«L’APPORT DES NOUVELLES TECHNOLOGIES DE MESURE POUR LA CARACTÉRISATION DES SOURCES ET PUITS DE GAZ À EFFET DE SERRE» PAR BENJAMIN LEBEGUE

Présentée par : Benjamin Lebegue Discipline : météorologie, océanographie physique de l'environnement Laboratoire : LSCE

Résumé :
Au cours des trois dernières décennies, les programmes d'observation des GES se sont orientés vers des échelles de plus en plus fines. Il est devenu indispensable de développer les réseaux d'observation pour s'adapter aux échelles visées. On s'oriente également vers une augmentation des espèces observables afin de disposer d'une palette de traceurs atmosphériques. Dans le cadre de l'infrastructure de recherche européenne ICOS, le Laboratoire des Sciences du Climat et de l’Environnement (LSCE) est en charge de la veille technologique en matière d’instruments de mesure des GES. Dans le cadre de ma thèse, j’ai évalué en premier lieu les performances d’un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) ciblant cinq composés: N2O, CH4, CO, CO2 et son isotope 13CO2.
Hormis le FTIR, d’autres nouvelles techniques sont apparues sur le marché, en

particulier concernant la mesure du N2O. Contrairement au CO2 et CH4 les stations ICOS n'ont pas encore l'obligation de mesurer le N2O car aucun instrument n'a été reconnu comme suffisamment performant. Dans le cadre de ma thèse j'ai eu la responsabilité de faire l'évaluation de sept analyseurs de N2O provenant de cinq constructeurs différents. Grâce à cette étude, j'ai pu regrouper les analyseurs en deux catégories : les instruments performants pour de hautes fréquences de mesures (<1 min) et les instruments stables sur le long terme. La première catégorie est plus adaptée aux mesures des échanges avec les écosystèmes par la méthode des flux turbulents, alors que la deuxième permet le suivi à haute précision dans l'atmosphère. La plupart des instruments présentent une sensibilité aux variations de température ambiante ainsi qu' une correction de la vapeur d'eau insuffisante (Lebegue et al., 2016).

Par la suite, j'ai utilisé les données de N2O obtenues avec le FTIR afin de déterminer les émissions de ce gaz à l'aide de la méthode Radon qui repose sur la corrélation entre l' accumulation nocturne du 222Rn et celle de N2O. L'instrument FTIR proposant une meilleure justesse de mesure que le GC utilisé par le passé, j'ai pu obtenir un plus grand nombre d'évènements exploitables (+45%). Par la suite, j'ai installé le FTIR sur le site de Trainou, une tour radio près d'Orléans, début 2014 afin de caractériser les gradients verticaux de N2O et 13CO2.

Le LSCE a acquis en mars 2015 un spectromètre laser de marque Aerodyne Research dédié à l'étude des échanges atmosphère-biosphère du carbone. Les trois composés cibles sont CO2, H2O et l'oxysulfure de carbone (COS). Dans la mesure où les plantes assimilent COS et CO2 et qu'il n'existe pas de mécanisme équivalent à la respiration du CO2 pour le COS, l'absorption du COS par les plantes serait directement proportionnelle à leur activité photosynthétique. Dans ce contexte, j'ai évalué les performances de l' instrument Aerodyne puis comparé ces dernières à celles du GC qui évalue depuis août 2014 les variations diurne et saisonnière du rapport de mélange à l'Orme des Merisiers. Enfin, j'ai installé l'instrument Aerodyne à la tour ICOS de Saclay afin d'y documenter les variations diurnes du gradient vertical de COS.

Mes études montrent (1) que l'Aerodyne et le GC présentent des performances similaires mais que l'Aerodyne a l'avantage de nécessiter une maintenance nettement moins importante, et (2) que l'instrument Aerodyne est capable de détecter un gradient vertical de quelques ppt en période de stratification nocturne. Dans cette partie de mon travail de thèse, j'évalue aussi les variations saisonnières du COS dans la basse troposphère, déterminées à partir des données GC, que je compare à d'autres sites à travers le monde. J'ai également pu estimer sur cette période, par la méthode Radon, les vitesses de dépôt de COS sur le Plateau de Saclay. Cette méthode m'a permis de mettre en évidence l'existence d'un puits nocturne de COS dans la région du plateau de Saclay qui demeure actif quasiment tout au long de l'année.

Abstract :
During the last three decades, GHG observations programs went towards ever smaller scales, and it is becoming necessary to develop observation networks and adapt them to the different scales studied. Besides denser networks, we are going toward an increase of the species monitored in order to have a wide range of atmospheric tracers available to identify processes. As a member of the European research program ICOS (Integrated Carbon Observing System), the LSCE (Laboratoire des Sciences du Climat et de l' Environnement) is in charge of technological watch for GHG measuring analyzers. In the scope of my thesis, I first tested a Fourier Transform Infra-Red Spectrometer (FTIR) commercialized by Ecotech which can analyze five species: N2O, CH4, CO, CO2 and its isotope 13CO2.
Apart of the FTIR, other new technologies appeared on the market, particularly relating to N2O measurements. Unlike CO2 and CH4, ICOS stations don't require measuring N2O, as no instrument has been found to be performant enough concerning measurement precision and reliability for the ICOS network. During my thesis, I had the responsibility to make an exhaustive evaluation of seven analyzers of N2O from five different manufacturers. I've been able to gather the analyzers in two categories: those with good high frequency measurements (< 1 min) and those which are stable over long periods. The first category is particularly adapted to measurement of exchange rates between different ecosystems, whereas the second allows for high precision monitoring of the atmosphere. Most instruments show dependence to ambient temperature variations as well as a water vapor correction either useless or lacking (Lebegue et al., AMT, 2016).
Then, I used N2O measurements from the FTIR in order to determine night emissions of this gas by using the Radon method which calculates the correlation between the nocturnal accumulation of 222Rn and N2O. Thanks to the better repeatability of the FTIR over the gas chromatograph one, I have been able to obtain more workable events than with the GC (+45%). Start of 2014, I installed the FTIR at the Trainou station, a radio tower near Orléans, in order to document the vertical gradients of N2O and 13CO2.
The LSCE received in March 2015 a laser spectrometer from Aerodyne Research dedicated to the study of atmosphere/biosphere carbon fluxes. Three species are analyzed, CO2, H2O and carbonyl sulfide (COS) for which the mixing ratio in the troposphere is a million times smaller than CO2's. Considering that vegetation assimilate COS and CO2 in similar proportions and that there is no mechanism similar to respiration for COS, the absorption of COS by the vegetation should be directly proportional to the photosynthetic activity. In this respect, I have characterized the performances of the new instrument Aerodyne. I then compared measurements of COS from this instrument to those obtained with a GC which document, since August 2014, the diurnal and seasonal variations of COS mixing ratios and fluxes at the LSCE. Finally, I installed the Aerodyne

analyzer at the ICOS tower of Saclay in order to document the diurnal variations of the vertical gradient of COS during the winter period. My studies showed (1) that the Aerodyne and the GC show similar performances although the Aerodyne analyzer has the advantage of needing less maintenance, and (2) that the Aerodyne analyzer is able to detect a vertical gradient of a few ppt during a nocturnal stratification. Here, I also study the seasonal variations of COS in the low troposphere, from GC data, which I compare to other stations across the world. I've also been able to estimate over this period, with the Radon method, the deposition velocity of COS over the Saclay plateau. Thanks to this method, I was able to document a nocturnal sink active for almost the full year over the Saclay Plateau.

INFORMATIONS COMPLÉMENTAIRES

Catherine HENAULT, Directrice de Recherche, à l'INRA Val de Loire/Unité de Recherche de Science du Sol d'Orléans - Orléans - Rapporteur
Christof JANSSEN, Chargé de Recherche, Habilité à Diriger des Recherches, à l'Université Pierre et Marie Curie/Laboratoire d'Études du Rayonnement et de la Matière en Astrophysique et Atmosphères (LERMA) - UMR 8112 - Paris - Rapporteur
Sauver BELVISO, Chargé de Recherche CNRS, Habilité à Diriger des Recherches, à l' Université Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines/Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) - Gif/Yvette - Directeur de thèse
Philippe BOUSQUET, Professeur des Universités, à l'Université Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines/Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) - Gif/Yvette - Examinateur
Valery CATOIRE, Professeur des Universités, à l'Université d'Orléans/Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement et de l'Espace (LPC2E) - Orléans - Examinateur
Lilian JOLY, Chargé de Recherches CNRS, à l'Université de Reims Champagne-Ardenne/Groupe de Spectrométrie Moléculaire et Atmosphérique (GSMA) - UMR CNRS 7331 - Reims - Examinateur
Michel RAMONET, Chargé de Recherche CNRS, à l'Université Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines/Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) - Gif/Yvette - Invité
Martina SCHMIDT, Directrice de Recherche, à l'Université d'Heidelberg/Institut de Physique de l'Environnement - Heidelberg (Allemagne) - Invitée