721–2724, 1999.
- Guenther, A., Seasonal and spatial variations in natural volatile organic compound emissions, *Ecological Applications*, 7, 34–45, 1997.
- Guenther, A., Modeling Biogenic VOC Emissions to the Atmosphere, in *Reactive Hydrocarbons in the Atmosphere (pp.322)*, edited by N. Hewitt, pp. 97–118, Academic Press, San Diego - London - Boston - New York - Sydney - Tokyo - Toronto, 1999.

- Guenther, A., et A. Hills, Eddy covariance measurement of isoprene fluxes, *Journal of Geophysical Research*, 103, 13,145–13,152, 1998.
- Guenther, A., R. Monson, et R. Fall, Isoprene and monoterpene emission rate variability : Observations with eucalyptus and emission rate algorithm development, *Journal of Geophysical Research*, 96, 10,799–10,808, 1991.
- Guenther, A., P. Zimmerman, et P. Harley, Isoprene and Monoterpene Emission Rate Variability : Model Evaluations and Sensitivity Analyses, *Journal of Geophysical Research*, 98, 12,609–12,617, 1993.
- Guenther, A., P. Zimmerman, et M. Wildermuth, Natural volatile organic compound emission rate estimates for U.S. woodland landscapes, *Atmospheric Environment*, 28, 1197–1210, 1994.
- Guenther, A., N. Hewitt, D. Erickson, R. Fall, C. Geron, T. Graedel, P. Harley, L. Klinger, M. Lerdau, W. McKay, T. Pierce, B. Scholes, R. Steinbrecher, R. Tallamraju, et P. Zimmerman, A global model of natural volatile organic compound emissions, *Journal of Geophysical Research*, 100, 8873–8892, 1995.
- Guenther, A., B. Baugh, K. Davis, G. Hampton, P. Harley, L. Klinger, P. Zimmerman, E. Allwine, S. Dilts, B. Lamb, H. Westberg, D. Baldocchi, C. Geron, et T. Pierce, Isoprene fluxes measured by enclosure, relaxed eddy accumulation, surface-layer gradient, mixed-layer gradient, and mass balance techniques, *Journal of Geophysical Research*, 101, 18,555–18,568, 1996.
- Guenther, A., B. Baugh, G. Brasseur, P. Harley, L. Klinger, D. Serça, et L. Vierling, Isoprene emission estimates and uncertainties for the Central African EXPRESSO study domain, *Journal of Geophysical Research*, 104, 30,625–30,639, 1999.
- Guenther, A., C. Geron, T. Pierce, B. Lamb, P. Harley, et R. Fall, Natural emissions of non-methane volatile organic compounds, carbon monoxide, and oxides of nitrogen from North America, *Atmospheric Environment*, 34, 2205–2230, 2000.
- Harley, P., A. Guenther, et P. Zimmerman, Effects of light, temperature and canopy position on net photosynthesis and isoprene emission from sweetgum (*Liquidambar styraciflua*) leaves, *Tree Physiology*, 16, 25–32, 1996.
- Harley, P., A. Guenther, et P. Zimmerman, Environmental controls over isoprene emission from sun and shade leaves in a mature white oak canopy, *Tree Physiology*, 17, 705–714, 1997.
- Harley, P., L. Otter, A. Guenther, et J. Greenberg, Micrometeorological and leaf-level measurements of isoprene emissions from a southern African Savanna, *Journal of Geophysical Research*, 108, 8468, 2003, doi.10.1029/2002JD002592.
- Hatfield, J., R. Reginato, et S. Idso, Comparison of Long-Wave Radiation Calculation Methods Over the United States, *Water Resources Research*, 19, 285–288, 1983.

- Haugen, D., Effects of sampling rates and averaging periods on meteorological measurements, in *Fourth Symposium on Meteorological Observations and Instrumentation*, American Meteorological Society, Denver, CO, 1978.
- Hauglustaine, D., G. Brasseur, S. Walters, P. Rasch, J.-F. Müller, L. Emmons, et M. Carroll, MOZART, a global chemical transport model for ozone and related chemical tracers : 2. Model results and evaluation, *Journal of Geophysical Research*, *103*, 28,291–28,335, 1998.
- Hedin, A., Extension of the MSIS thermosphere model in the middle and lower atmosphere, *Journal of Geophysical Research*, *96*, 1159–1172, 1991.
- Hewitt, N., X.-L. Cao, C. Boissard, et C. Duckham, Atmospheric VOCs from Natural Sources, in *Volatile Organic Compounds in the Atmosphere (pp.140)*, edited by R. Hester et R. Harrison, pp. 17–35, The Royal Society of Chemistry, Cambridge, 1995.
- Hilsenrath, J., H. Hoge, C. Beckett, J. Masi, W. Benedict, R. Nutall, L. Fano, Y. Touloukian, et H. Woolley, *Tables of Thermodynamic and Transport Properties of Air, Argon, Carbon Dioxide, Carbon Monoxide, Hydrogen, Nitrogen, Oxygen and Steam (pp.478)*, Pergamon Press, New York - Oxford - London - Paris, 1960.
- Holtslag, A., et A. Van Ulden, A Simple Scheme for Daytime Estimates of the Surface Fluxes from Routine Weather Data, *Journal of Climate and Applied Meteorology*, *22*, 517–529, 1983.
- Horowitz, L., S. Walters, D. Mauzerall, L. Emmons, P. Rasch, C. Granier, X. Tie, J.-F. Lamarque, M. Schultz, G. Tyndall, J. Orlando, et G. Brasseur, A global simulation of tropospheric ozone and related tracers : Description and evaluation of MOZART, version 2, *Journal of Geophysical Research*, *108*, 4784, 2003, doi.10.1029/2002JD002853.
- Houweling, S., F. Dentener, et J. Lelieveld, The impact of nonmethane hydrocarbon compounds on tropospheric photochemistry, *Journal of Geophysical Research*, *103*, 10,673–10,696, 1998.
- Hufy, A., *Introduction à la Climatologie (pp.542)*, De Boek Université, Bruxelles, Belgique, 2001.
- Idso, S., A Set of Equations for Full Spectrum and 8- to 14- μm and 10.5- to 12.5- μm Thermal Radiation From Cloudless Skies, *Water Resources Research*, *17*, 295–304, 1981.
- IPCC, *Third Assessment Report : Climate Change 2001*, Intergovernmental Panel on Climate Change, 2001.
- Iqbal, M., *An introduction to solar radiation*, Academic Press, Toronto, 1983.

- Isidorov, V., Non-methane hydrocarbons in the atmosphere of boreal forests : composition, emission rates, estimation of regional emission and photocatalytic transformation, *Ecological Bulletins*, 42, 71–76, 1992.
- Isidorov, V., I. Zenkevich, et B. Ioffe, Volatile organic compounds in the atmosphere of forests, *Atmospheric Environment*, 19, 1–8, 1985.
- James, A., S. Owen, J. Greenberg, E. Veenendaal, K. Mantlana, A. Guenther, L. Otter, W. Davies, et C. Hewitt, Effects of habitat and plant water status on VOC emissions from *Colophospermum mopane* in Subtropical Africa, *Journal of Geophysical Research*, 108, 2003, doi :10.1029/2002JD002314.
- Jarvis, P., The interpretation of the variations in leaf water potential and stomatal conductance found in canopies in the field, *Philosophical Transactions of the Royal Society of London Series B : Biological Sciences*, B, 593–610, 1976.
- Jarvis, P., G. James, et J. Landsberg, Coniferous Forest, in *Vegetation and the Atmosphere II (pp.439)*, edited by J. Monteith, pp. 171–240, Academic Press INC., London, 1976.
- Joseph, J., W. Wiscombe, et J. Weiman, The delta-Eddington Approximation for Radiative Flux Transfer, *Journal of Atmospheric Sciences*, 33, 2452–2459, 1976.
- Juuti, S., J. Arey, et R. Atkinson, Monoterpene emission rate measurements from a Monterey Pine, *Journal of Geophysical Research*, 95, 7515–7519, 1990.
- Kaimal, J., et J. Finnigan, *Atmospheric Boundary Layer Flows. Their Structure and Measurement (pp.289)*, Oxford University Press, New York, USA, 1994.
- Kaimal, J., et J. Gaynor, The Boulder Atmospheric Observatory, *Journal of Climate and Applied Meteorology*, 22, 863–880, 1983.
- Karl, T., A. Guenther, A. Jordan, R. Fall, et W. Lindinger, Eddy covariance measurement of biogenic oxygenated VOC emissions from hay harvesting, *Atmospheric Environment*, 35, 491–495, 2001.
- Kavouras, I., N. Mihalopoulos, et E. Stephanou, Formation of atmospheric particles from organic acids produced by forests, *Nature*, 395, 683–686, 1998.
- Kempf, K., E. Allwine, H. Westberg, C. Claiborn, et B. Lamb, Hydrocarbon emissions from spruce species using environmental chamber and branch enclosure methods, *Atmospheric Environment*, 30, 1381–1389, 1996.
- Kesselmeier, J., et M. Staudt, Biogenic Volatile Organic Compounds (VOC) : An Overview on Emission, Physiology and Ecology, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 33, 23–88, 1999.

- Kesselmeier, J., L. Schäfer, P. Ciccioli, E. Brancaleoni, A. Cecinato, M. Frattoni, P. Foster, V. Jacob, J. Denis, J. Fugit, L. Dutaur, et L. Torres, Emission of monoterpenes and isoprene from a mediterranean oak species *Quercus ilex* L. measured within the BEMA (Biogenic Emissions in the Mediterranean Area) project, *Atmospheric Environment*, 30, 1841–1850, 1996.
- Kockarts, G., *Aéronomie : Physique et chimie de l'atmosphère*, De Boek Université, Bruxelles, Belgique, 2000.
- Kulmala, M., A. Toivonen, J. Mäkelä, et A. Laaksonen, Analysis of the growth of nucleation mode particles observed in boreal forest, *Tellus*, 50B, 449–462, 1998.
- Kulmala, M., K. Hämeri, J. Mäkelä, P. Aalto, L. Pirjola, M. Väkevä, E. Nilson, I. Koponen, G. Buzorius, P. Keronen, U. Rannik, L. Laakso, T. Vesala, K. Bigg, W. Seidl, R. Forkel, T. Hoffmann, J. Spanke, R. Janson, M. Shimmo, H.-C. Hansson, C. O'Dowd, E. Becker, J. Paatero, K. Teinilä, R. Hillamo, Y. Viisanen, A. Laaksonen, E. Swietlicki, J. Salm, P. Hari, N. Altimir, et R. Weber, Biogenic aerosol formation in the boreal forest, *Boreal Environment Research*, 5, 279–297, 2000.
- Kuzma, J., et R. Fall, Leaf isoprene emission rate is dependent on leaf development and the level of isoprene synthase, *Plant Physiology*, 101, 435–440, 1993.
- Lamb, B., H. Westberg, et G. Allwine, Biogenic hydrocarbon emissions from deciduous and coniferous trees in the United States, *Journal of Geophysical Research*, 90, 2380–2390, 1985.
- Lamb, B., H. Westberg, et T. Pierce, Isoprene emission fluxes determined by an atmospheric tracer technique, *Atmospheric Environment*, 20, 1–8, 1986.
- Lamb, B., A. Guenther, D. Gay, et H. Westberg, A national inventory of biogenic hydrocarbon emissions, *Atmospheric Environment*, 21, 1695–1705, 1987.
- Lamb, B., D. Gay, et H. Westberg, A Biogenic Hydrocarbon Emission Inventory for The U.S.A. using a Simple Forest Canopy Model, *Atmospheric Environment*, 27A, 1673–1690, 1993.
- Larcher, W., *Physiological Plant Ecology (pp.303)*, Second ed., Springer-Verlag, New York - Heidelberg - Berlin, 1980.
- Larcher, W., *Physiological Plant Ecology (pp.506)*, Third ed., Springer-Verlag, Berlin - Heidelberg - New York - Barcelona - Budapest - Hong Kong - London - Milan - Paris - Tokyo, 1995.
- Leemans, R., et W. Cramer, The IIASA database for mean monthly values of temperature, precipitation and cloudiness of a global terrestrial grid, *Research Report RR-91-18*, International of Applied Systems Analyses, Laxenburg, 1991.

- Lehning, A., W. Zimmer, I. Zimmer, et J.-P. Schnitzler, Modelling of annual variations of oak (*Quercus robur* L.) isoprene synthase activity to predict isoprene emission rates, *Journal of Geophysical Research*, 106, 3157–3166, 2001.
- Lenschow, D., J. Mann, et L. Kristensen, How Long Is Long Enough When Measuring Fluxes and Other Turbulence Statistics ?, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 11, 661–673, 1994.
- Lerdau, M., Plant Function and Biogenic Terpene Emission, in *Trace Gas Emissions by Plants* (pp.365), edited by T. Sharkey, E. Holland, et H. Mooney, pp. 121–134, Academic Press, San Diego, 1991.
- Lerdau, M., A. Guenther, et R. Monson, Production and emission of volatile organic compounds by plants, *Bioscience*, 47, 373–383, 1997.
- Leuning, R., F. Kelliher, D. De Purry, et E.-D. Schulze, Leaf nitrogen, photosynthesis, conductance and transpiration : scaling from leaves to canopies, *Plant, Cell and Environment*, 1195, 1183–1200, 1995.
- Levy II, H., Normal atmosphere : Large radical and formaldehyde concentration predicted, *Sciences*, 173, 141–143, 1971.
- Levy II, H., Photochemistry of the Troposphere, in *Advances in Photochemistry*, pp. 369–524, J.W. Sons, New York, 1974.
- Lieth, H., Modeling The Primary Productivity of the World, in *Primary Productivity of the Biosphere*, edited by H. Lieth et R. Whittaker, chap. 12, Springer-Verlag, New York - Heidelberg - Berlin, 1975.
- Lindinger, W., A. Hansel, et A. Jordan, Proton-transfer-reaction mass spectrometry (PTR-MS) : online monitoring of volatile organic compounds at pptv levels, *Chemical Society Reviews*, 27, 347–354, 1998.
- Loreto, F., P. Ciccioli, E. Brancaleoni, A. Cecinato, M. Frattoni, et T. Sharkey, Different sources of reduced carbon contribute to form three classes of terpenoid emitted by *Quercus ilex* L. leaves, *Proceeding of National Academy of Sciences of the United States of America - Plant Biology*, 93, 9966–9969, 1996a.
- Loreto, F., P. Ciccioli, A. Cecinato, E. Brancaleoni, M. Frattoni, C. Fabozzi, et D. Tricoli, Evidence of the Photosynthetic Origin of Monoterpenes Emitted by *Quercus ilex* L. Leaves by C¹³ Labelling, *Plant Physiology*, 110, 1317–1322, 1996b.
- Loreto, F., P. Ciccioli, A. Cecinato, E. Brancaleoni, M. Frattoni, et D. Tricoli, Influence of Environmental Factors and Air Composition on the Emission of α -pinene from *Quercus ilex* Leaves, *Plant Physiology*, 110, 267–275, 1996c.
- Loreto, F., P. Nascetti, A. Graverini, et M. Mannozi, Emission and content of monoterpenes in intact and wounded needles of the Mediterranean pine *Pinus pinea*, *Functional Ecology*, 14, 589–595, 2000.

- Loveland, T., J. Merchant, D. Ohlen, et J. Brown, Development of a landcover characteristics database for the conterminous U.S., *Photogrammetric Engineering and Remote Sensing*, 57, 1453–1463, 1991.
- Madronich, S., et S. Flocke, The Role of Solar Radiation in the Atmospheric chemistry, in *Handbook of Environmental Chemistry*, edited by P. Boule, vol. 2 of *Part L Environmental Photochemistry*, pp. 1–26, Springer-Verlag, Berlin - Heidelberg, 1998.
- Massman, W., et A. Van Dijken, Water vapor transfer from a vegetated surface : a numerical study of bulk transfer coefficients and canopy resistances, *Boundary-Layer Meteorology*, 49, 295–307, 1989.
- Matveev, L., *Physics of the Atmosphere (pp.699)*, Israel Program for Scientific Translations, Jerusalem, 1967, translated from Russian.
- McNaughton, K., A 'Lagrangien' revision of the resistors in the two-layer model for calculating the energy budget of a plant canopy, *Boundary-Layer Meteorology*, 74, 261–288, 1995.
- Mégie, G., J. Bone, P. Carlier, J. Chauvaudra, P. Dizengremel, A. Feugier, C. Ganier, D. Hauglustaine, M. Kannakidou, G. Le Bras, A. Marengo, G. Mouvier, B. Tissot, G. Toupance, et R. Truhaut, Ozone et propriétés oxydantes de la troposphère, *Rapport 30*, Académie des Sciences, 1993.
- Meyers, T., et K. Paw U, Testing of a higher-order closure model for modeling airflow within and above plant canopies, *Boundary-Layer Meteorology*, 37, 297–311, 1986.
- Monson, R., C. Jaeger, W. Adams, E. Diggers, G. Silver, et R. Fall, Relationships among isoprene emission rate, photosynthesis, and isoprene synthase activity as influenced by temperature, *Plant Physiology*, 92, 1175–1180, 1992.
- Monson, R., P. Harley, M. Litvak, M. Wildermuth, A. Guenther, P. Zimmerman, et R. Fall, Environmental and developmental controls over the seasonal pattern of isoprene emission from aspen leaves, *Oecologia*, 99, 260–270, 1994.
- Monteith, J., et M. Unsworth, *Principles of Environmental Physics (pp.291)*, Second ed., Edward Arnold, London - New York - Melbourne - Auckland, 1990.
- Müller, J.-F., Geographical distribution and seasonal variation of surface emissions and deposition velocities of atmospheric trace gases, *Journal of Geophysical Research*, 97, 3787–3804, 1992.
- Müller, J.-F., Modélisation tri-dimensionnelle globale de la chimie et du transport des gaz en trace dans la troposphère, Ph.D. thesis, Université Libre de Bruxelles, 1993.
- Müller, J.-F., et G. Brasseur, IMAGES : a three-dimensional chemical-transport model of global troposphere, *Journal of Geophysical Research*, 100, 16,445–16,490, 1995.

- Müller, J.-F., et T. Stavrakou, Inversion of CO and NO_x emissions using the adjoint of IMAGES model, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 2004, submitted.
- Myneni, R., F. Hall, P. Sellers, et A. Marshak, The Interpretation of Spectral Vegetation Indexes, *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 33, 481–486, 1995.
- Myneni, R., R. Nemani, et S. Running, Estimation of Global Leaf Area Index and Absorbed PAR Using Radiative Transfer Models, *IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing*, 35, 1380–1393, 1997.
- New, M., M. Hulme, et P. Jones, Representing Twentieth-Century Space-Time Climate Variability. Part I : Development of a 1961-90 Mean Monthly Terrestrial Climatology, *Journal of Climate*, 12, 829–856, 1999.
- New, M., M. Hulme, et P. Jones, Representing Twentieth-Century Space-Time Climate Variability. Part II : Development of a 1901-96 Monthly Grids of Terrestrial Surface Climate, *Journal of Climate*, 13, 2217–2238, 2000.
- NOAA, *U.S. Standard Atmosphere (pp.227)*, National Oceanic and Atmospheric Administration, National Aeronautics and Space Administration, United States Air Force, Washington, D.C., 1976.
- Nobel, P., *Biophysical Plant Physiology and Ecology (pp.608)*, W.H. Freeman and Company, New York, 1983.
- Norman, J., Modeling the Complete Crop Canopy, in *Modification of the aerial environment of crops (pp.538)*, edited by B. Barfield et J. Gerber, 249-278, American Society of Agricultural Engineers, St. Joseph, MI, 1979.
- Olson, J., *World Ecosystem (WE 1.4) : digital raster data on a 10 minute geographic 1080×2160 grid*, Global Ecosystems Database, National Oceanic Atmospheric Administration, Boulder, CO, Version 1.0, Disc A, National Geographical Data Center ed., 1992.
- Parker, G., Structure and Microclimate of Forest Canopies, in *Forest Canopies - A Review of Research on Biological Frontier*, edited by M. Lowman et N. Nadkarni, chap. 4, Academic Press, Inc., San Diego, CA, 1995.
- Parker, G., Canopy Structure and Light Environment of an Old-growth Douglas-fir/ Western Hemlock Forest, *Northwest Science*, 71, 261–270, 1997.
- Parton, W., et J. Logan, A model for diurnal variation in soil and air temperature, *Agricultural Meteorology*, 23, 205–216, 1981.
- Pétron, G., Temperature Dependent Low Frequency Fluctuations of Isoprene Emissions, *DEA*, Magistère interuniversitaire des Sciences de la Terre, Paris, 1998.
- Pétron, G., P. Harley, J. Greenberg, et A. Guenther, Seasonal temperature variations influence isoprene emission, *Geophysical Research Letters*, 28, 1707–1710, 2001.

- Pierce, P., et P. Waldruff, BEIS Model version 2.1, 1991a, personal communication.
- Pierce, T., et P. Waldruff, PC-BEIS : A personal computer version of the biogenic emissions inventory system, *Journal of the Air and Waste Management Association*, 41, 937–941, 1991b.
- Pinker, R., et I. Laszlo, Modeling Surface Solar Irradiance for Satellite Applications on a Global Scale, *Journal of Applied Meteorology*, 31, 194–211, 1992a.
- Pinker, R., et I. Laszlo, Global Distribution of Photosynthetically Active Radiation as Observed from Satellites, *Journal of Climate*, 5, 56–65, 1992b.
- Poisson, N., M. Kanakidou, et P. Crutzen, Impact of Non-Methane Hydrocarbons on Tropospheric Chemistry and the Oxidizing Power of the Global Troposphere : 3-Dimensional Modelling Results, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 36, 157–230, 2000.
- Quinet, A., Cours de physique de l'atmosphère, vol. 1 (pp.99), 2ème édition (1995-1996), *Cours*, U.L.B., Belgique, 1995.
- Quinet, A., Cours de physique de l'atmosphère, vol. 2 (pp.141), 2ème édition (1997-1998), *Cours*, U.L.B., Belgique, 1997.
- Rasmussen, R., Isoprene : identified as a forest-type emission to the atmosphere, *Environmental Science and Technology*, 4, 667–671, 1970.
- Rasmussen, R., et M. Khalil, Isoprene over the Amazon Basin, *Journal of Geophysical Research*, 93, 1417–1421, 1988.
- Rauner, J., Deciduous Forest, in *Vegetation and the Atmosphere II (pp.439)*, edited by J. Monteith, pp. 241–264, Academic Press INC., London, 1976.
- Rauner, Y., *Heat Balance of the Plant Cover (pp.219)*, Amerind Publishing Co. Pvt. Ltd., New Delhi, 1977.
- Raupach, M., Canopy transport processes, in *Flow and Transport in the Natural Environment : Advances and Applications (pp.384)*, edited by W. Steffen et O. Denmead, pp. 95–127, Springer-Verlag, Berlin - Heidelberg - New York - London - Paris - Tokyo, 1988.
- Raupach, M., et A. Thom, Turbulence in and above plant canopies, *Annual Review Fluid Mechanics*, 13, 97–129, 1981.
- Rinne, J., Application and development of surface layer flux techniques for measurements of volatile organic compound emissions from vegetation, Ph.D. thesis, University of Helsinki, 2001.
- Rinne, J., A. Delany, J. Greenberg, et A. Guenther, A true eddy accumulation system for trace gas fluxes using disjunct eddy sampling method, *Journal of Geophysical Research*, 105, 24,791–24,798, 2000.

- Rinne, J., A. Guenther, C. Warneke, J. de Gouw, et S. Luxembourg, Disjunct eddy covariance technique for trace gas flux measurements, *Geophysical Research Letters*, 28, 3139–3142, 2001.
- Rinne, J., A. Guenther, J. Greenberg, et P. Harley, Isoprene and monoterpene fluxes measured above Amazonian rainforest and their dependence on light and temperature, *Atmospheric Environment*, 36, 2421–2426, 2002.
- Ross, J., Radiative Transfer in Plant Communities, in *Vegetation and the Atmosphere I* (pp.279), edited by J. Monteith, pp. 13–55, Academic Press INC., London, 1975.
- Ross, J., *The radiative regime and architecture of plant stands* (pp.391), Tasks for vegetation sciences 3, Dr W. Junk Publishers, The Hague - Boston -s London, 1981.
- Rossow, W., et R. Schiffer, ISCCP Cloud Data Products, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 72, 2–20, 1991.
- Rossow, W., A. Walker, et L. Garder, Comparison of ISCCP and Other Cloud Amounts, *Journal of Climate*, 6, 2394–2418, 1993.
- Salisbury, F., *Units, Symbols and Terminology for Plant Physiology* (pp.234), Oxford University Press, New York - Oxford, 1996.
- Sanadze, G., Isoprene Effect–Light-Dependent Emission of Isoprene by Green Parts of Plants, in *Trace Gaz Emissions by Plants* (pp.365), edited by T. Sharkey, E. Holland, et H. Mooney, pp. 135–152, Academic Press, San Diego, 1991.
- Sanadze, J., Emissions of organic matters by leaves of *Robinia pseudacacia* L., *Soobshch. Akad. Nauk Gruz. SSR*, 19, 83, 1957.
- Schiffer, R., et W. Rossow, The International Satellite Cloud Climatology Project (ISCCP) : The First Project of the World Climate Research Programme, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 64, 779–784, 1983.
- Schiffer, R., et W. Rossow, ISCCP Global Radiance Data Set : A New Resource for Climate Research, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 66, 1498–1505, 1985.
- Scholes, R., N. Gureja, M. Giannichinni, D. Dovie, B. Wilson, N. Davidson, K. Piggott, C. McLoughln, K. van de Velde, A. Freeman, S. Bradley, R. Smart, et S. Ndala, The environment and vegetation of the flux measurement site near Skukuza, Kruger National Park, *Koedoe*, 44, 73–83, 2001.
- Scurlock, J., G. Asner, et S. Gower, Worldwide Historical Estimates of Leaf Area Index, 1932-2000, *Report ORNL/TM-2001/268*, Oak Ridge National Laboratory, Tennessee, USA, 2001.
- Seinfeld, J., et S. Pandis, *Atmospheric Chemistry and Physics : From Air Pollution to Climate Change* (pp.1326), John Wiley and Sons, Inc., New York - Chichester - Weinheim - Brisbane - Singapore - Toronto, 1998.

- Sellers, P., Canopy reflectance, photosynthesis and transpiration, *Journal of Atmospheric Science*, 43, 505–531, 1985.
- Sellers, P., et J. Dorman, Testing the Simple Biosphere Model (SiB) Using point Micro-meteorological and Biophysical Data, *Journal of Climate and Applied Meteorology*, 26, 622–651, 1987.
- Sellers, P., Y. Mintz, Y. Sud, et A. Dalcher, A Simple Biosphere Model (SiB) for Use within General Circulation Models, *Journal of Atmospheric Science*, 43, 505–531, 1986.
- Sellers, P., W. Shuttleworth, J. Dorman, A. Darcher, et J. Roberts, Calibrationg the Simple Biophere Model for Amazonian Tropical Forest Using Field and Remote Sensing Data. Part I : Average Calibrating with Field Data, *Journal of Applied Meteorology*, 28, 727–759, 1989.
- Sellers, P., M. Heiser, et F. Hall, Relations Between Surface Conductance and Spectral Vegetation Indices at Intermediate (100 m² to 15 km²) Length Scales, *Journal of Geophysical Research*, 97, 19,033–9059, 1992.
- Seufert, G., BEMA A European Commision project on Biogenic Emission in the Mediterranean Area, *Atmospheric Environment*, 31, 1–256, 1997, Special issue.
- Seufert, G., J. Bartzis, T. Bomboi, P. Ciccioli, S. Cieslik, R. Dugli, P. Foster, N. Hewitt, J. Kesselmeier, D. Koatzias, R. Lenz, F. Manes, R. Perez-Pastor, R. Steinbrecher, L. Torres, R. Valentini, et B. Versino, An overview of the Castelporziano experiments, *Atmospheric Environment*, 31, 5–18, 1997.
- Sharkey, T., et S. Yeh, Isoprene Emission from Plants, *Annual Review of Plant Physiology and Plant Molecular Biology*, 52, 407–436, 2001.
- Sharkey, T., F. Loreto, et C. Delwiche, The Biochemistry of Isoprene Emission from Leaves during Photosynthesis, in *Trace Gaz Emissions by Plants (pp.365)*, edited by T. Sharkey, E. Holland, et H. Mooney, pp. 153–184, Academic Press, San Diego, 1991.
- Sharkey, T., E. Singaas, M. Lerdau, et C. Geron, Weather effects on isoprene emission capacity and applications in emissions algorithms, *Ecological Applications*, 9, 1132–1137, 1999.
- Shaw, R., et W. Decker, The General Heat Budget of Canopies, in *Modification of the aerial environment of crops (pp.538)*, edited by B. Barfield et J. Gerber, pp. 141–155, American Society of Agricultural Engineers, St. Joseph, MI, 1979.
- Simpson, D., A. Guenther, N. Hewitt, et R. Steinbrecher, Biogenic emissions in Europe 1. Estimates and uncertainties, *Journal of Geophysical Research*, 100, 22,875–22,890, 1995.

- Simpson, D., W. Winiwarter, G. Börjesson, S. Cinderby, A. Ferreira, A. Guenther, N. Hewitt, R. Janson, M. Khalil, S. Owen, T. Pierce, H. Puxbaum, M. S. an U. Skiba, R. Steinbrecher, L. Tarrasón, et M. Öquist, Inventorying emissions from nature in Europe, *Journal of Geophysical Research*, 104, 8113–8152, 1999.
- Solomon, S., et G. Brasseur, Polar Ozone, in *The Stratosphere and Its Role in the Climate System* (pp.365), edited by G. Brasseur, vol. 54 of *Series I : Global Environmental Change*, pp. 253–260, Springer-Verlag, Berlin - Heidelberg - New York, 1997.
- Spencer, J., Fourier series representation of the position of the sun, *Search*, 2, 172, 1971.
- Staudt, M., N. Bertin, B. Frenzel, et G. Seufert, Seasonal Variation in Amount and Composition of Monoterpenes Emitted by Young *Pinus pinea* Trees-Implications for Emission Modeling, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 35, 77–99, 2000.
- Steinbrecher, R., Isoprene : production by plants and ecosystem-level estimates, in *Biogenic Volatile Organic Compounds in the Atmosphere*, edited by G. Helas, J. Slanina, et R. Steinbrecher, pp. 101–114, Academic Publishing, Amsterdam, 1997.
- Steinbrecher, R., R. Schonwitz, et H. Ziegler, Emission of monoterpenes from needles of *Picea abies* (L.) Karst under field conditions, in *19th International Symposium on Essential Oils and Other Natural Substrates*, Landenberghaus Greifensee, 1988.
- Stull, R., *An Introduction to Boundary Layer Meteorology* (pp.670), Atmospheric Sciences Library, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht - Boston - London, 1999.
- Swinbank, W., Long-wave radiation from clear skies, *Quarterly Journal of Royal Meteorological Society*, 89, 339–348, 1963.
- Tajchman, S., Comments on Measuring Turbulent Exchange Within and Above Forest Canopy, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 62, 1550–1559, 1981.
- Thom, A., Momentum, Mass and Heat Exchange of Plant Communities, in *Vegetation and the Atmosphere I* (pp.279), edited by J. Monteith, pp. 57–109, Academic Press INC., London, 1975.
- Ting, I., Naturals Products, in *Plant Physiology* (pp.642), Addison Wesley 7406, 1982.
- Tingey, D., The effect of environmental factors on the emission of biogenic hydrocarbons from live oak and slash pine, in *Atmospheric Biogenic Hydrocarbons*, edited by J. Bulfalini et R. Arnts, pp. 53–72, Butterworth, Stoneham, Mass., 1981.
- Tingey, D., M. Manning, L. Grothaus, et W. Burns, The influence of light and temperature on isoprene emission rates from live oak, *Plant Physiology*, 47, 112–18, 1979.
- Tingey, D., M. Manning, L. Grothaus, et W. Burns, Influence of Light and Temperature on Monoterpene Emission Rate from Slash Pine, *Plant Physiology*, 65, 797–801, 1980.

- Tingey, D., D. Turner, et J. Weber, Factors Controlling Emissions of Monoterpenes and Other Volatile Organic Compounds, in *Trace Gas Emissions by Plants* (pp.365), edited by T. Sharkey, E. Holland, et H. Mooney, pp. 93–119, Academic Press, San Diego, 1991.
- Trenberth, K., J. Christy, et J. Olson, Global atmospheric mass, surface pressure, and water vapor variations, *Journal of Geophysical Research*, 92, 14,815–14,826, 1987.
- Tucker, C., Red and photographic infrared linear combinations for monitoring vegetation, *Remote Sensing of the Environment*, 8, 127–150, 1979.
- Verger, F., *L'observation de la Terre par les satellites*, Presses Universitaires de France, Paris, 1982.
- Vose, J., et W. Swank, Assessing seasonal leaf area dynamics and vertical leaf area distribution in eastern white pine (*Pinus strobus* L.) with a portable light meter, *Tree Physiology*, 7, 125–134, 1990.
- Waggoner, P., Micrometeorological Model, in *Vegetation and the Atmosphere I* (pp.279), edited by J. Monteith, pp. 205–228, Academic Press INC., London, 1975.
- Wang, H., et D. Baldocchi, A numerical model for simulating the radiation regime within a deciduous forest canopy, *Agricultural and Forest Meteorology*, 46, 313–337, 1989.
- Wang, K.-Y., et D. Shallcross, Modelling terrestrial biogenic isoprene fluxes and their potential impact on global chemical species using coupled LSM-CTM model, *Atmospheric Environment*, 34, 2909–2925, 2000.
- Wang, Y., D. Jacob, et J. Logan, Global simulation of tropospheric O₃-N₂O-hydrocarbon chemistry 3. Origin of tropospheric ozone and effects of nonmethane hydrocarbons, *Agricultural and Forest Meteorology*, 103, 10,757–10,767, 1998.
- WCP-55, *Report of WMO (CAS)/Radiation Commission of IAMAP meeting of experts on aerosols and their climatic effects* (pp.107), A. Deepack and H. Gerber, Williamsburg, VA, 1983.
- Weiss, A., et J. Norman, Partitioning solar radiation into direct and diffuse, visible and near-infrared components, *Agricultural and Forest Meteorology*, 34, 205–213, 1985.
- Wielicki, B., R. Cess, M. King, D. Randall, et E. Harrison, Mission to Planet Earth : Role of Clouds and Radiation in Climate, *Bulletin of the American Meteorological Society*, 76, 2125–2153, 1995.
- Wilson, J., et D. Baldocchi, Seasonal and interannual variability of energy fluxes over a broadleaved temperate deciduous forest in North America, *Agricultural and Forest Meteorology*, 100, 1–18, 2000.
- Wilson, J., D. Ward, G. Thurtell, et G. Kidd, Statistics of atmospheric turbulence within and above a corn canopy, *Boundary-Layer Meteorology*, 24, 495–519, 1982.

- WMO/UNEP, *Scientific Assessment of Ozone Depletion : 2002, Global Ozone Research and Monitoring Project (pp.498), Report N°47*, World Meteorological organization, Geneva, 2003.
- Xue, Y., P. Sellers, J. Kinter, et J. Shukla, A Simplified Biosphere Model for Global Climate Studies, *American Meteorological Society*, 4, 345–364, 1991.
- Zimmer, W., N. Brüggemann, S. Emeis, C. Giersch, A. Lehning, R. Steinbrecher, et J.-P. Schnitzler, Process-based modeling of isoprene emission by oak leaves, *Plant, Cell and Environment*, 23, 585–597, 2000.
- Zimmer, W., R. Steinbrecher, C. Körner, et J.-P. Schnitzler, The process-based SIM-BIM model : towards more realistic prediction of isoprene emissions from adult *Quercus petraea* forest trees, *Atmospheric Environment*, 37, 1665–1671, 2003.
- Zimmerman, P., Testing of hydrocarbon emissions from vegetation, leaf litter and aquatic surfaces, and development of a methodology for compiling biogenic emission inventories, *Report EPA-450-4-70-004*, U.S. Environmental Protection Agency, Research Triangle Park, NC, 1979.