



THÈSE DE DOCTORAT

de l'Université Jean LOROUGNON GUÉDÉ

ANNÉE UNIVERSITAIRE
2025 - 2026

N° D'ORDRE : 187

Formation doctorale

Mention : Géosciences et Environnement

Spécialité : Physique/Physique de l'Atmosphère

THÈME :

Modélisation de la variabilité des dépôts
atmosphériques d'azote sous l'influence
de facteurs climatiques et anthropiques
en Afrique

JURY

Présidente : Mme. ADOHI KROU Viviane, Professeur Titulaire, Université
Félix HOUPHOUËT-BOIGNY, Abidjan

Co-Directeurs :

- M. ADON Attoh Marcellin, Maître de Conférences, Université
Jean LOROUGNON GUÉDÉ, Daloa

- M. SOLMON Fabien, Physicien Adjoint, Université de Toulouse, Toulouse

Rapporteur : M. KOUASSI Komenan Benjamin, Maître de Conférences,
Université Félix HOUPHOUËT-BOIGNY, Abidjan

Examineurs :

- M. KOUASSI Adjon Anderson, Maître de Conférences, Université
Jean LOROUGNON GUÉDÉ, Daloa

- M. KOUADIO Yves, Professeur Titulaire, Université
Félix HOUPHOUËT-BOIGNY, Abidjan

Soutenue le 26/03/2026

TABLE DES MATIERES	Pages
DEDICACE	VI
REMERCIEMENTS	VII
LISTE DES SIGLES ET ABBREVIATIONS	XII
LISTE DES TABLEAUX	XVI
LISTE DES FIGURES	XVIII
LISTE DES ANNEXES	XXII
 INTRODUCTION	 1
 PARTIE 1 : SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE ET METHODOLOGIE	 7
CHAPITRE 1 : CONTEXTE CLIMATIQUE ET PHYSICO-CHIMIE DE L'ATMOSPHERE EN AFRIQUE INTERTROPICALE	8
1-1- Contexte climatique	8
1-1-1- Principales caractéristiques de la circulation régionale en haute et moyenne troposphère	8
1-1-1-1- Jet d'Est Tropical	9
1-1-1-2- Jet d'Est Africain	10
1-1-2- Principales caractéristiques de la circulation régionale en basse troposphère	11
1-1-2-1- Flux de mousson	11
1-1-2-2- Harmattan	11
1-1-2-3- Front InterTropical	11
1-1-3- Structures convectives	12
1-1-3-1- Dépression thermique du Sahara (SHL : Saharan Heat Low)	12
1-1-3-2- Systèmes convectifs de méso échelles (MCS) et la ZCIT	12
1-1-4- Variation saisonnière de la mousson Ouest Africaine	14
1-1-5- Climat	15
1-1-6- Végétation	16
1-2- Gaz traces azotés atmosphériques et facteurs d'influence	17
1-2-1- Généralités sur les sources de certains gaz traces azotés atmosphériques étudiés	18
1-2-1-1- Oxydes d'azote (NO _x) et espèces associées	18
1-2-1-2- Ammoniac	21

Table des matières

1-2-1-3- Cycle biogéochimique de l'azote	23
1-2-2- Dépôts atmosphériques	25
1-2-2-1- Dépôt sec	25
1-2-2-2- Dépôt humide	26
1-2-3- Influence anthropique sur les espèces azotées	27
1-2-3-1- Pratiques agricoles	27
1-2-3-2- Trafic et industries	28
1-2-4- Influence climatique sur les espèces azotées	30
1-2-4-1- Précipitation	30
1-2-4-2- Température	30
1-2-4-3- Vent	31
1-3- Modélisation atmosphérique : éléments utiles à la compréhension	31
1-3-1- Intérêt dans le contexte africain	32
1-3-2- Principes utiles : dynamique, physique, transport, chimie, dépôts	33
1-3-2-1- Dynamique atmosphérique	33
1-3-2-2- Physique atmosphérique	33
1-3-2-3- Transport	33
1-3-2-4- Chimie atmosphérique	34
1-3-2-5- Dépôts	34
Conclusion partielle	35
CHAPITRE 2 : MATERIEL ET METHODOLOGIE DE RECHERCHE	36
2-1- Description et présentation des projets INSA et INDAAF	36
2-1-1- Projet INSA	36
2-1-2- Réseau INDAAF	37
2-1-2-1- Caractéristiques et description des sites INDAAF	37
2-1-2-2- Échantillonnage des gaz et analyse chimique	41
2-2- Modèle régional climatique RegCM version 5	42
2-2-1- Coeur dynamique MOLOCH et les structures verticales et horizontales du modèle	43
2-2-2- Principaux schémas physiques du modèle	45
2-2-2-1- Schémas de surface	45
2-2-2-2- Schémas de convection du cumulus	46

2-2-2-3-	Schémas de radiation	47
2-2-2-4-	Schémas de la couche limite planétaire	48
2-2-2-5-	Schémas de précipitations de grande échelle	49
2-2-3-	Principaux schémas de chimie du modèle	51
2-2-3-1-	Modules des aérosols	51
2-2-3-2-	Chimie en phase gazeuse : module CBM-Z	52
2-2-3-3-	Module de dépôt sec : Modèle big-leaf de Zhang <i>et al.</i> (2003a)	53
2-2-3-4-	Module de dépôt humide : Modèle MOZART	55
2-2-3-5-	Module de NO biogénique : Modèle ANN	56
2-3-	Descriptions des données	57
2-3-1-	Données de forçage et d'entrée	57
2-3-2-	Données d'évaluation	58
2-3-3-	Inventaires d'émissions	59
2-4-	Outils statistiques d'évaluation	60
2-4-1-	Coefficient de corrélation spatiale (PCC)	60
2-4-2-	Biais moyen et erreur quadratique (Bias et RMSE)	60
2-4-3-	Ecart absolu moyen (MAD) et l'écart absolu en pourcentage par rapport à la moyenne (APDM)	61
2-4-4-	Test de Mann–Kendall	61
2-4-5-	Fonction de densité de probabilité	62
2-4-6-	Régression linéaire multiple	63
2-5-	Expériences de simulations	63
	Conclusion partielle	65
 PARTIE 2 : RÉSULTATS ET DISCUSSION		67
 CHAPITRE 3 : MODÉLISATION RÉGIONALE DE L'IMPACT DES ÉMISSIONS DE NO BIOGÉNIQUE SUR LA CHIMIE ATMOSPHÉRIQUE EN AFRIQUE		68
3-1-	Validation du climat régional simulé	68
3-1-1-	Circulation de mousson et flux régionaux	69
3-1-2-	Température de surface	70
3-1-3-	Températures journalières	71
3-1-4-	Précipitation spatiale	71
3-1-5-	Précipitations journalières	72

Table des matières

3-1-6- Variabilité latitudinale de la mousson ouest-africaine	73
3-2- Simulation des émissions de BioNO	75
3-2-1- Facteurs de contrôle des BioNO	75
3-2-2- Estimation des flux d'émission	76
3-3- Analyse des concentrations simulées et impact des émissions de BioNO	78
3-3-1- NO ₂ régional : comparaison aux données de réanalyse et de modèle de référence	78
3-3-2- NO ₂ régional : comparaison aux observations satellitaires	81
3-3-3- NO ₂ local : comparaison aux observations in-situ	83
3-3-4- HNO ₃ régional : comparaison aux données de réanalyse et de modèle de référence	87
3-3-5- HNO ₃ local : comparaison aux observations in-situ	89
3-3-6- Ozone régional : comparaison aux données de réanalyse et de modèle de référence	91
3-3-7- Ozone local : comparaison aux observations in-situ	96
Conclusion partielle	98
CHAPITRE 4 : ESTIMATIONS REGIONALE ET LOCALE DU DEPOT D'AZOTE	100
4-1- Emissions d'azote	100
4-2- Validation des concentrations simulées sur la période d'étude	102
4-3- Estimation du dépôt d'azote réactif	105
4-3-1- A l'échelle régionale	105
4-3-2- A l'échelle locale	114
4-3-2-1- Dépôt sec	114
4-3-2-2- Dépôt humide	123
4-3-3- Dépôt total	127
Conclusion partielle	131
CHAPITRE 5 : VARIABILITE ET TENDANCE DES DEPOTS D'AZOTE : ROLE DES FACTEURS CLIMATIQUES ET DES EMISSIONS	133
5-1- Variabilité et tendances des émissions et dépôts d'azote	133
5-1-1- Émissions régionale de NO _x et NH ₃ : tendances et variabilité interannuelle	133
5-1-2- Dépôts d'azote : tendances et variabilité interannuelle	137
5-1-2-1- Analyse régionale	137

Table des matières

5-1-2-2- Analyse locale aux stations INDAAF	143
5-2- Rôle des émissions et des facteurs climatiques dans la variabilité des dépôts atmosphériques d'azote	144
5-2-1- Dépôt sec	145
5-2-2- Dépôt humide	151
Conclusion partielle	154
CONCLUSION	156
REFERENCES	163

DEDICACE

Je consacre ce travail à ceux qui ont été, dans l'ombre ou dans la lumière, des piliers de mon cheminement.

À mes parents, *YAO Kouakou Romuald* et *YAO Amino Chantal*, dont la bienveillance, le courage et le sens du devoir ont profondément façonné mon parcours. Votre abnégation silencieuse et votre amour constant restent pour moi des repères.

À mes frères et sœurs : *YAO Didier Serge*, *YAO Adjoua Nadège*, *YAO Amenan Natacha*, *YAO Adjoua-Kan Gyslaine* et *YAO Kouassi Guy-Roland*. Vos mots, vos gestes, vos regards ont porté plus que vous ne l'imaginiez.

À *SIALLOU Armande Benjamine*, dont la présence attentive, l'écoute patiente et les encouragements discrets ont été une source précieuse de sérénité et d'élan.

Et à *BOHUI Arthur*, frère de cœur, pour sa loyauté, son soutien sans faille et sa confiance inébranlable en moi.

REMERCIEMENTS

Cette période doctorale a été rythmée par des apprentissages intenses, de belles rencontres, des collaborations stimulantes, de moments de doute parfois, mais surtout de grandes satisfactions à chaque étape franchie avec succès. Un travail de thèse est avant tout une aventure personnelle, à la fois exigeante et profondément enrichissante. Mais une telle entreprise ne pourrait être menée à bien sans le soutien, les conseils et l'accompagnement bienveillant de nombreuses personnes. Qu'elles trouvent ici l'expression sincère de ma gratitude. Si d'aventure j'en oubliais certaines, je leur présente d'avance mes excuses.

Cette recherche a été conduite dans le cadre d'une codirection entre l'Université Jean Lorougnon Guédé (Daloa, Côte d'Ivoire) et l'Université de Toulouse à travers le Laboratoire d'Aérodynamique (Toulouse, France), dans le cadre du programme Integrated Nitrogen Study in Africa (INSA). Je remercie vivement les responsables et personnels de ces deux institutions pour l'accueil chaleureux, les ressources mises à ma disposition et leur soutien tout au long de mon parcours.

Mes remerciements s'adressent tout particulièrement au Professeur ADOHI KROU Viviane, Présidente de l'Université Jean LOROUGNON GUEDE (UJLoG) pour m'avoir permis de mener cette thèse dans cette Université, ainsi qu'au Professeur KOUASSI Kouakou Lazare, Directeur de l'Unité de Formation et de Recherche (UFR) Environnement, pour ses précieux conseils, sa disponibilité et son engagement tout au long de ce processus doctoral. Je souhaite exprimer ma reconnaissance envers le Professeur DIBI Brou, Directeur du Laboratoire des Sciences et Technologies de l'Environnement (LSTE) de l'Université Jean Lorougnon Guédé, pour m'avoir accepté dans ce laboratoire.

Au Professeur Sylvain COQUILLAT, Directeur du Laboratoire d'Aérodynamique (Laero), j'exprime ma profonde gratitude pour son appui institutionnel.

Je remercie chaleureusement l'ensemble des membres de mon jury de thèse, et en particulier les rapporteurs : Docteur KOUASSI Komenan Benjamin, Maître de Conférences à l'Université Félix Houphouët-Boigny et Docteur SILUE Siélé, Maître de Conférences à l'Université Pelefero Gon Coulibaly, les évaluateurs : Professeur KOUADIO Yves, Professeur Titulaire à l'Université Félix Houphouët-Boigny et Docteur KOUASSI Adjon Anderson, Maître de Conférences à l'UJLoG, pour le temps consacré à l'évaluation de ce travail et pour leurs remarques constructives. Ma reconnaissance va également à la présidente du jury, Professeur ADOHI Krou Viviane et à

tous les autres membres, pour leur présence et leur intérêt.

Je tiens tout d'abord à exprimer ma profonde gratitude au Professeur YOBOUE Véronique, Présidente de l'Université Nangui Abrogoua et responsable de l'équipe de recherche « Aérosols et pollution » du Laboratoire des Sciences de la Matière, de l'Environnement et de l'Énergie Solaire (LASMES) de l'Université Félix Houphouët-Boigny (Côte d'Ivoire), pour m'avoir accueilli au sein de son équipe et pour avoir soutenu et validé ce sujet de recherche dès le départ.

Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance à mon Directeur de thèse, Docteur ADON Attoh Marcellin, Maître de Conférences à UJLoG. Sa confiance en mes aptitudes, ses conseils, son implication sans cesse, sa rigueur et ses analyses pertinentes ont été pour moi une base solide dans l'élaboration de cette étude. Je remercie vivement Docteur SOLMON Fabien, Chercheur scientifique à l'Université de Toulouse, mon Co-Directeur de thèse, dont l'expertise et la patience m'ont été précieuses, notamment lors de la mise en œuvre et l'utilisation des outils de modélisation. Son soutien technique et scientifique a été déterminant pour la réussite de ce travail.

Il m'est agréable de m'acquitter d'une dette de reconnaissance auprès d'eux pour leur confiance, leur disponibilité, leur rigueur scientifique et leur accompagnement bienveillant. Leur complémentarité m'a permis d'avancer avec méthode et sérénité, que ce soit sur les aspects expérimentaux ou de modélisation.

Merci également à toute l'équipe de coordination du projet INSA, pour leur aide précieuse, leurs conseils et leur promptitude face aux difficultés rencontrées, particulièrement aux Docteurs Claire DELON, Corinne GALY-LACAU, Alana MOORE et le Professeur Dominique Serça. pour nos nombreux échanges enrichissants autour des résultats et de leur interprétation.

Je n'oublie pas l'ensemble des membres de l'équipe « Emissions, Dépôts et Impacts » (EDI) du Laero, avec qui j'ai eu le plaisir de collaborer dans une ambiance aussi studieuse que conviviale.

Merci particulier à Eric GARDRAT, Jean-François LEON, Laurence DELVILLE, Océane LENOIR, Marisa VIALET, Thierno DOUMBIA, Sandra IN, Céline CADIOT, Karine MERCADIER du Laero, pour leur esprit d'équipe et leur bonne humeur communicative. Et comment ne pas adresser des remerciements particuliers à Maria DIAS ALVES du Laboratoire de chimie du Laero, pour sa disponibilité, son soutien indéfectible et son assistance d'une importance capitale dont elle m'a fait bénéficier durant cette période.

Un mot particulier de gratitude va à Didier GAZEN, responsable de l'infrastructure de calculs intensifs (NUWA) au Laero, ainsi qu'au service informatique du Laero, notamment à Erwan

BARGAIN, pour leur assistance précieuse chaque fois qu'un bug pointait le nez, tout au long de mes séjours à Toulouse.

Je tiens également à remercier les enseignants-chercheurs du parcours Physique-Chimie de l'UJLoG, notamment, Docteur KOUASSI Adjon Anderson, Docteur TOKOU Zan, qui ont bien accepté d'encadrer mes travaux de Master et de Licence, respectivement.

Un grand remerciement à l'ensemble de l'équipe « Aérosols et Pollution » pour son accueil et son accompagnement tout au long de ces années, et plus particulièrement au Docteur KOUASSI Adjon, Docteur SILUÉ Siélé, Docteur BAHINO Julien, Docteur KEITA Sékou, Docteur BAKAYOKO Adama, Docteur OSSOHOU Money, Docteur GNAMIEN Sylvain N'douffou, Docteur DOUMBIA Madina, Docteur DIABY Mohamed, Docteur ZOUZOUA Maurice, et Docteur TOURÉ N'DATCHOH Eveline. Je tiens à exprimer à chacun d'entre vous ma profonde reconnaissance pour votre disponibilité, vos conseils, et pour avoir su entretenir en moi l'élan nécessaire à l'aboutissement de ce travail.

Une mention toute spéciale à Docteur BAKAYOKO Adama, qui a su, dès mon arrivée, me guider dans mes premiers pas dans la ville de Toulouse, facilitant ainsi mon intégration et mes débuts dans cette nouvelle aventure.

C'est aussi pour moi, le lieu d'exprimer toute ma gratitude envers toutes ces personnes avec qui j'ai eu le plaisir de partager cette aventure scientifique. Merci à NIAMIEN Adou Franck, OCHOU Arsène, Docteur DONNOU Venance, Frédi AGBOYESSOU, YAPO Ayenon, GUEHI Fatou, GUIA Stephane, KONE Mamadou, COULIBALY Ibrahima et KODJI Fourier Arnel, pour leur bienveillance, leur disponibilité et tous les bons moments partagés, aussi bien dans les bureaux qu'en dehors.

Je souhaite adresser un remerciement tout particulier à Adou, Arsène, Venance, Frédi et Yapo, que je considère aujourd'hui comme de véritables grands frères. Nous avons beaucoup ri ensemble, partagé des discussions enrichissantes, des repas improvisés et des moments inoubliables. Je ne résiste pas à évoquer une scène culte : celle où YAPO, par excès de certitude, refusa de suivre ADOU pour prendre un certain bus... et se retrouva à porter sa valise sur la tête, en pleine nuit et en plein froid, à la sortie du métro de Ramonville, pour rejoindre le CNES-IAS. J'espère sincèrement qu'on se retrouvera pour en rire encore longtemps et pourquoi pas revivre d'autres instants suspendus, entre éclats de rire, soutien fraternel et souvenirs inoubliables.

Un merci tout aussi sincère à GUIA et KONE, dont l'aide précieuse dans mes démarches administratives depuis la Côte d'Ivoire a été déterminante alors que je poursuivais ma thèse à

Toulouse. Votre soutien à distance a été inestimable. Merci à vous tous, et bon courage pour la suite de vos parcours respectifs.

Merci aussi à l'ensemble du personnel technique du réseau INDAAF pour son travail de terrain remarquable et son engagement constant.

J'ai eu la chance de bénéficier du soutien financier du projet européen H2020 Marie Skłodowska-Curie Actions – Research and Innovation Staff Exchange Integrated Nitrogen Studies in Africa (H2020-MSCA-RISE INSA, GA 871944), qui m'a offert une précieuse opportunité de mobilité scientifique. Ce soutien a été complété par une bourse de mobilité délivrée par l'Ambassade de France en Côte d'Ivoire, à travers son Service de Coopération et d'Action Culturelle (SCAC), qui m'a permis d'effectuer plusieurs séjours de recherche à l'Université de Toulouse. Enfin, je remercie le Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique pour la bourse d'études hors Côte d'Ivoire dont j'ai également bénéficié.

À ma famille, en particulier à mon père et à ma mère, je dois une reconnaissance infinie pour leur amour inconditionnel, leur soutien constant, leurs conseils avisés et leur appui moral et financier, depuis mes premiers pas dans le système scolaire jusqu'aujourd'hui. Leur présence à chaque étape de mon parcours a été essentielle. Je remercie également mes frères et sœurs, dont les prières quotidiennes, l'attention bienveillante et le soutien sans faille m'ont profondément porté. Ils ne cessent de me rappeler combien je compte pour eux et à quel point ils sont fiers de moi, ce qui m'a donné la force d'aller jusqu'au bout de cette aventure.

Je suis profondément reconnaissant à SIALLOU Armande Benjamine, pour sa présence discrète mais précieuse, ses prières, son soutien moral indéfectible, sa patience, sa foi constante en moi et sa capacité à m'épauler dans les moments les plus sombres. Elle a su m'encourager, m'écouter et me redonner de l'élan quand j'en avais le plus besoin.

Mes pensées vont aussi à BOHUI Arthur, mon frère de toujours, compagnon de route depuis l'enfance, devenu au fil du temps un véritable pilier. Il a toujours cru en mes choix, m'a soutenu sans réserve, m'a inspiré et continue de le faire. Son regard, ses mots, sa fidélité et sa capacité à me relever dans les moments de doute ont été pour moi d'un soutien essentiel.

Sans eux, cette aventure n'aurait certainement pas eu la même saveur.

Je voudrais saluer, avec une sincère gratitude, tous mes amis qui ont contribué à rendre ce parcours plus humain, plus léger et plus riche en émotions. À Toulouse, j'ai eu la chance de croiser des personnes formidables avec qui j'ai partagé des instants précieux de fraternité, de joie, de rires et de soutien moral. Je pense notamment à OTE Aristide, HOUNGBEME Mickael,

BABALOLA Mickael, KASSA Aida, KASSA Brenda, Olive, Priscelle, DOSSOU Zabulon, Cathaline, Boris, Cédric, One, Josley, Antony, Saïd, Souleymane et Giles.

Parmi eux, Aida KASSA, OTE Aristide et HOUNGBEME Mickael ont joué un rôle tout particulier dans mon intégration en France, m'épaulant avec patience et bienveillance dans toutes les démarches administratives et sociales du quotidien : des formalités de santé, du logement aux obligations civiques. Leur aide concrète et leur présence constante m'ont été inestimables.

Je voudrais également remercier mes amis de longue date en Côte d'Ivoire, avec qui je partage des liens tissés depuis le lycée ou l'université : OUATTARA Parfait, TRAORÉ Aziz, ONLEU Ghislain, TRAH BI Caleb, GOLI Anicet, TRAH BI Cyrille, N'GOUANDI Jean-Yves, N'GORAN Ferdinand et YAO Isidore. Leur soutien fidèle, leurs encouragements répétés et leur confiance renouvelée ont toujours nourri ma motivation, même à distance. Grâce à eux, j'ai toujours eu un pied dans mes racines, une force qui m'a accompagné à chaque étape.

Je ne saurais terminer ces remerciements sans adresser ma gratitude à toutes celles et ceux qui, de près ou de loin, ont contribué à cette aventure, par un mot d'encouragement, un geste, une pensée ou une prière. À vous tous, merci.

LISTE DES SIGLES ET ABBREVIATIONS

AEE	: Agence Européenne pour l'Environnement
AMMA	: African Monsoon Multidisciplinary Analysis
ANN	: Artificial Neural Network
APDM	: Absolute Percent Departure from the Mean
ARM	: Atmospheric Radiation Measurement
BATS	: Biosphere-Atmosphere Transfer Scheme
BioNO	: Biogenic NO
BVOC	: Biogenic Volatile Organic Compounds
CAMS	: Copernicus Atmosphere Monitoring Service
CBM	: Carbon Bond Mechanism
CCM	: Climate Community Model
CCSM	: Community Climate System Model
CIO	: Convergence Intertropicale Océanique
CLM	: Community Land Model
CMIP	: Coupled Model Intercomparison Project
CNRS	: Centre National de la Recherche Scientifique
CP	: Convection Permitting
CRU	: Climatic Research Unit
CTM	: Chemical Transport Model
DACCIWA	: Dynamics-Aerosol-Chemistry-Cloud Interactions in West Africa
DEBITS	: Deposition of Biogeochemically Important Trace Species
DJF	: Décembre-Janvier-Février
ECHAM	: ECMWF Hamburg Model
ECMWF	: European Centre for Medium-Range Weather Forecasts
ERA	: ECMWF Reanalysis
FAAM	: Facility for Airborne Atmospheric Measurements

FIT	: Front InterTropical
FLDAS	: Famine Early Warning Systems Land Data Assimilation System
GCM	: General Circulation Model
GEO-Chem	: Goddard Earth Observing System Chemistry
GES	: Goddard Earth Sciences
GFED	: Global Fire Emissions Database
GMTED	: Global Multi-resolution Terrain Elevation Data
GPCP	: Global Precipitation Climatology Project
ICR	: Interannual Change Rate
ICTP	: International Centre for Theoretical Physics
IFEN	: Institut Français de l'Environnement
IGAC	: International Global Atmospheric Chemistry
INDAAF	: International Network to study Deposition and Atmospheric Chemistry in Africa
INSA	: Integrated Nitrogen Studies in Africa
INSU	: Institut National des Sciences de l'Univers
JEA	: Jet d'Est Africain
JET	: Jet d'Est Tropical
JJA	: Juin-Juillet-Août
JJAS	: Juin-Juillet-Août-Septembre
LAERO	: Laboratoire d'Aérodynamique
LAI	: Leaf Area Index
LBLRTM	: Line-By-Line Radiative Transfer Model
LOP	: Long Observation Period
LW	: Longwave Radiation
MAD	: Mean Absolute Deviation
MAM	: Mars-Avril-Mai
MCS	: Mesoscale Convective System
MEGAN	: Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature

MLP	: Multi-Layer Perceptron
MOA	: Mousson Ouest Africaine
MOLOCH	: MOdello LOCal in H coordinate
MM	: Mesoscale Model
MOZART	: Model for Ozone and Related chemical Tracers
MSCA-RISE	: Marie Skłodowska-Curie Actions–Research and Innovation Staff Exchange
NASA	: National Aeronautics and Space Administration
NCAR	: National Center for Atmospheric Research
NOAA	: National Oceanic and Atmospheric Administration
OI-WK	: Optimal Interpolation-Weekly
OMS	: Organisation Mondiale de la Santé
OMI	: Ozone Monitoring Instrument
OEA	: Ondes d’Est Africaines
PBL	: Planetary Boundary Layer
PCC	: Pattern Correlation Coefficient
RegCNET	: Regional Climate Network
RegCM	: Regional Climate Model
REMO	: Regional Model of the German Weather Service
RMSE	: Root Mean Square Error
RRTM	: Rapid Radiative Transfer Model
SH	: Saison Humide
SHL	: Saharan Heat Low
SON	: Septembre-Octobre-Novembre
SS	: Saison Sèche
SSMB	: Steady-State Mass Balance
SNO	: Service National d’Observation
SST	: Sea Surface Temperature
SUBEX	: Scheme for Subgrid-scale Convective Precipitation

TKE	: Turbulent Kinetic Energy
TRMM	: Tropical Rainfall Measuring Mission
TROPOMI	: TROPospheric Monitoring Instrument
UW	: University of Washington (schéma de turbulence)
VOC	: Volatile Organic Compounds
WAGES	: Water, Air, Greenhouse gases, Ecosystems and Soil
WFPS	: Water Filled Pore Space
WMO-GAW	: World Meteorological Organization-Global Atmosphere Watch
WP	: Work Package
WRF	: Weather Research and Forecasting model
ZCIT	: Zone de Convergence Intertropicale

LISTE DES TABLEAUX

Tableau I :	Sources de NH ₃ à l'échelle globale.	22
Tableau II :	Caractéristiques géographiques et écologiques des sites d'étude. . . .	39
Tableau III :	Synthèse des données de validation pour les paramètres physiques. . .	58
Tableau IV :	Synthèse des expériences de simulation.	65
Tableau V :	Résumé de quelques estimations d'émissions de BioNO issues de la littérature.	77
Tableau VI :	Émissions annuelles simulées de NO _x et NH ₃	102
Tableau VII :	Émissions saisonnières simulées de NO _x et NH ₃	102
Tableau VIII :	Biais moyen normalisé (Bias), erreur quadratique moyenne (RMSE) et coefficient de corrélation (R).	104
Tableau IX :	Dépôt simulé d'azote (TgN an ⁻¹) pour le domaine ^a	107
Tableau X :	Estimation des dépôts atmosphériques sec, humide et total d'azote pour l'ensemble du domaine.	112
Tableau XI :	Dépôt simulé d'azote moyen saisonnier et annuel pour différentes formes et espèces.	114
Tableau XII :	Estimation des dépôts atmosphériques secs d'azote pour l'ensemble des sites INDAAF.	117
Tableau XIII :	Estimation des dépôts atmosphériques humides d'azote pour l'en- semble des sites INDAAF.	125
Tableau XIV :	Tendances saisonnières de Mann-Kendall (ICR), valeurs de p et dé- viation absolue moyenne (MAD).	136
Tableau XV :	Dépôt d'azote simulé par saison, pour différentes formes et espèces et pour les années 2011 et 2019.	138

Tableau XVI : Variabilité interannuelle (MAD) du dépôt d'azote. 141

LISTE DES FIGURES

Figure 1 :	Conséquences en cascade d'une modification de la concentration en azote réactif (NO_x , NH_x , NO_3 , N_2O , NH_3 , N_{org}).	3
Figure 2 :	Précipitations mondiales approximatives dues à la mousson (en rouge). . .	9
Figure 3 :	Schéma illustrant la distribution zonale des composantes de la mousson africaine.	10
Figure 4 :	Schéma récapitulant les éléments clés de la mousson en Afrique de l'Ouest.	12
Figure 5 :	Positions extrêmes de la Zone de Convergence Intertropicale (ZCIT) et de la Confluence Intertropicale Océanique (CIO) et principaux flux des masses d'air à l'échelle de l'Afrique en janvier et juillet.	13
Figure 6 :	Image du canal vapeur d'eau du Meteosat du 17 juin 1997.	13
Figure 7 :	Précipitations journalières (en mm.jour^{-1}) moyennées entre 10°E et 10°W .	14
Figure 8 :	Les principaux climats en Afrique.	16
Figure 9 :	Carte de l'occupation du sol en Afrique.	18
Figure 10 :	Cycle troposphérique simplifié de l'ozone et des oxydes d'azote.	20
Figure 11 :	Cycle biogéochimique de l'azote dans le sol et émissions gazeuses qui en résultent.	24
Figure 12 :	Les différentes voies d'émissions et de dépôts de l'azote.	27
Figure 13 :	Localisation des 13 stations INDAAF sur la carte de végétation de l'Afrique.	40
Figure 14 :	Schémas représentatifs des structures verticales (a) et horizontale (b) du modèle RegCM5.	44
Figure 15 :	Émissions annuelles moyennes de NO et localisation des sites de mesure du réseau INDAAF.)	59

Figure 16 :	Fonction de densité de probabilités montrant les aires à l'intérieur des écarts-types.	62
Figure 17 :	Comparaison entre vitesses du vent de mousson.	69
Figure 18 :	Moyennes estivales simulées des précipitations et de la température de surface.	73
Figure 19 :	Diagramme de Hovmöller des précipitations mensuelles.	74
Figure 20 :	Émissions simulées de BioNO et comparaison de l'humidité du sol pour les saisons DJF et JJA.	76
Figure 21 :	Comparaison des concentrations de NO ₂ simulées.	80
Figure 22 :	Différences DJF et JJA des concentrations simulées.	81
Figure 23 :	Comparaison des concentrations moyennes annuelles de surface de NO ₂	82
Figure 24 :	Comparaison des colonnes troposphériques de NO ₂ et corrélation spatiale de Pearson associée.	83
Figure 25 :	Concentrations mensuelles moyennes de NO ₂ simulées pour les sites INDAAF.	87
Figure 26 :	Concentrations de surface de NO ₂ observées (INDAAF) comparées aux concentrations simulées.	87
Figure 27 :	Comparaison des concentrations de HNO ₃ simulées.	89
Figure 28 :	Concentrations mensuelles moyennes de HNO ₃ simulées pour les sites INDAAF.	91
Figure 29 :	Concentrations de surface de HNO ₃ observées (INDAAF) comparées aux concentrations simulées.	91
Figure 30 :	Comparaison des concentrations de O ₃ simulées.	93
Figure 31 :	Différences DJF et JJA des concentrations de surface simulées.	96
Figure 32 :	Concentrations mensuelles moyennes de O ₃ simulées pour les sites INDAAF.	97

Figure 33 :	Concentrations de surface de O ₃ observées (INDAAF) comparées aux concentrations simulées.	98
Figure 34 :	Émissions de NO _x et de NH ₃ entre 2011 et 2019.	101
Figure 35 :	Comparaison des concentrations mensuelles des espèces entre RegCM5 et INDAAF, moyennées sur la période 2011-2019.	103
Figure 36 :	Distribution spatiale des flux annuels de dépôt d'azote.	106
Figure 37 :	Dépôt sec spatial par espèce.	109
Figure 38 :	Dépôt humide spatial par espèce.	110
Figure 39 :	Contribution annuelle des dépôts d'azote au dépôt total d'azote.	113
Figure 40 :	Dépôt sec mensuel des espèces, moyenné sur la période 2011–2019, et concentrations de NO ₂ , NH ₃ et HNO ₃ pour chaque station.	116
Figure 41 :	Dépôt sec des espèces et dépôt sec total annuel, moyennés sur la période 2011–2019, pour chaque station.	117
Figure 42 :	Contribution des espèces au dépôt sec total, pour chaque station.	122
Figure 43 :	Dépôt humide mensuel des espèces, précipitation et concentration de HNO ₃ simulées pour chaque station.	124
Figure 44 :	Dépôt humide des espèces et dépôt humide total annuel pour chaque station.	126
Figure 45 :	Contribution des espèces au dépôt humide total, pour chaque station.	127
Figure 46 :	Moyenne mensuelle (moyennée sur 2011–2019) du dépôt total d'azote par espèce, sur les six stations.	128
Figure 47 :	Dépôt total annuel d'azote par espèce pour chaque station.	129
Figure 48 :	Contribution des espèces au dépôt total d'azote pour chaque station.	130
Figure 49 :	Contributions de NO _y et NO _y , par formes sèche et humide, au dépôt total d'azote pour chaque station.	130

Figure 50 :	Contributions des formes organiques et inorganiques au dépôt total d'azote pour chaque station.	131
Figure 51 :	Distribution spatiale saisonnière de la pente de tendance (ICR) pour les émissions de NO _x	134
Figure 52 :	Distribution spatiale saisonnière de la pente de tendance (ICR) pour les émissions de NH ₃	135
Figure 53 :	Tendances annuelles moyennes des variations des formes réduites et oxydées du dépôt total, humide et sec d'azote.	137
Figure 54 :	MAD simulés des dépôts totaux d'azote et des facteurs climatiques/émissions sur la période 2011–2019 pour les saisons DJF et JJA. . .	140
Figure 55 :	Comparaison entre la variabilité des dépôts humides des différentes espèces et celle des précipitations.	142
Figure 56 :	Tendances annuelles d'évolution des formes réduite et oxydée du dépôt total d'azote.	144
Figure 57 :	Contributions régionales des différents facteurs au dépôt sec total sous ses formes réduite et oxydée.	146
Figure 58 :	APDM saisonnier moyen du dépôt sec d'azote réduit (a-d) et oxydé (e-h) .	147
Figure 59 :	Corrélations entre le dépôt sec et les différents facteurs.	148
Figure 60 :	Contributions régionales des différents facteurs au dépôt humide total sous ses formes réduite et oxydée.	152
Figure 61 :	APDM saisonnier moyen du dépôt humide d'azote réduit (a-d) et oxydé (e-h).	153
Figure 62 :	Corrélations entre le dépôt humide et les différents facteurs.	155

LISTE DES ANNEXES

Annexe 1 : Schémas explicatifs du modèle de surface CLM (Community Land Model)

Annexe 2 : Paramétrisation de la vitesse de dépôt sec

Annexe 3 : Paramétrisation du module de NO biogénique (ANN)

Annexe 4 : Détails sur les indicateurs statistiques

Annexe 5 : Biais entre les simulations BASE et BIONO pour NO₂, NH₃ et HNO₃

INTRODUCTION

L'azote (N), bien qu'essentiellement présent dans l'atmosphère sous forme de diazote moléculaire (N_2), un gaz chimiquement inerte, joue un rôle central dans le fonctionnement des écosystèmes terrestres et aquatiques. Il constitue un nutriment indispensable à la croissance des plantes, à la constitution des protéines, des acides nucléiques et à de nombreux processus biologiques. Cependant, sous l'effet des activités humaines, le cycle naturel de l'azote a été profondément perturbé, entraînant une augmentation significative des formes réactives de l'azote (NH_3 , NO, NO_2 , HNO_3 , NO_3^- , etc.) dans l'environnement. Depuis la révolution industrielle, les apports anthropiques en azote réactif (Nr) ont considérablement augmenté, principalement à travers la combustion des énergies fossiles, l'utilisation d'engrais azotés en agriculture, la déforestation et les feux de biomasse (Galloway *et al.*, 2003 ; Vitousek *et al.*, 1997). Ce déséquilibre a entraîné un excès de Nr dans l'atmosphère, provoquant des impacts multiples sur la qualité de l'air, le climat, les sols, la biodiversité et les écosystèmes (Sutton *et al.*, 2013).

Un même atome d'azote réactif peut, après son émission, passer d'un compartiment environnemental à un autre : air, eau, sol, végétation, en engendrant une série d'effets successifs et cumulatifs. Ce phénomène est appelé cascade de l'azote (Galloway *et al.*, 2003) et illustre la nature systémique et interconnectée des impacts de l'azote réactif (Figure 1).

Dans l'atmosphère, les composés azotés réactifs interviennent dans la chimie photo-oxydante, notamment à travers la formation d'ozone troposphérique (O_3) et d'acide nitrique (HNO_3), et sont soumis à des processus de dépôt sec et humide vers la surface terrestre. Si ces dépôts peuvent enrichir temporairement certains écosystèmes en nutriments, leur excès entraîne une acidification des sols, une eutrophisation des milieux aquatiques, une perte de biodiversité, ainsi qu'une contribution indirecte aux émissions de gaz à effet de serre comme le N_2O (Liu *et al.*, 2013 ; Matson *et al.*, 2002). Les effets liés à cet excès d'azote concernent ainsi plusieurs domaines fondamentaux de l'environnement (Qualité de l'eau, Qualité de l'air, Gaz à effet de serre, Ecosystèmes et biodiversité, Sols).

À l'échelle mondiale, ces préoccupations ont conduit à la mise en place de réseaux de surveillance du dépôt azoté et à l'intensification des efforts de modélisation atmosphérique. Toutefois, ces efforts restent inégalement répartis, avec un net déficit de données et de connaissances sur les régions tropicales. L'Afrique, en particulier, combine des caractéristiques qui rendent l'étude du cycle de l'azote à la fois prioritaire et complexe : forte croissance démographique, pressions agricoles croissantes, combustion de biomasse étendue, conditions climatiques très contrastées, et faible densité de mesures in situ. Le dépôt atmosphérique d'azote, en particulier, reste mal

contraint en Afrique, malgré son importance dans les bilans biogéochimiques et les impacts écosystémiques (Delon *et al.*, 2012; Osohou *et al.*, 2021).

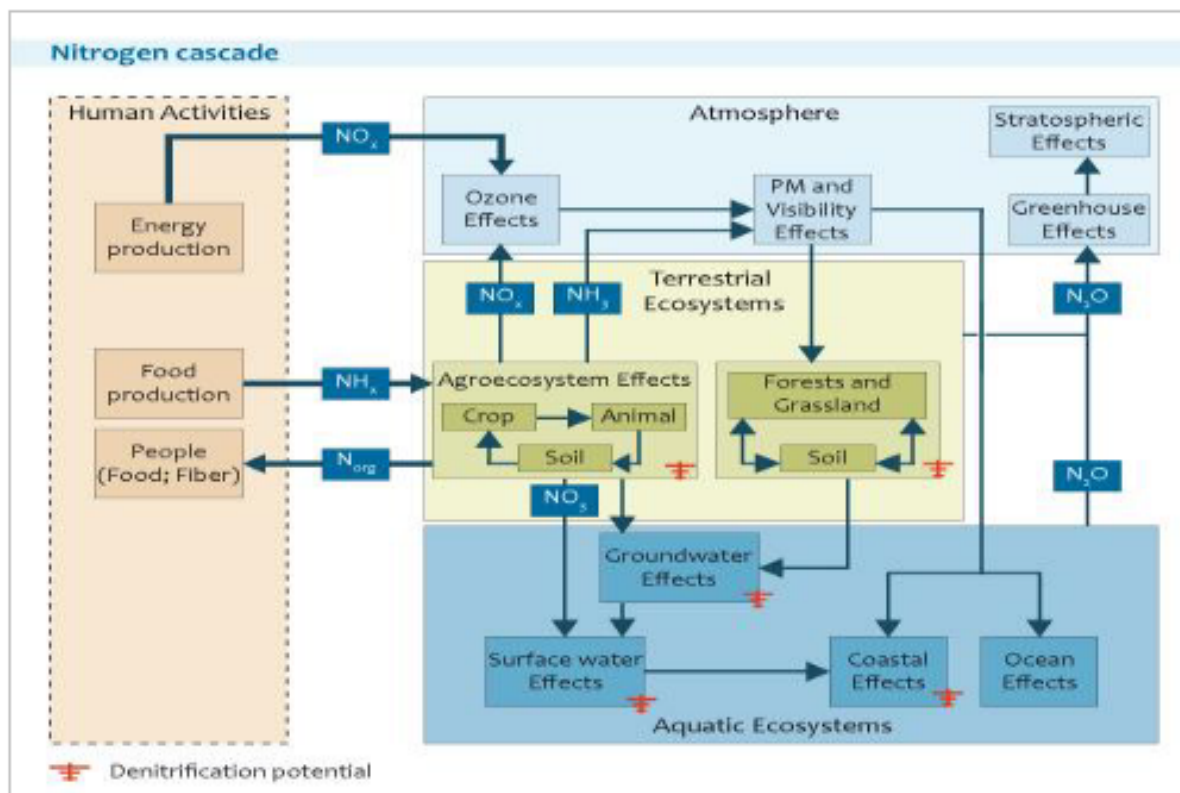


Figure 1 : Conséquences en cascade d'une modification de la concentration en azote réactif (NO_x , NH_x , NO_3 , N_2O , NH_3 , N_{org}).

Source : Galloway *et al.* (2003)

L'Afrique intertropicale illustre de manière frappante le paradoxe mondial du cycle de l'azote, résumé par l'expression «trop ou trop peu d'azote» (Sutton *et al.*, 2013). D'un côté, de vastes étendues agricoles souffrent d'une carence chronique en azote, freinant la productivité et compromettant la sécurité alimentaire (Zhang *et al.*, 2015). De l'autre, certaines régions, en particulier les zones urbanisées, les fronts agricoles intensifs et les zones soumises aux feux de biomasse, présentent des niveaux préoccupants d'azote réactif (Nr), avec des effets sur la qualité de l'air, les écosystèmes, et la santé humaine. Les pressions anthropiques devraient s'intensifier dans les prochaines décennies avec la croissance démographique, l'urbanisation rapide, l'expansion agricole, et la généralisation des engrais minéraux. Dans ce contexte, les projections indiquent que les dépôts d'azote pourraient augmenter de 50 % d'ici à 2100 en Afrique, en particulier sous forme humide (Lamarque *et al.*, 2013). Ces dépôts risquent d'interagir avec les changements climatiques, modifiant la répartition spatio-temporelle des espèces azotées, et renforçant les pressions sur les écosystèmes déjà fragilisés. Malgré ces enjeux, l'Afrique reste sous-documentée. Les données d'observation y sont rares, hétérogènes et souvent limitées à

quelques sites. Le réseau International Network to study Deposition and Atmospheric Chemistry in Africa (INDAAF) constitue à ce jour une source précieuse d'observations sur le continent. En documentant les dépôts humides et secs à travers des stations représentatives d'écosystèmes clés (savane sèche, savane humide, forêt équatoriale), INDAAF permet d'établir les premiers bilans atmosphériques azotés pour l'Afrique intertropicale (Galy-Lacaux *et al.*, 2009 ; Delon *et al.*, 2012 ; Ossouhou *et al.*, 2021). Toutefois, sa couverture reste insuffisante pour caractériser la variabilité régionale et interannuelle du dépôt d'azote à grande échelle.

Face à la rareté des observations et à la complexité des processus impliqués, la modélisation constitue un levier indispensable pour améliorer la compréhension du cycle atmosphérique de l'azote en Afrique. Les modèles climatiques régionaux, tels que le Regional Climate Model (RegCM) développé par l'International Center for Theoretical Physics (ICTP), permettent de simuler à haute résolution les processus couplés entre climat, émissions, transport atmosphérique, chimie troposphérique et dépôts. Ils offrent ainsi une vision intégrée des flux d'azote dans l'atmosphère et de leur variabilité spatio-temporelle. Le modèle RegCM5 a récemment été étendu pour intégrer de manière interactive les émissions de NO d'origine biogénique (BioNO) issues des sols, en réponse à l'humidité et à la température du sol, principalement. Cette capacité permet d'explorer plus finement les interactions entre climat, émissions de BioNO et pollution atmosphérique. Dans le contexte africain, ces interactions sont particulièrement marquées en raison de l'intensité des cycles saisonniers, des gradients climatiques latitudinaux et des perturbations anthropiques. C'est dans ce cadre que s'inscrit le projet INSA (Integrated Nitrogen Studies in Africa), dont l'objectif est d'analyser les déséquilibres du cycle de l'azote sur le continent africain. Ce projet, financé dans le cadre de collaborations internationales, s'appuie sur une approche pluridisciplinaire combinant observations in situ (notamment via le réseau INDAAF) et modélisation régionale couplée. Il vise à mieux comprendre la dynamique du dépôt atmosphérique d'azote et ses déterminants climatiques et anthropiques, afin de soutenir l'élaboration de stratégies durables en matière de gestion des nutriments.

Dans un contexte mondial de perturbation du cycle de l'azote, l'Afrique intertropicale fait face à une combinaison de pressions anthropiques croissantes (croissance démographique, expansion agricole, feux de biomasse, urbanisation, etc.) et de variabilité climatique marquée (alternance de saisons sèches et humides, intensification des extrêmes, etc.). Cette double contrainte rend difficile l'évaluation des dépôts atmosphériques de Nr, dont la quantification reste encore très incertaine sur ce continent, malgré leur rôle crucial dans les bilans biogéochimiques des écosys-

tèmes tropicaux. De plus, les dépôts d'azote, sous forme sèche (gaz et particules) ou humide (via les précipitations), résultent de processus dynamiques interdépendants : émissions naturelles et anthropiques, conditions météorologiques, circulation atmosphérique, couvert végétal, usages des terres, etc. Ces facteurs interagissent à différentes échelles spatiales et temporelles et leur observation reste insuffisante en Afrique, en raison du manque de réseaux de mesure denses et continus. Dans ce contexte, la présente thèse s'inscrit dans une démarche visant à mieux caractériser la variabilité des dépôts atmosphériques d'azote en Afrique intertropicale et à évaluer l'influence respective des facteurs climatiques et anthropiques. Elle repose sur l'utilisation du modèle climatique régional RegCM5, couplé à des modules interactifs d'émissions et de dépôts, et confronté aux observations de référence issues du réseau INDAAF. Ce travail, réalisé dans le cadre des programmes INSA et INDAAF, s'inscrit dans une logique intégrée à l'interface entre chimie atmosphérique, climat et biogéochimie des écosystèmes. Il vise à améliorer la compréhension des processus régissant le cycle atmosphérique de l'azote en Afrique intertropicale, à combler les lacunes sur la variabilité des flux, et à fournir des éléments scientifiques pour une gestion plus durable de l'azote sur le continent.

L'objectif principal de cette thèse est d'analyser la variabilité spatio-temporelle des dépôts atmosphériques d'azote réactif en Afrique intertropicale, en identifiant le rôle respectif des facteurs climatiques (pluviométrie, température, circulation) et anthropiques (émissions azotées) dans le contrôle de ces flux. Il s'agit de mieux comprendre comment les dynamiques atmosphériques, les émissions de surface et les conditions environnementales façonnent les concentrations et dépôts d'azote, à différentes échelles (locale, régionale, continentale) et sur différentes temporalités (saisonniers, interannuelle, décennale).

De façon plus spécifique, cette thèse s'articule autour de trois axes scientifiques majeurs :

- Le premier consiste en l'optimisation d'un modèle régional couplé climat-chimie atmosphérique (RegCM5) pour la région Afrique intertropicale ;
- Le deuxième est d'estimer les flux de dépôts d'azote simulés par le modèle à l'échelle régionale et celle des principaux écosystèmes africains ;
- Quant au troisième, il vise à analyser la variabilité interannuelle et les tendances des dépôts d'azote, en lien avec les facteurs d'émission et climatiques (pluviométrie, température, circulation atmosphérique).

Pour répondre aux objectifs énoncés précédemment, la thèse est structurée en cinq chapitres répartis entre deux grandes parties : une synthèse bibliographique et méthodologique, et une

partie résultats et discussion.

Le premier chapitre constitue une revue bibliographique, articulée en trois sections principales. La première présente les bases de la modélisation climatique de la physico-chimie atmosphérique, en détaillant les équations fondamentales, les processus et les paramètres utilisés dans les modèles. La deuxième est centrée sur les spécificités de la modélisation régionale appliquée au continent africain, en mettant en lumière les circulations régionales, la mousson ouest-africaine et les contrastes climatiques. Enfin, la dernière partie traite des gaz traces atmosphériques azotés (NO_2 , HNO_3 , NH_3 , etc.), de leurs sources, de leurs dépôts et des facteurs d'influence, notamment climatiques et anthropiques.

Le chapitre 2 décrit le matériel et les méthodes utilisés dans cette thèse. Il débute par la présentation des programmes INDAAF et INSA, puis décrit les sites d'observation, les protocoles de mesure des composés atmosphériques, ainsi que l'outil de modélisation utilisé dans cette étude, le modèle régional climatique RegCM5. Ce chapitre présente aussi les simulations menées, les bases de données utilisées pour la validation et les approches de traitement et d'analyse.

Le chapitre 3 évalue les performances du modèle RegCM5 dans la reproduction des champs climatiques et des concentrations de composés azotés, puis étudie l'impact régional des émissions biogéniques de NO (BioNO) sur la chimie atmosphérique. Ce chapitre inclut une comparaison multi-source (INDAAF, OMI, TROPOMI, GEOS-Chem, CAMS) des concentrations de NO_2 , HNO_3 , et O_3 .

Le chapitre 4 porte sur l'estimation spatialisée des dépôts humides et secs d'azote réactif sur l'ensemble de notre domaine d'étude. Il présentera un bilan des flux de dépôt, en distinguant les grandes classes d'écosystèmes (savane sèche, savane humide, forêt équatoriale), et proposera une comparaison des dépôts simulés avec ceux reconnus dans la littérature.

Le chapitre 5 analyse la variabilité interannuelle et les tendances des dépôts d'azote en lien avec les principaux forçages d'émission et climatiques (précipitations, température, circulation). Il inclut une analyse fine de la sensibilité des dépôts à ces facteurs, à la fois à l'échelle régionale et pour les stations du réseau INDAAF.

Enfin, une conclusion générale synthétise les résultats majeurs et propose des perspectives pour la recherche et la gestion durable de l'azote en Afrique.

**PARTIE 1 : SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE ET
METHODOLOGIE**

CHAPITRE 1 : CONTEXTE CLIMATIQUE ET PHYSICO-CHIMIE DE L'ATMOSPHERE EN AFRIQUE INTERTROPICALE

Ce chapitre introductif pose les bases nécessaires à la compréhension des dynamiques atmosphériques régionales et de la chimie des espèces azotées étudiées dans cette thèse. Tout d'abord, il s'intéresse à la description des principales caractéristiques climatiques et météorologiques spécifiques à la région Afrique, qui conditionnent le comportement des composés atmosphériques. Ensuite, il présente les principales espèces azotées impliquées dans la chimie atmosphérique et leurs interactions. Enfin, il introduit la modélisation atmosphérique régionale, outil central de cette étude, qui permet de simuler et d'analyser les processus physiques et chimiques à l'échelle locale et régionale.

1-1- Contexte climatique

L'Afrique est caractérisée par des conditions climatiques particulières, qui influencent fortement la distribution et la dynamique des composés dans l'atmosphère. Cette section décrit les principales circulations atmosphériques et phénomènes météorologiques qui régissent le climat de cette région.

1-1-1- Principales caractéristiques de la circulation régionale en haute et moyenne troposphère

Près de la moitié de la population mondiale, surtout dans les pays en développement, subit les effets des climats de mousson. La figure 2 illustre les régions touchées par la mousson (en rouge), caractérisées par des précipitations estivales (JJAS) représentant plus de 55 % des précipitations annuelles totales et un taux de précipitations locales été moins hiver dépassant $2,5 \text{ mm.jour}^{-1}$. En Afrique, la circulation de la mousson se structure à l'échelle régionale autour de phénomènes clés comme le Jet d'Est Tropical (JET) et le Jet d'Est Africain (JEA) dans la haute et moyenne troposphère, ainsi que le flux de mousson et l'Harmattan en basse troposphère. De plus, cette circulation inclut une zone de convergence en basses couches, appelée Front InterTropical (FIT), et deux structures convectives principales : la Zone de Convergence InterTropicale (ZCIT) et la dépression thermique saharienne. Le cycle saisonnier de la mousson africaine est particulièrement important pour les populations d'Afrique de l'Ouest, qui se préoccupent des dates de début, de l'intensité et du retrait de la mousson. Tous ces points seront détaillés dans les sections suivantes pour une meilleure compréhension de chaque aspect.

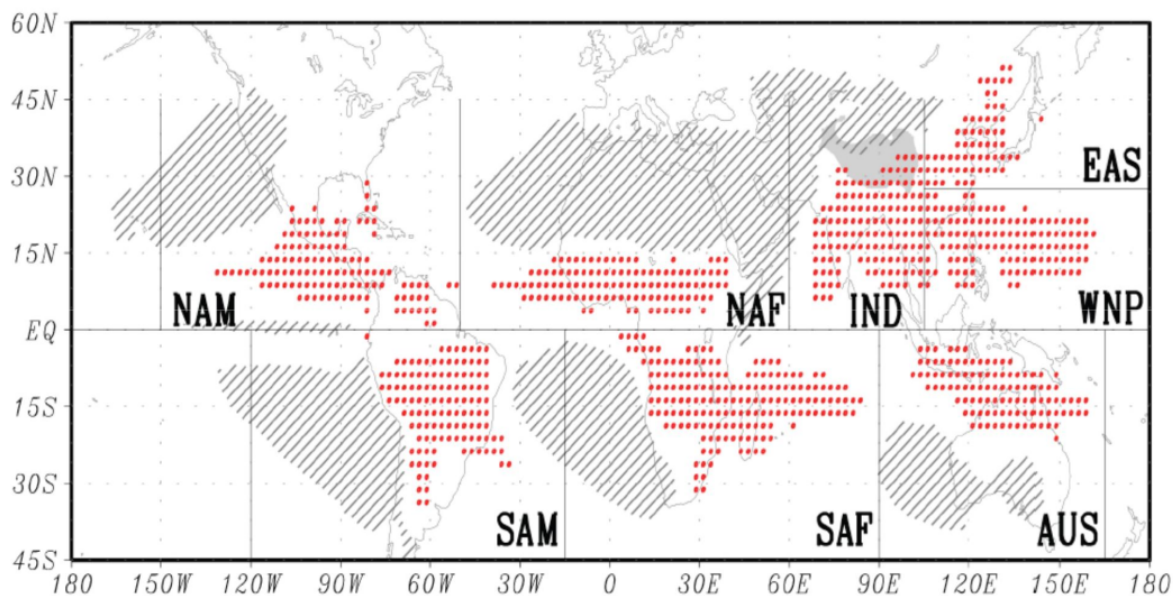


Figure 2 : Précipitations mondiales approximatives dues à la mousson (en rouge).

Les moussons régionales incluent : la mousson nord-américaine (NAM), la mousson nord-africaine (NAF), la mousson indienne (IND), la mousson est-asiatique (EAS), la mousson du Pacifique Nord-Ouest (WNP), la mousson sud-américaine (SAM), la mousson sud-africaine (SAF) et la mousson australienne (AUS).

Source : https://www.wcrp-climate.org/documents/monsoon_factsheet.pdf

1-1-1-1- Jet d'Est Tropical

Le Jet d'Est Tropical est un courant d'altitude qui se développe typiquement entre 100 et 200 hPa (Jenkins *et al.*, 2005) au-dessus de la région tropicale. Ce vent zonal se forme généralement entre les latitudes 5° et 10°N, traversant l'Afrique de l'Ouest autour de la latitude 10°N de fin juin à début septembre (Figure 3). Sa vitesse moyenne oscille entre 15 et 18 m.s⁻¹. À une échelle plus large, il est influencé par la mousson indienne via la branche supérieure de la cellule de Walker, qui transporte l'énergie d'est en ouest, et est renforcé par la branche supérieure de la cellule de Hadley, responsable du transport d'énergie du sud au nord. Ce phénomène résulte d'un gradient thermique entre l'océan Indien et le sud-est asiatique (Kanamitsu & Krishnamurty, 1978).

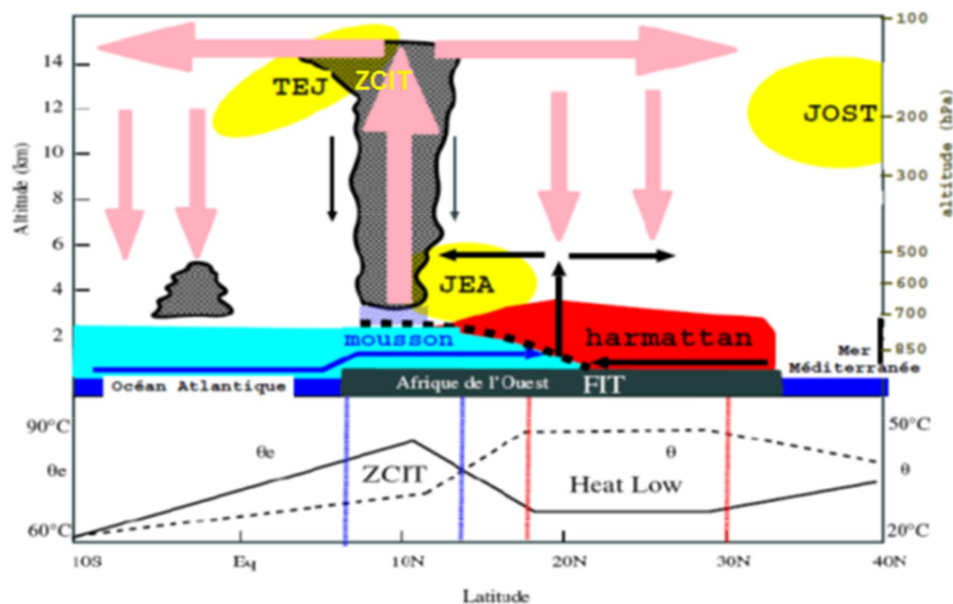


Figure 3 : Schéma illustrant la distribution zonale des composantes de la mousson africaine.

Le graphique inférieur présente les profils méridiens de température potentielle (θ) et de température potentielle équivalente (θ_e) dans la couche limite atmosphérique.

Source : Diba *et al.* (2018)

Le Jet d'Est Tropical structure la circulation divergente dans la haute troposphère (Malardel, 2005), et sa présence favorise les ascendances dans la moyenne troposphère, ce qui contribue à l'organisation de la convection à méso-échelle.

1-1-1-2- Jet d'Est Africain

Le Jet d'Est Africain (JEA) est un courant-jet de la moyenne troposphère qui s'étend sur environ 10000 km de long, prenant naissance près de la mer Rouge à la longitude 50°E et se dissipant près de l'Atlantique Ouest à la longitude 40°W. Pendant la période de mousson, de fin avril à fin octobre, le JEA se situe généralement autour de la latitude 10°N, mais durant l'été boréal (entre juillet et août), il migre vers environ 15°N avec une intensité moyenne atteignant 15 m.s⁻¹.

Ce jet joue un rôle essentiel dans la circulation de la mousson en Afrique de l'Ouest, influençant les instabilités baroclines et barotropes qui convertissent l'énergie en un transfert significatif de chaleur latérale et de quantité de mouvement zonal. Ces instabilités donnent naissance aux Ondes d'Est Africaines (OEA), caractérisées par une période de 3 à 5 jours et une longueur d'onde d'environ 3000 km. Les OEA se déplacent généralement d'Est en Ouest à une vitesse moyenne de 8 m.s⁻¹ et sont étroitement liées à la variabilité des systèmes convectifs, des précipitations et à l'activité cyclonique tropicale.

1-1-2- Principales caractéristiques de la circulation régionale en basse troposphère

1-1-2-1- Flux de mousson

Le terme "mousson" dérive de "mawsin" en arabe, signifiant saison. Cette saisonnalité est due à la différence de température entre le sud et le nord, avec de l'air frais et humide au-dessus de l'océan (26°C) contrastant avec l'air très chaud au-dessus du continent en été (entre 40 et 45°C), comme illustré dans le profil de température potentielle sur la Figure 3. Le flux de mousson (représenté en bleu sur la Figure 3) est un vent de sud-ouest qui souffle dans les basses couches de la troposphère, transportant l'humidité de l'océan Atlantique vers le continent. Sa hauteur diminue de 3000 m au-dessus de l'océan à moins de 1000 m entre les latitudes 15 et 20°N. Ce flux joue un rôle crucial en apportant l'humidité nécessaire à la formation des zones de convection profonde. L'intensité et le contenu énergétique du flux de mousson sont déterminants pour la localisation des zones de convection et modulent les précipitations en Afrique de l'Ouest (Beucher *et al.*, 2010).

1-1-2-2- Harmattan

L'Harmattan est un vent sec et chaud venant du Nord-Est, originaire du Sahara. Il souffle toute l'année sur l'Afrique du Nord, à l'est du méridien de Greenwich. En hiver, il est associé à une circulation anticyclonique intense au-dessus de la Libye, avec une vitesse moyenne mensuelle de 5-8 m.s⁻¹. En été, son intensité diminue notablement, avec des vitesses moyennes mensuelles de 3-5 m.s⁻¹, liées à une dorsale anticyclonique localisée dans le bassin méditerranéen. Sur le continent, le flux de mousson se rencontre avec celui de l'Harmattan (visible sur la Figure 3, créant ainsi une zone de convergence en basse altitude appelée Front Inter Tropical (FIT), généralement située vers 20°N en juillet (Beucher *et al.*, 2010).

1-1-2-3- Front InterTropical

La confluence entre le flux d'Harmattan et celui de la mousson génère une zone de convergence en basses couches connue sous le nom de Front Intertropical (FIT) (voir Figure 3, bande en noir). La trajectoire du FIT au sol suit approximativement les parallèles et varie au fil de l'année. Les conditions météorologiques en Afrique de l'Ouest sont influencées par les déplacements vers le nord ou le sud du système formé par les Anticyclones des Açores et de Sainte-Hélène, ainsi que par le positionnement du Front Intertropical. Ainsi, la météo locale dépend étroitement des différentes positions occupées par le FIT (Beucher *et al.*, 2010).

1-1-3- Structures convectives

1-1-3-1- Dépression thermique du Sahara (SHL : Saharan Heat Low)

Pendant la période allant du printemps à la fin de l'été, une zone extrêmement chaude et sèche est observée au nord du Front Intertropical (FIT) (Figure 4), favorisant ainsi la formation de la dépression thermique Saharienne. Cette dépression est caractérisée par une convection intense et sèche, confinée entre 600 et 700 hPa en raison de la subsidence à grande échelle de la cellule de Hadley (Gamo, 1996). Cette subsidence renforce la divergence au sommet de la dépression thermique Saharienne, inhibant ainsi le déclenchement de la convection en asséchant l'air et en stabilisant l'atmosphère.

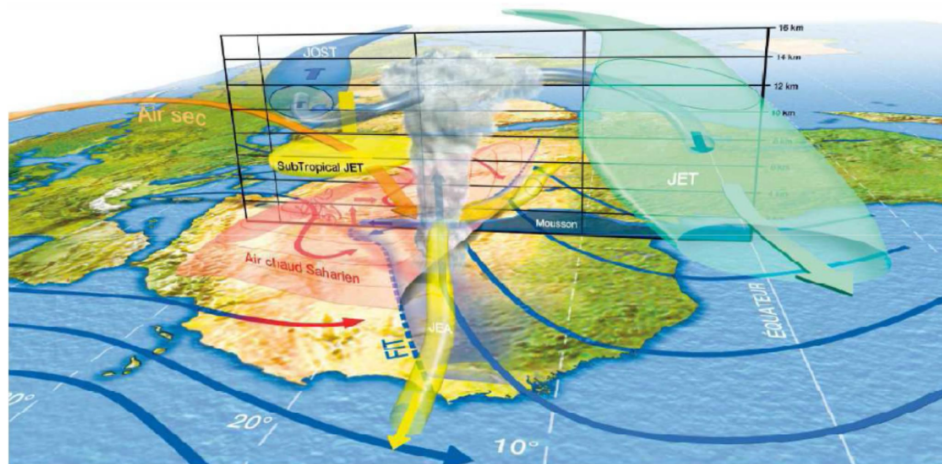


Figure 4 : Schéma récapitulatif des éléments clés de la mousson en Afrique de l'Ouest.

Source : Lafore *et al.* (2010)

Par conséquent, la dépression thermique Saharienne joue un rôle crucial dans la circulation de la mousson en limitant une partie de la convection humide tout en maintenant le Jet d'Est Africain. La dynamique de la mousson africaine est extrêmement complexe, impliquant une interaction complexe entre divers éléments, même si ces interactions peuvent être synthétisées de manière simplifiée à l'échelle zonale.

1-1-3-2- Systèmes convectifs de méso échelles (MCS) et la ZCIT

La Zone de Convergence Intertropicale (ZCIT) résulte de la convergence des alizés maritimes et continentaux, ainsi que de l'ascendance de l'air tropical chaud et humide au sein des cellules de Hadley (Adefolalu *et al.*, 1985; Sultan *et al.*, 2003). C'est le Front Intertropical (FIT) qui donne naissance à cette zone de convection humide dans la moyenne troposphère, comme illustré sur la figure 3. Les précipitations en Afrique de l'Ouest varient selon le déplacement saisonnier de la ZCIT sur le continent (Nicholson, 2009). Elle se caractérise par une bande nuageuse presque

continue autour du globe (Figure 3), atteignant son maximum au Nord en juillet et son minimum au Sud en janvier (Figure 5. La Confluence Intertropicale Océanique (CIO) marquée sur la figure représente la surface de contact entre la mousson et les vents alizés de Sud-Est (air indien humide et instable).

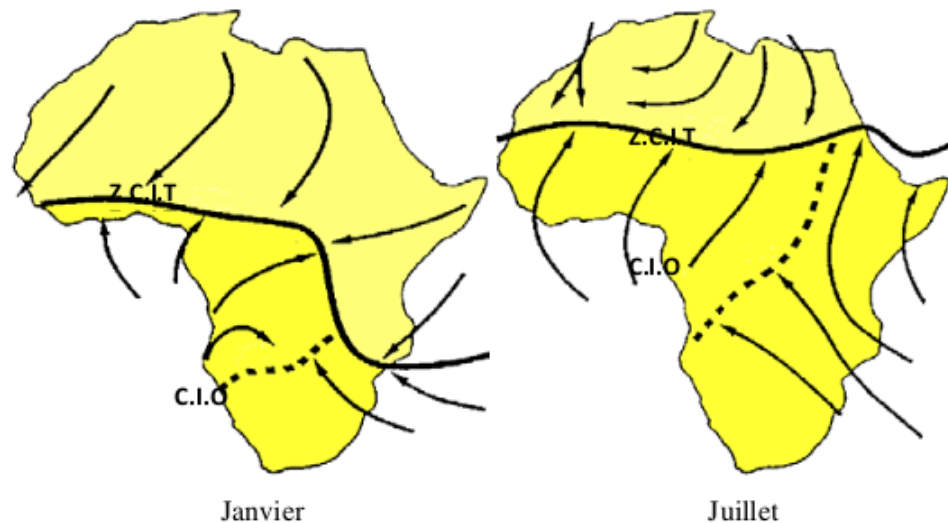


Figure 5 : Positions extrêmes de la Zone de Convergence Intertropicale (ZCIT) et de la Confluence Intertropicale Océanique (CIO) et principaux flux des masses d'air à l'échelle de l'Afrique en janvier et juillet.

Source : Lacaux *et al.* (1992)

Souvent associés aux ondes d'est africaines, les systèmes convectifs de méso-échelle (MCS), dont la trajectoire moyenne est représentée en trait plein sur la Figure 6, transportent la majeure partie des pluies d'Est en Ouest et peuvent éventuellement évoluer en cyclones une fois sur l'Atlantique.

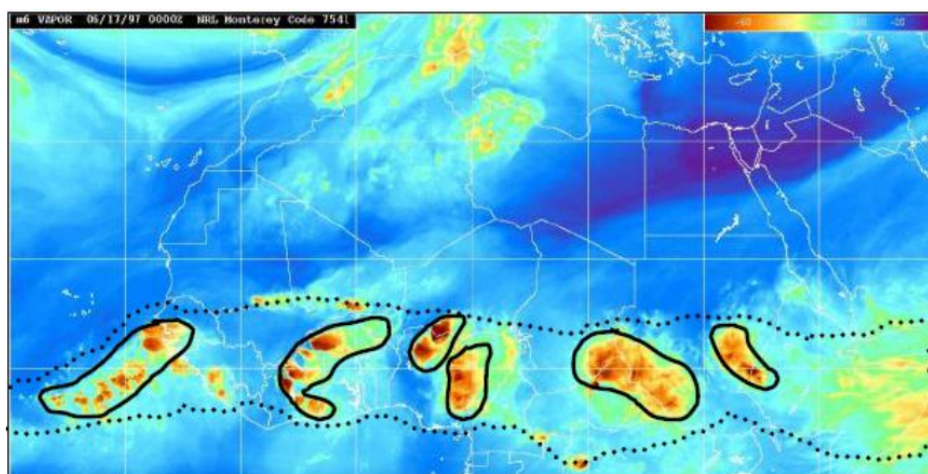


Figure 6 : Image du canal vapeur d'eau du Meteosat du 17 juin 1997.

Elle met en évidence les MCS (traits pleins) et la ZCIT (pointillés).

(Source : Adaptée à partir de Leduc-Leballeur, 2012).

Selon Mathon *et al.* (2002), les MCS expliquent jusqu'à 90% des précipitations dans la région soudano-sahélienne de l'Afrique.

1-1-4- Variation saisonnière de la mousson Ouest Africaine

Le cycle saisonnier de la mousson ouest-africaine (MOA) (Figure 7) est d'un intérêt primordial pour la communauté scientifique, en raison de l'importance du début et de l'intensité de la mousson pour les populations ouest-africaines.

La première saison des pluies observée dans la région ouest-africaine correspond au premier déplacement de la Zone de Convergence Intertropicale (ZCIT), qui passe brusquement de 2°N à 5°N au début de mai : c'est la phase pré-onset ou régime guinéen selon les climatologues.

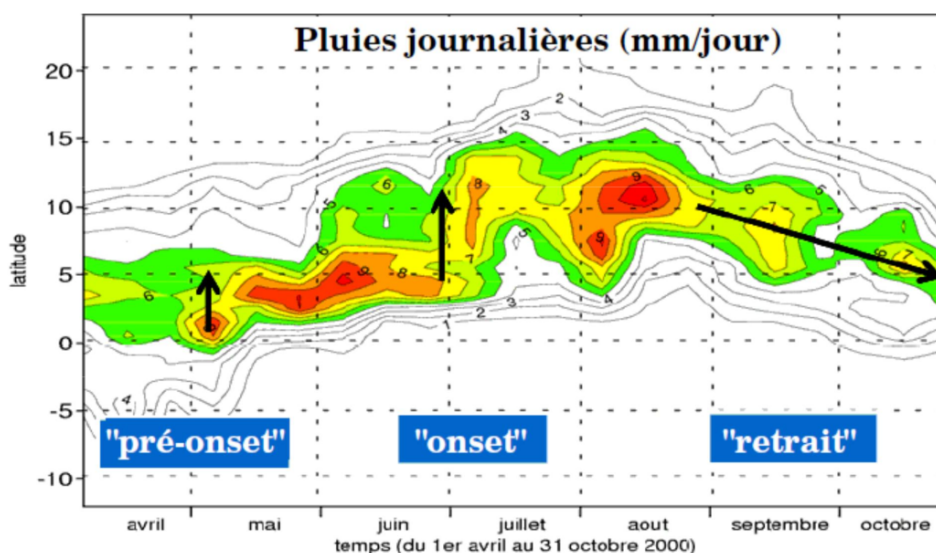


Figure 7 : Précipitations journalières (en mm.jour⁻¹) moyennées entre 10°E et 10°W.

La première flèche noire marque le premier déplacement de la ZCIT début mai, connu sous le nom de « pré-onset ». La deuxième flèche indique le second déplacement vers la fin juin, appelé « onset ». La troisième flèche correspond au début du retrait de la ZCIT vers le sud vers la fin août.

Source : Sultan and Janicot (2003)

La seconde période de pluies marque le deuxième déplacement de la ZCIT, qui passe de 5°N à 10°N en quelques jours vers la fin de juin : c'est la phase de début de la mousson, connue sous le nom d'onset ou régime sahélien.

Enfin, à partir de la fin août ou du début septembre, la zone de précipitations se retire vers le sud. Cette phase de retrait de la ZCIT semble beaucoup plus régulière que les phases d'onset ou de pré-onset. À partir d'octobre, le flux de mousson se replie vers le sud, entraînant avec lui le Front Intertropical (FIT), le Jet d'Est Africain (JEA) et le Trade Équatorial de l'Atlantique (TEA), qui migrent également vers l'équateur tout en perdant en intensité.

1-1-5- Climat

La saison des pluies affecte les régions situées dans le flux de mousson, et celles légèrement en retrait par rapport à la ZCIT. La convergence des deux masses d'air et la forte humidité du flux de mousson y favorisent la formation de grands systèmes convectifs qui entraînent des précipitations importantes. Comme mentionné ci-dessus, ces pluies débutent près du Golfe de Guinée vers mai, se déplacent ensuite vers le nord en Juin-Juillet-Août (JJA) pour revenir vers le sud vers Septembre-Octobre, suivant ainsi le déplacement de la ZCIT (Le Barbé *et al.*, 2002). Ces systèmes convectifs jouent un rôle crucial dans la redistribution et l'injection en haute troposphère de nombreux composés atmosphériques, notamment des NO_x, provenant des éclairs, des sols et des combustions de biomasse (Jacob *et al.*, 1996).

Les mouvements de la ZCIT et des masses d'air telles que l'Harmattan et le flux de mousson entraînent d'importantes variations climatiques saisonnières, marquant les saisons sèche et humide. L'Afrique connaît plusieurs types de climats principaux : aride, semi-aride, sub-humide et humide (figure 8).

Cette diversité climatique est une caractéristique essentielle du continent, avec un gradient de précipitations annuelles qui diminue en s'éloignant de l'équateur. Les précipitations annuelles moyennes vont de moins de 1 mm dans certaines zones du Sahara à environ 10 000 mm dans les montagnes de l'Ouest Cameroun (Debundscha). Ces précipitations sont le facteur climatique dominant en Afrique. La ZCIT est le principal déterminant de la pluviométrie. La variabilité interannuelle des précipitations est influencée par la structure des vents zonaux JEA et JET (Nicholson, 2008).

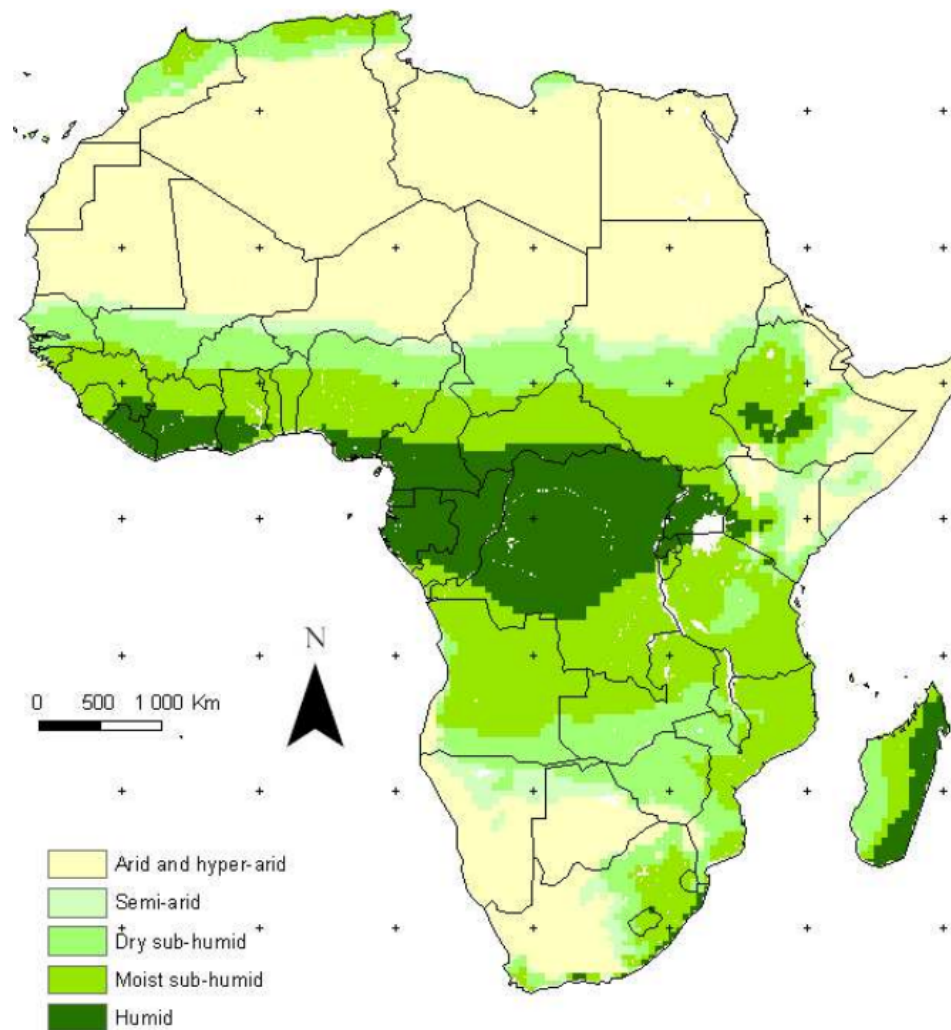


Figure 8 : Les principaux climats en Afrique.

Source : Fischer *et al.* (2002)

1-1-6- Végétation

Il est également essentiel de décrire les principales végétations de l'Afrique pour comprendre les sources de gaz traces atmosphériques et estimer les flux de dépôt sur le transect des principaux écosystèmes africains.

En Afrique, il existe une corrélation étroite entre les précipitations et les grands types de végétation. En raison du gradient climatique allant de l'hyper-humide à l'hyper-aride, les types de végétation varient de la forêt dense ombrophile au désert absolu (figure 9).

Les principales formations végétales comprennent :

- **Les forêts équatoriales humides**, principalement en Afrique Centrale, sont sempervirentes et présentent une végétation variée en quatre strates distinctes avec lianes et épiphytes. Ces forêts poussent sur des sols ferrallitiques, acrisols et nitrosols ;
- **Les savanes**, influencées par la ZCIT, se distribuent en bandes parallèles à l'équateur.

Elles varient des savanes guinéennes humides, riches en graminées et arborées, aux savanes soudaniennes et sahéliennes, caractérisées par des graminées pérennes et des cycles végétatifs courts ;

- **Les zones agricoles**, regroupant différents types d'occupations et s'étendant sur de vastes surfaces : cultures pluviales (> 50 %), mosaïques agriculture/végétation, vergers, cultures irriguées ou plantations arborées. Ces zones montrent une empreinte humaine importante sur les paysages naturels, en particulier au détriment des savanes.

Ainsi, les écosystèmes dominants en Afrique sont principalement la forêt, la savane et l'agriculture. Connaître et comprendre ces mécanismes climatiques est donc essentiel pour analyser la distribution et l'évolution des gaz traces azotés, qui sont abordés dans la section suivante.

1-2- Gaz traces azotés atmosphériques et facteurs d'influence

Les gaz traces azotés, tels que NO_x , NH_3 , ou encore HNO_3 , jouent un rôle central dans la chimie atmosphérique et la qualité de l'air. Cette section présente leurs sources, leurs transformations chimiques et les principaux facteurs qui influencent leur évolution dans le contexte africain.

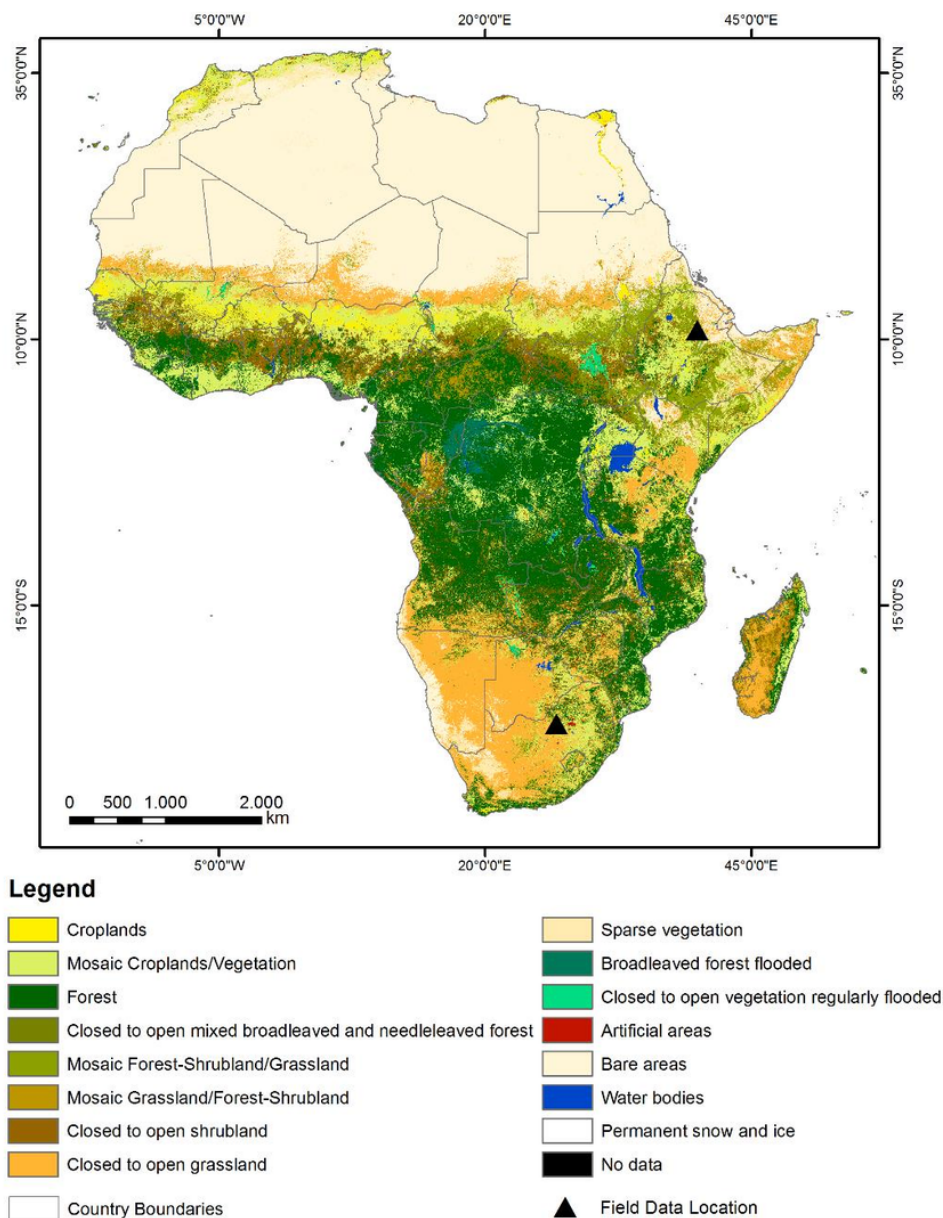


Figure 9 : Carte de l'occupation du sol en Afrique.

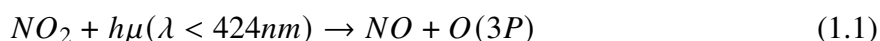
Source : Graw *et al.* (2016)

1-2-1- Généralités sur les sources de certains gaz traces azotés atmosphériques étudiés

1-2-1-1- Oxydes d'azote (NO_x) et espèces associées

Les oxydes d'azote (NO_x) présents dans l'atmosphère sont majoritairement composés de monoxyde d'azote (NO) à 95% et de dioxyde d'azote (NO₂) à 5% (Dhainaut, 2006) et constituent des polluants majeurs de l'atmosphère. Ils proviennent en grande partie de sources humaines (à 75 % : transports, industries, combustion de biomasse) et en moindre mesure de sources naturelles (à 25 % : éclairs, sols via la nitrification/dénitrification). Les NO_x, en particulier le NO₂, ont des effets néfastes sur la biodiversité et la santé humaine, augmentant les risques de

problèmes respiratoires. Les excès d'azote provenant des sources aériennes et terrestres sont une des principales causes de la diminution de la biodiversité (Sutton, 2011). Les NO_x provoquent des irritations bronchiques et aggravent les crises d'asthme chez les personnes sensibles (Dhainaut, 2006). Globalement, les émissions de NO_x contribuent à l'acidification, à l'eutrophisation et à la pollution photochimique, et sont éliminées de l'atmosphère par des processus de dépôt. Les oxydes d'azote jouent un rôle clé dans la formation de l'ozone troposphérique (O_3), par des réactions photochimiques impliquant le NO_2 . En effet, en présence de rayonnement UV, le NO_2 se photodissocie, libérant un atome d'oxygène qui réagit avec le dioxygène (O_2) pour former O_3 (eq. 1.1 - 1.3).



M représente une tierce molécule stable (N_2 ou O_2) et $\text{O}(3P)$ est l'atome d'oxygène dans son état fondamental. La production nette d'ozone dépend de la conversion du NO en NO_2 par des réactions qui ne consomment pas d'ozone, mettant en jeu des radicaux comme le hydroperoxyde (HO_2) ou le peroxyde (RO_2), issus de l'oxydation de composés carbonés tels que le CO , le CH_4 et d'autres hydrocarbures. Contrairement à certains gaz, l'ozone ne trouve pas son origine dans des processus naturels ou des activités humaines directes ; il est ainsi qualifié de polluant secondaire. Son apparition dans la troposphère découle principalement de réactions photochimiques impliquant des précurseurs comme le monoxyde de carbone (CO), le méthane (CH_4) et les composés organiques volatils (COV) non méthaniques, en présence d'oxydes d'azote (NO_x). Ces réactions, qui suivent un cycle de formation et de destruction complexe (Figure 10), engendrent un équilibre entre NO , NO_2 et O_3 .

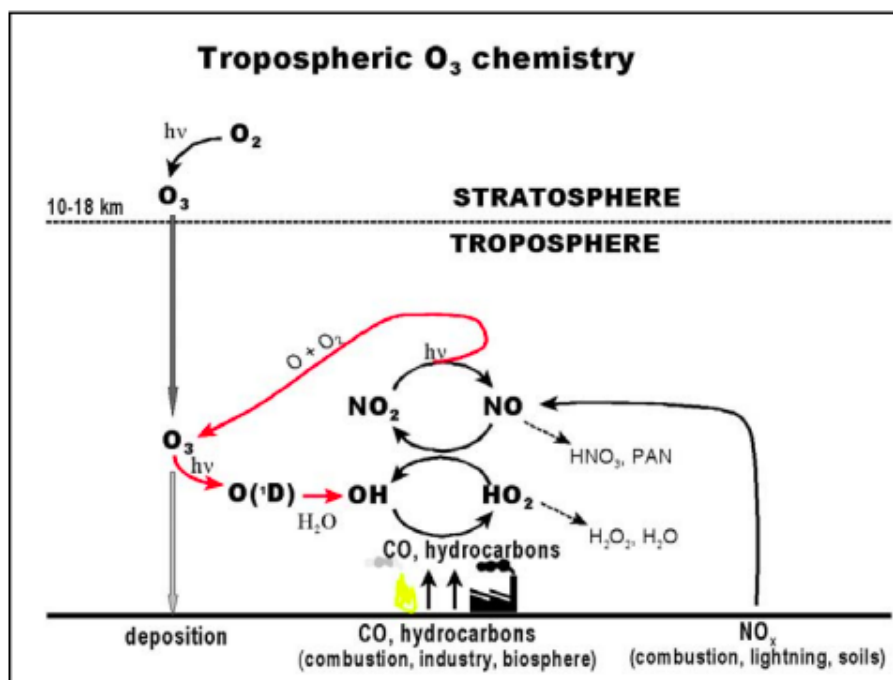


Figure 10 : Cycle troposphérique simplifié de l’ozone et des oxydes d’azote.

Source : Jacob (1999)

La relation entre la concentration d’ozone et les émissions de ses précurseurs n’est pas linéaire, mais dépend de la nature des émissions, en particulier du rapport COV/NO_x . Ces relations peuvent être décrites par deux régimes chimiques principaux : le régime " NO_x -limité" et le régime " COV -limité". Dans le régime " NO_x limité", la production d’ozone augmente avec la quantité de NO_x disponible et reste peu influencée par l’augmentation des COV . En revanche, dans le régime " COV limité", une augmentation des COV accroît la production d’ozone, bien que l’ozone reste également sensible aux NO_x , dont l’augmentation diminue la concentration d’ozone (Seinfeld and Pandis, 1998). Le principal moyen de diminuer la concentration d’ozone (puits d’ozone) dans la troposphère est son dépôt sec à la surface de la Terre, en plus de réagir avec le monoxyde d’azote (NO) et de se dissocier sous l’effet de la lumière solaire. À des concentrations élevées, l’ozone a des conséquences néfastes sur la végétation, telles que des nécroses et un jaunissement des feuilles, ainsi que sur la santé humaine. Chez les individus, l’ozone peut facilement pénétrer dans les voies respiratoires les plus fines, provoquant des toux, des problèmes pulmonaires, surtout chez les enfants et les asthmatiques, ainsi que des irritations oculaires. En outre, l’ozone agit comme un gaz à effet de serre, contribuant au réchauffement de la planète. Son accumulation croissante dans la troposphère et ses interactions avec d’autres gaz entraînent une augmentation du pouvoir oxydant de cette couche atmosphérique.

Au-delà de ce rôle dans la production d’ozone, les NO_x sont également impliqués dans la

formation de composés azotés secondaires plus stables, tels que l'acide nitrique (HNO_3) et le peroxyacétyl nitrates (PAN). L'oxydation du NO_2 en HNO_3 constitue une voie majeure de transformation dans l'atmosphère. Le HNO_3 , très soluble, est efficacement éliminé par lessivage dans les précipitations. Toutefois, en l'absence de dépôt, il peut se comporter comme une espèce réservoir des NO_x , capable de les régénérer par photolyse ou réaction avec les radicaux OH. Ce rôle lui confère une importance particulière dans les masses d'air transportées à distance des sources d'émission, où sa concentration peut dépasser celle des NO_x d'un facteur 5 à 10.

De manière complémentaire, le PAN ($\text{CH}_3\text{COO}_2\text{NO}_2$), issu de réactions entre le NO_2 et des aldéhydes organiques (comme l'acétaldéhyde), agit également comme réservoir de NO_x . Il est particulièrement stable à basse température, ce qui en fait un acteur important du transport de NO_x dans la haute troposphère et dans les régions froides. Sa demi-vie varie fortement avec la température : de quelques dizaines de minutes à 25 °C à plusieurs jours à -20 °C.

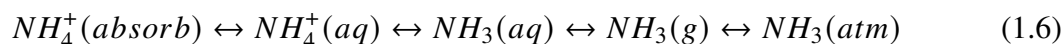
Ces composés, NO_x , HNO_3 et PAN, sont regroupés sous l'appellation NO_y , qui désigne l'ensemble des formes oxydées de l'azote réactif dans l'atmosphère. La composition de NO_y varie selon les processus de transport, les conditions photochimiques et les mécanismes de dépôt. Cette famille constitue un indicateur clé de la réactivité chimique de l'atmosphère, en lien étroit avec les niveaux de O_3 troposphérique.

1-2-1-2- Ammoniac

L'ammoniac (NH_3), bien que présent dans l'atmosphère à travers divers processus biologiques et dans des régions variées, ne participe pas aux réactions photochimiques car il n'absorbe pas les rayons UV. Sa principale contribution se manifeste dans la chimie des précipitations au sein de la troposphère. L'azote fixé dans l'atmosphère se trouve en grande partie sous forme d'ammoniac. Le tableau I présente les principales sources d'ammoniac à l'échelle mondiale. L'agriculture, en particulier l'élevage, est la principale source d'ammoniac provenant des activités humaines à l'échelle mondiale. L'ammoniac se forme par la décomposition de l'urée ($\text{CO}(\text{NH}_2)_2$) et de l'acide urique, contenus dans les excréments animaux, en ion ammonium (NH_4^+), grâce à l'action de l'enzyme uréase présente dans les fèces (Bouwman *et al.*, 1997) :



Ce processus se déroule également dans le sol où l'urée résiduelle et d'autres composés azotés subissent une décomposition similaire. En phase liquide, l'équilibre thermodynamique entre l'ammonium (NH_4^+) et l'ammoniac (NH_3) est maintenu, ce dernier pouvant passer en phase gazeuse (Bouwman *et al.*, 2002) :



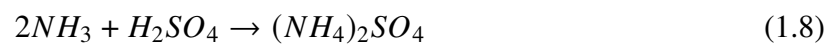
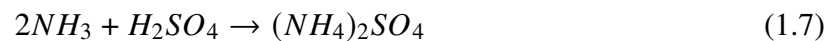
où (aq) désigne la phase aqueuse, (g) la phase gazeuse, et (atm) la perte dans l'atmosphère. Ces processus aboutissent à la volatilisation de l'ammoniac, influencée principalement par le pH et la température de la solution. De plus, l'ammonium est absorbé par les plantes, où il est nitrifié avant d'être utilisé dans le métabolisme Chaillou and Lamaze (1997). Une quantité notable d'azote des tissus végétaux est libérée sous forme de divers gaz azotés, y compris le NH_3 , lors de la combustion de la biomasse (Lobert *et al.*, 1990). À l'échelle mondiale, les émissions de NH_3 dues à la combustion de biomasse sont estimées entre 5 et 5,7 TgN an⁻¹ (Schlesinger and Hartley, 1992; Bouwman *et al.*, 1997) (tableau I).

Tableau I : Sources de NH_3 à l'échelle globale.

Sources (NH_3)	Estimations (TgN an ⁻¹)		
	A	B	C
Naturelles			
Écosystèmes non perturbés (sols)	10	5,1	2,4
Animaux sauvages	-	2,5	0,1
Mers et Océans	13	7,0	8,2
Total naturel	23	14,6	10,7
Anthropiques			
Élevage	32,3	22,5	21,6
Sols cultivés (fertilisation)	8,5	6,4	9,0
Cultures (plantes)	-	-	3,6
Combustion de biomasse	5	2,0	5,7
Combustibles fossiles	2,2	-	0,1
Excréments humains	4	-	2,6
Industrie	-	-	0,2
Total anthropique	50,0	30,9	42,8

Sources : A - Schlesinger and Hartley (1992), B – Dentener and Crutzen (1994), et C – Bouwman *et al.* (1997)

Les écosystèmes naturels sont aussi des sources d'émission d'ammoniac. Ces émissions résultent de la décomposition de la matière organique présente à la surface du sol, des rejets par les plantes, des excréments des animaux sauvages, ainsi que des océans. En tant que seul gaz alcalin naturel de l'atmosphère, l'ammoniac joue un rôle crucial dans la neutralisation partielle de l'acidité naturelle et anthropique. Il participe à des réactions comme celle-ci (Schlesinger and Hartley, 1992) :



L'ammoniac gazeux peut également réagir avec l'acide nitrique (HNO₃) pour former du nitrate d'ammonium (NH₄NO₃) solide, contribuant ainsi à la formation d'aérosols (Pio et Harrison, 1987). De plus, il se dissout dans les gouttes d'eau acide des nuages, neutralisant ainsi l'acidité des pluies en se combinant avec les protons pour produire l'ion ammonium (NH₄⁺). En conséquence, des sels de nitrate, de sulfate et de chlorure se retrouvent en solution. L'ammoniac présente également plusieurs impacts environnementaux. L'azote ammoniacal présent sur le sol stimule la nitrification et entraîne l'acidification du sol (Binkley and Richter, 1987). De plus, NH₃ peut causer l'eutrophisation des écosystèmes aquatiques, un phénomène où une surcharge de nutriments favorise la croissance excessive des algues. Tout comme les NO_x, l'élimination de l'ammoniac de l'atmosphère se fait principalement par des dépôts humides ou secs.

1-2-1-3- Cycle biogéochimique de l'azote

La disponibilité de l'azote joue un rôle crucial dans la biogéochimie globale, souvent limitant la production de la biosphère. Le principal réservoir d'azote est l'atmosphère, qui contient environ 3.8×10^{21} grammes de diazote (N₂) (Delmas *et al.*, 2005). Sous cette forme, l'azote n'est pas directement assimilable par les organismes vivants. Pour devenir disponible, il est fixé et transformé en ions ammonium (NH₄⁺) et en matière organique par une enzyme complexe appelée nitrogénase, présente dans les sols et dans les nodules des légumineuses qui pratiquent la symbiose avec des bactéries fixatrices d'azote. En dehors de ces légumineuses, l'azote est principalement assimilé par les plantes sous forme minérale, principalement sous forme d'ions nitrate (NO₃⁻) et ammonium (NH₄⁺), alors que dans le sol, il existe principalement sous forme organique. La transformation de l'azote organique en azote minéral est donc essentielle et est

contrôlée par des processus microbiens regroupés sous le terme de “cycle interne de l’azote” (Figure 11).

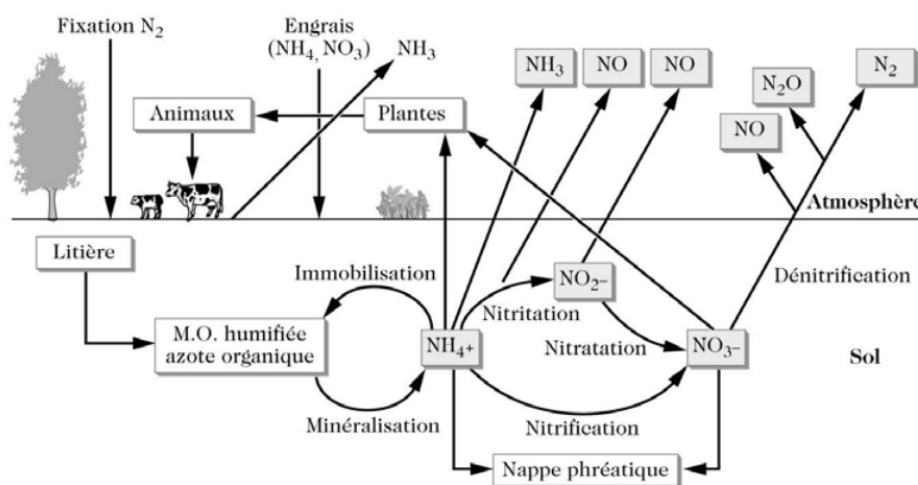


Figure 11 : Cycle biogéochimique de l’azote dans le sol et émissions gazeuses qui en résultent. Source : Delmas *et al.* (2005)

Ce cycle comprend deux processus principaux : la minéralisation, qui transforme l’azote organique en azote minéral, et l’immobilisation, qui réorganise l’azote minéral par les micro-organismes et l’intègre dans les molécules organiques. L’immobilisation implique la réorganisation de l’azote minéral du sol dans les cellules microbiennes et dans les tissus des végétaux. La minéralisation microbienne convertit l’azote organique du sol, comme les matières organiques fraîches et les litières, en azote minéral que les plantes peuvent absorber par leurs racines, principalement sous forme ammoniacale ou nitrique obtenue respectivement lors de l’ammonification et de la nitrification.

L’ammonification est le processus de dégradation de l’azote organique, tel que les protéines et les acides nucléiques, en composés plus simples comme les peptides, les acides aminés, les acides organiques et l’urée. Ce processus culmine avec l’hydrolyse de l’urée par l’enzyme uréase, synthétisée par les micro-organismes du sol comme les bactéries et les champignons, pour former de l’ammoniac (NH_3).

La nitrification est un processus biologique d’oxydation aérobie de l’ammonium (NH_4^+) en nitrite (NO_2^-) et en nitrate (NO_3^-) par des organismes autotrophes ou hétérotrophes. Ce processus est associé principalement à des émissions de NO (monoxyde d’azote), mais également de N_2O (oxyde nitreux). En milieu anaérobie partiel, où il y a une faible disponibilité en oxygène, les nitrates formés peuvent être réduits par des bactéries en diazote (N_2), un processus appelé dénitrification. Cette étape permet la régénération de l’azote moléculaire, tout en générant

principalement du N_2O , mais aussi du NO .

La nitrification est reconnue comme la principale source d'émission de NO par les sols, tandis que la dénitrification est la principale source d'émission de N_2O . Ces composés peuvent être libérés dans l'atmosphère sous forme gazeuse lorsque les conditions de transfert, influencées par la porosité et l'humidité du sol, le permettent.

1-2-2- Dépôts atmosphériques

1-2-2-1- Dépôt sec

Les dépôts atmosphériques peuvent affecter diverses surfaces, notamment les bâtiments, la végétation, les sols et les eaux de surface, à travers des processus non liés aux précipitations, qualifiés de "secs". Le dépôt sec se traduit donc par l'absorption des constituants chimiques au niveau de ces surfaces. Ces processus incluent la sédimentation, les impacts par inertie ou interception, ainsi que la diffusion. Alors que les trois premiers mécanismes concernent principalement les particules, la diffusion s'applique aux polluants gazeux et particulaires.

- **La sédimentation** est le résultat de la gravité terrestre agissant sur les particules et est plus significative pour les particules plus grosses. La vitesse de sédimentation dépend de l'équilibre entre la force de gravité et la force de friction de la particule dans l'air.
- **La diffusion** des polluants atmosphériques vers les surfaces se fait en plusieurs étapes. Initialement, il y a le transfert de l'atmosphère vers la surface grâce à la turbulence atmosphérique, suivi du transfert dans une couche superficielle par diffusion ou impact par inertie. Dans cette couche, où le mouvement est généralement en régime quasi-laminaire, la diffusion est prédominante pour les gaz, tandis que l'impact par inertie joue un rôle principal pour les particules. Une fois en contact avec la surface, les particules se déposent, tandis que pour les gaz, des processus tels que l'adsorption, l'absorption ou la réaction à la surface influencent le taux de dépôt.

Ces processus de dépôt sec peuvent être représentés comme une série de résistances au transport, analogues à un circuit électrique. En effet, dans cette analogie, le flux vertical F_X du constituant chimique X est comparable à l'intensité électrique, tandis que la différence de concentration ΔX du gaz considéré entre deux hauteurs équivaut à la différence de potentiel ΔU . Par conséquent, la résistance totale au dépôt sur une surface homogène à une hauteur z est exprimée par le rapport

entre la concentration du constituant chimique et le flux vertical :

$$\Delta X = X(z_1) - X(z_2) \quad (1.9)$$

$$\Delta U = U_1 - U_2 \quad (1.10)$$

$$R_{tot} = \frac{X(z_1) - X(z_2)}{F_X} \quad (1.11)$$

$$R_{tot}(z) = \frac{-X(z)}{F_X} = \frac{1}{V_d(z)} \quad (1.12)$$

Par convention, le flux de dépôt est considéré comme négatif et la concentration comme nulle à la surface. La vitesse de dépôt (V_d) peut donc être assimilée à la conductivité du système atmosphère-surface pour le gaz considéré, reflétant l'efficacité de la surface à capter le gaz à un instant donné. La résistance totale R_{tot} représente la somme de la résistance aérodynamique, la résistance de la sous-couche laminaire et de la résistance de surface, dépendant chacune des propriétés physiques et chimiques des polluants et des particules. Les vitesses de dépôt varient selon les polluants, les conditions météorologiques et le type de surface, avec des variations diurnes et nocturnes dues à la turbulence atmosphérique et à la stabilité atmosphérique. Le modèle théorique utilisé pour la détermination des vitesses de dépôt sec des différents gaz traces étudiés est décrit dans le chapitre 2.

1-2-2-2- Dépôt humide

Les dépôts humides comprennent divers processus, notamment ceux liés aux précipitations comme la pluie, la neige et la grêle, ainsi que les dépôts associés à l'impact de gouttelettes de nuage sur une montagne ou la sédimentation des brouillards (figure 12). Les dépôts dus aux précipitations sont généralement les plus importants. Lors des précipitations, deux mécanismes principaux contribuent aux dépôts humides. D'une part, les particules servent de noyaux de condensation pour les gouttes de nuage, qui peuvent ensuite devenir des gouttes de pluie, intégrant ainsi les polluants. D'autre part, les polluants gazeux ou particulaires sont absorbés par les gouttes de nuage ou de pluie, où les gaz se dissolvent dans l'eau et les particules sont captées par collision. Ce phénomène est appelé "rain-out". Les précipitations peuvent également nettoyer les polluants présents entre la surface terrestre et la base du nuage. Ce processus affecte les polluants gazeux solubles dans l'eau et les particules qui entrent en collision avec les gouttes de pluie. Plus un polluant est soluble, plus il sera efficacement éliminé. Pour les particules, les collisions avec les gouttes de pluie peuvent résulter de la diffusion brownienne (importante pour

les particules ultra fines de moins de 0,1 micron), de l'impact par interception (prédominant pour les particules de 0,1 à 1 micron) ou de l'impact par inertie (prévalant pour les particules de plus de 1 micron). Dans le cas de l'impact par inertie, les particules légères suivent le flux d'air autour des gouttes de pluie, tandis que les particules plus lourdes ne peuvent pas les contourner et entrent en collision avec elles. Pour l'impact par interception, les petites particules évitent plus facilement le contact avec les gouttes que les plus grosses.

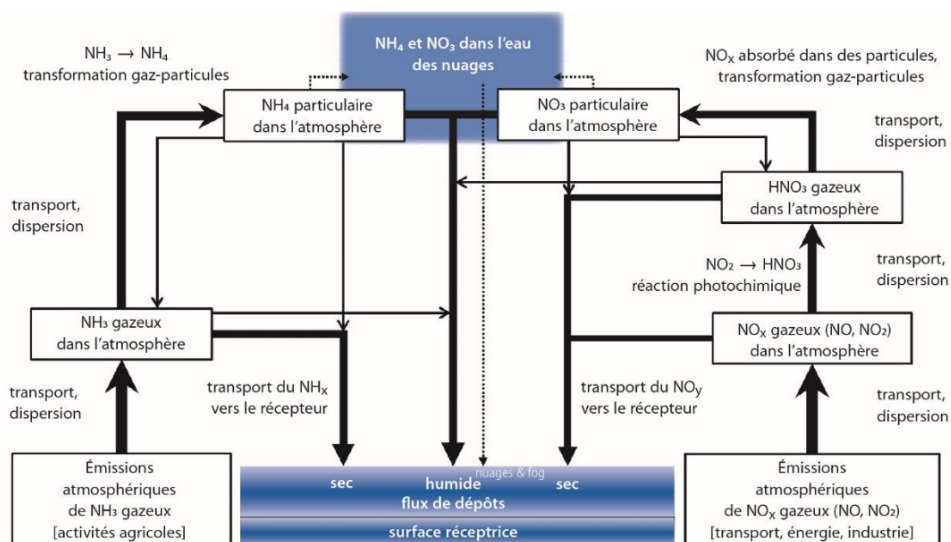


Figure 12 : Les différentes voies d'émissions et de dépôts de l'azote.

Source : Adaptée à partir de Hertel *et al.* (2006)

L'efficacité de capture des gouttes de pluie est moindre pour les particules fines (0,1 à 2,5 microns) comparativement aux particules ultra fines (moins de 0,1 micron) et aux grosses particules (plus de 2,5 microns). Le nettoyage des polluants sous le nuage précipitant, appelé "wash-out", peut être mesuré par un coefficient de lessivage. Ce coefficient varie selon la solubilité des polluants gazeux, la taille et la densité des particules, ainsi que l'intensité des précipitations.

Pour le calcul des dépôts humides dans le modèle, la méthode de calcul utilisée est décrite ultérieurement dans le chapitre 2.

1-2-3- Influence anthropique sur les espèces azotées

1-2-3-1- Pratiques agricoles

Les pratiques agricoles constituent une source majeure de perturbations dans les cycles naturels de l'azote. L'introduction d'engrais azotés, le brûlis des résidus de culture et autres pratiques agricoles modifient significativement la disponibilité et la transformation des espèces azotées dans l'environnement.

L'azote joue un rôle crucial pour la vie et est une ressource essentielle sur Terre. Pourtant, son accessibilité dans l'environnement est un défi majeur, le rendant l'un des éléments les plus limitants (Grindlay, 1997). Dans le but d'optimiser les rendements agricoles, l'utilisation d'engrais azotés de synthèse a considérablement augmenté au fil du temps, passant de 77,2 millions de tonnes de N en 1990 à 85,7 millions de tonnes de N en 2000 (Dawson and Hilton, 2011). Toutefois, l'application de ces engrais peut entraîner des processus de nitrification et de dénitrification si la demande en azote des cultures n'est pas immédiate ni totalement absorbée. Ceci augmente donc l'apport d'azote au sol et les émissions qui en résultent (cycle interne de l'azote) deviennent plus importantes comme le montrent certaines études avec N_2O (Schwenke and Haigh, 2016). Par exemple, Bouwman *et al.* (2002) ont modélisé les émissions globales de NO résultant de l'utilisation d'engrais azotés, montrant une augmentation significative des émissions dans les systèmes agricoles intensifs. Toutefois, l'intensité de ces émissions varie selon le type de fertilisant utilisé (Hénault *et al.*, 1998), les fertilisants organiques pouvant entraîner des émissions plus importantes que les fertilisants minéraux (López-Fernández *et al.*, 2007). Ainsi, optimiser l'application des engrais azotés, tant en quantité qu'en qualité, peut constituer un levier efficace pour réduire les émissions azotées des cultures tout en maintenant des rendements satisfaisants (Huang *et al.*, 2017).

Le brûlis des résidus de culture est également une pratique courante dans de nombreuses régions du monde, notamment dans les zones tropicales. La combustion de biomasse est utilisée à des fins de changement d'occupation du sol (par exemple, la conversion de forêt en parcelle agricole) ou de destruction de résidus de culture. Cette pratique libère de grandes quantités de composés azotés dans l'atmosphère, principalement sous forme de NO_x (oxydes d'azote) et NH_3 (ammoniac) ou encore de N_2O (Ogawa and Yoshida, 2005). De plus, cette combustion entraîne le retour au sol d'une partie de l'azote stocké par la plante (Ojima *et al.*, 1994), une fraction de celui-ci pouvant devenir disponible pour les micro-organismes producteurs, modifiant ainsi la dynamique locale de l'azote. Crutzen and Andreae (1990) ont étudié l'impact des brûlis de biomasse dans les régions tropicales, constatant que ces pratiques contribuent de manière significative aux émissions mondiales de NO_x et NH_3 , influençant les cycles biogéochimiques de l'azote à grande échelle.

1-2-3-2- Trafic et industries

Le trafic routier est une source majeure d'émissions d'azote dans l'atmosphère, principalement sous forme de NO_x (oxydes d'azote) et de NH_3 (ammoniac). Ces émissions sont principalement

issues de la combustion des carburants dans les moteurs des véhicules. Selon une étude de l'Agence Européenne pour l'Environnement (AEE) publiée en 2019, les transports routiers étaient responsables de plus de 40% des émissions totales de NO_x dans l'Union Européenne. En France, par exemple, le transport routier contribue à près de 60% des émissions totales de NO_x . De plus, une grande partie des émissions d'ammoniac dans l'atmosphère provient également du trafic, en particulier des véhicules diesel. Une étude menée par l'Institut Français de l'Environnement (IFEN) a révélé que les véhicules diesel étaient responsables de plus de 70% des émissions d'ammoniac liées au trafic routier en France. L'impact du trafic sur les émissions d'azote est également significatif au niveau mondial. Une analyse réalisée par l'Organisation Mondiale de la Santé (OMS) estime que les émissions de NO_x provenant des transports routiers ont augmenté de plus de 50% dans le monde entre 1990 et 2010. Par exemple, Keuken *et al.* (2012) ont montré que les émissions provenant du trafic routier augmentent les concentrations de particules de nitrate dans les zones urbaines, affectant ainsi la qualité de l'air et contribuant aux dépôts d'azote dans les écosystèmes urbains.

Les activités industrielles émettent diverses formes d'azote dans l'atmosphère, notamment l'ammoniac (NH_3) et les oxydes d'azote (NO_x). Ces émissions peuvent provenir de la combustion de combustibles fossiles, des processus chimiques, et des déchets industriels. Une fois dans l'atmosphère, ces composés peuvent se transformer et se déposer sur les sols et les plans d'eau, perturbant les cycles de l'azote et impactant la qualité de l'air et de l'eau. A l'instar d'autres métropoles, les mégacités africaines sont de plus en plus exposées à ces émissions. Par exemple, les travaux de Beirle *et al.* (2023) ont permis, à l'aide de l'instrument satellite TROPOMI, d'identifier les emplacements des sources industrielles majeures (centrales thermiques, fondrières de métaux, zones industrielles, etc.) d'émission de NO_x . Sur une période de mai 2018 à novembre 2021, six sur les dix plus grandes sources ponctuelles d'émission au monde sont situées en Afrique du sud. Ces travaux ont également montré qu'en Afrique, les dix plus grandes sources ponctuelles d'émission sont des centrales thermiques, dont neuf en Afrique du sud et une qui englobe les centrales d'Azito et de Vridi en Côte d'Ivoire.

Dans un contexte de démographie galopante que connaît l'Afrique, ces données mettent en évidence l'importance de réduire les émissions d'azote provenant du trafic routier et des industries pour améliorer la qualité de l'air et réduire les impacts sur la santé humaine et l'environnement.

1-2-4- Influence climatique sur les espèces azotées

1-2-4-1- Précipitation

Les précipitations jouent un rôle crucial dans le cycle de l'azote, influençant la disponibilité et la distribution des différentes formes d'azote dans les écosystèmes terrestres. Elles contribuent au dépôt humide de l'azote, transportant des composés azotés tels que le nitrate (NO_3^-) et l'ammonium (NH_4^+) vers le sol, enrichissant ainsi la disponibilité de ce nutriment pour les plantes (Galloway *et al.*, 2004). Cependant, les précipitations peuvent également provoquer le lessivage des sols, entraînant la perte de nitrate vers les eaux souterraines et de surface, ce qui réduit la disponibilité de l'azote pour les plantes et peut contribuer à la pollution de l'eau (Vitousek and Howarth, 1991). Les niveaux d'humidité du sol, modulés par les précipitations, affectent les processus microbiens de nitrification et de dénitrification, influençant la transformation et la disponibilité des formes d'azote. Les événements de précipitations extrêmes, comme les fortes pluies, peuvent provoquer un lessivage massif des nutriments et une perte importante d'azote des sols, impactant la fertilité et la productivité des écosystèmes (Galloway *et al.*, 2004). Enfin, la variabilité saisonnière des précipitations joue un rôle dans la dynamique de l'azote, les périodes humides favorisant la minéralisation et la libération de l'azote, tandis que les périodes sèches peuvent limiter ces processus (Vitousek and Howarth, 1991).

Ces interactions sont particulièrement critiques en Afrique, où l'agriculture dépend fortement des précipitations saisonnières et où les sols (souvent pauvres en matière organique), sont vulnérables au lessivage. La variabilité interannuelle des pluies, accentuée par le changement climatique, complique la gestion de l'azote dans les systèmes agricoles africains, avec des conséquences directes sur la sécurité alimentaire et la qualité des eaux de surface. Ces dynamiques complexes montrent l'importance de comprendre et de gérer les interactions entre les précipitations et le cycle de l'azote pour préserver la santé des écosystèmes et la qualité de l'eau en Afrique.

1-2-4-2- Température

La température affecte les processus microbiens et chimiques qui contrôlent la transformation et la mobilité des composés azotés dans le sol. En effet, la respiration du sol augmente avec la température selon l'équation d'Arrhenius, qui suit une croissance exponentielle (Lloyd and Taylor, 1994). Cette augmentation entraîne une forte consommation d'oxygène dans le sol, favorisant ainsi la formation de zones anaérobies propices à la dénitrification (Smith *et al.*, 2003). Les températures élevées peuvent également augmenter les taux de minéralisation de l'azote,

accélération ainsi la conversion de l'azote organique en formes inorganiques disponibles pour les plantes. Rustad *et al.* (2001) ont effectué une méta-analyse des effets du réchauffement sur la respiration du sol, la minéralisation nette de l'azote et la croissance des plantes, montrant que le réchauffement des sols augmente les taux de minéralisation de l'azote, avec des implications importantes pour la disponibilité de l'azote pour les écosystèmes. Les micro-organismes nitrifiants sont fortement influencés par la température et présentent une activité optimale entre 20 et 40 °C (Shammas, 1986; Stark, 1996). Quant aux micro-organismes dénitrifiants, ils seraient davantage affectés par les fluctuations de la teneur en eau du sol que par les variations de température (Szukics *et al.*, 2010).

1-2-4-3- Vent

Le vent influence la dispersion et le dépôt des composés azotés. Le transport éolien peut disperser les composés azotés sur de grandes distances, contribuant à la pollution atmosphérique et au dépôt d'azote dans des régions éloignées de la source. Le vent joue également un rôle dans la résuspension des particules contenant de l'azote, affectant ainsi les cycles locaux et régionaux. Okin *et al.* (2001) mettent en évidence le fait que le transport éolien de l'azote dans les écosystèmes arides a des effets significatifs sur la fertilité des sols et la composition végétale. Le vent peut transporter des particules riches en azote sur de grandes distances, ce qui entraîne une redistribution inégale de ce nutriment dans différents endroits. Dans les zones où ces particules se déposent, les sols peuvent être enrichis en azote, favorisant ainsi la croissance des plantes et modifiant la composition végétale locale en avantageant les espèces nécessitant plus d'azote. Toutefois, l'érosion éolienne peut également entraîner la perte de matière organique et de nutriments de surface, appauvrissant les sols et réduisant leur capacité à soutenir la végétation, ce qui peut mener à la dégradation de la végétation et à la désertification. Ces dynamiques complexes ont des implications importantes pour la gestion des terres dans les régions arides, soulignant la nécessité de stratégies de gestion visant à minimiser l'érosion, à préserver la fertilité des sols et à maintenir la biodiversité végétale.

Pour étudier précisément ces espèces et leurs interactions avec le climat régional, la modélisation atmosphérique constitue un outil indispensable, comme le montre la section suivante.

1-3- Modélisation atmosphérique : éléments utiles à la compréhension

L'atmosphère constitue un système complexe dans lequel interagissent continuellement des processus physiques (transport, turbulence, convection, etc.) et chimiques (réactions chimiques,

transformations de phase, dépôts, etc.), à des échelles spatiales et temporelles très variées. Dans ce contexte, la modélisation atmosphérique est devenue un outil fondamental pour représenter, comprendre et prédire le comportement des espèces chimiques dans l'air, en particulier lorsqu'il s'agit de combler des lacunes d'observation, de tester des hypothèses ou encore d'évaluer l'effet de différents forçages sur leur évolution.

Les modèles régionaux traduisent les équations fondamentales de la mécanique des fluides et de la chimie atmosphérique en un cadre numérique discret. Ils permettent de simuler les évolutions spatio-temporelles des concentrations en prenant en compte les émissions, les conditions météorologiques, la topographie, et les interactions entre gaz, aérosols et surfaces. Contrairement aux modèles globaux, les modèles régionaux offrent une meilleure résolution spatiale et une capacité à représenter les processus locaux, ce qui les rend particulièrement adaptés à l'étude de phénomènes régionaux (Baklanov *et al.*, 2014), comme ceux qui concernent l'Afrique intertropicale. Dans cette section, nous présentons (i) l'intérêt de cette approche dans un contexte africain caractérisé par une forte hétérogénéité des sources et un manque d'observations continues, (ii) les principes essentiels à la compréhension des simulations menées dans cette thèse, et (iii) le lien direct entre la modélisation et les espèces azotées étudiées.

1-3-1- Intérêt dans le contexte africain

Les régions d'Afrique subsaharienne, notamment l'Afrique de l'Ouest, sont confrontées à une rareté de données atmosphériques continues, qu'il s'agisse de stations de mesure, de suivis instrumentés ou de réseaux structurés (Marais *et al.*, 2014b). Cette situation limite la capacité à diagnostiquer les concentrations de polluants, à identifier leurs sources, et à comprendre leurs dynamiques.

Dans ce contexte, la modélisation joue un rôle central. Elle permet de :

- compléter les séries temporelles et cartographies d'observation ;
- tester des hypothèses sur la part respective des sources (biogéniques, anthropiques, etc.) ;
- évaluer l'influence des conditions météorologiques propres à la région (convection profonde, mousson, sécheresse) sur les flux de gaz et d'aérosols ;
- simuler des scénarios alternatifs (réduction d'émissions, changement d'usage des terres, etc.).

Par exemple, Barret *et al.* (2010) ont montré l'intérêt de ces approches pour l'étude du cycle de l'ozone en Afrique de l'Ouest. Dans une région où les données sont rares mais les enjeux

sanitaires et climatiques importants, la modélisation devient alors un outil d'aide incontournable pour des prises de décision.

1-3-2- Principes utiles : dynamique, physique, transport, chimie, dépôts

La modélisation régionale atmosphérique repose sur la résolution couplée de processus dynamiques, physiques et chimiques. Ces processus interagissent à chaque pas de temps et influencent ensemble l'évolution des espèces atmosphériques simulées.

1-3-2-1- Dynamique atmosphérique

Le noyau dynamique d'un modèle atmosphérique correspond à la résolution explicite des équations fondamentales de la mécanique des fluides (conservation de la masse, de l'énergie, de la quantité de mouvement) (Goosse *et al.*, 2010), qui permet de simuler les champs de vent, de pression, de température et d'humidité à chaque instant. Cette composante gouverne les principaux mouvements de l'atmosphère et détermine les conditions de transport des espèces chimiques.

1-3-2-2- Physique atmosphérique

Le noyau physique quant à lui désigne l'ensemble des processus sous-maille que le modèle ne peut pas résoudre explicitement, et qui sont donc paramétrés à l'aide de schémas spécifiques.

Parmi ces processus :

- la convection (profonde ou peu profonde), essentielle en Afrique intertropicale pour le transport vertical des gaz et aérosols par exemple,
- la microphysique des nuages (formation de gouttelettes, précipitations),
- les échanges turbulents à la surface (flux de chaleur, d'humidité, de quantité de mouvement),
- les processus radiatifs (absorption, diffusion par les gaz, les aérosols, les nuages),
- l'interaction sol-végétation-atmosphère.

Ces processus influencent la chimie en modifiant localement la température, l'humidité, l'insolation ou encore les précipitations.

1-3-2-3- Transport

Le transport désigne les déplacements des espèces chimiques dans l'atmosphère. Il comprend :

- l'advection (transport par les vents horizontaux et verticaux),

- la diffusion turbulente (liée à la stabilité de la couche limite),
- le transport convectif (rapide montée des masses d'air via la convection).

En Afrique intertropicale en particulier, ces processus sont fortement influencés par des dynamiques saisonnières telles que la mousson, l'harmattan ou encore les cellules convectives diurnes, décrites précédemment. Ils affectent fortement la dispersion, le confinement ou l'export des espèces gazeuses et particulaires.

1-3-2-4- Chimie atmosphérique

La chimie est modélisée à l'aide de mécanismes détaillés regroupant plusieurs dizaines à centaines de réactions, incluant l'oxydation, la photolyse, la formation secondaire d'aérosols, etc. Les modèles climatiques régionaux intègrent des schémas réactionnels spécifiques. Ces schémas permettent de simuler l'évolution d'espèces gazeuses dont les composés azotés. Notons également que ces réactions sont sensibles aux conditions locales (température, humidité, rayonnement solaire, etc.) et aux concentrations d'espèces précurseurs (COV, NO_x, etc.).

1-3-2-5- Dépôts

Les modèles prennent en compte deux mécanismes de perte :

- **Le dépôt sec**, déterminé par la nature des surfaces (végétation, sol nu, eau) et les propriétés des espèces (solubilité, réactivité, etc.),
- **Le dépôt humide**, principalement via le lessivage par la pluie, particulièrement efficace pour les espèces solubles (comme HNO₃ ou encore NH₃).

L'ensemble de ces processus, c'est-à-dire : dynamique, physique, transport, chimie, dépôts, est représenté dans les modèles régionaux. Leur prise en compte simultanée permet de reconstituer, de façon réaliste, les émissions, les transformations, les transports et les pertes des espèces gazeuses et particulaires simulées, dans un environnement contraint par des mesures ou des forçages météorologiques.

Dans cette thèse, ces principes sont mobilisés pour simuler la distribution et l'évolution des composés azotés (NO_x, HNO₃, PAN, NH₃, etc.) dans l'atmosphère africaine. Le vent, la convection et les précipitations influencent leur transport et leur lessivage ; la température et le rayonnement modulent les réactions de formation ou de dégradation ; les échanges avec la surface déterminent leur dépôt. Cette modélisation intégrée permet donc d'évaluer les dynamiques spatio-temporelles de ces espèces dans un environnement à forte variabilité météorologique et aux sources multiples, comme l'Afrique.

Conclusion partielle

Ce chapitre a permis de poser les bases nécessaires à la compréhension des mécanismes climatiques et chimiques influençant l'atmosphère en Afrique. La description des particularités météorologiques régionales, en particulier la mousson ouest-africaine, la dépression thermique saharienne, le flux d'Harmattan et les systèmes convectifs de méso-échelle, a souligné l'importance des phénomènes saisonniers et locaux, qui pilotent la dispersion et la transformation des polluants atmosphériques. Par ailleurs, la description des espèces azotées majeures a permis de cerner les interactions chimiques complexes qui affectent leur devenir dans l'air. Enfin, l'introduction à la modélisation régionale a mis en lumière la capacité de cet outil à représenter simultanément les processus dynamiques, physiques et chimiques, indispensables à l'étude approfondie de ces phénomènes et de leur interaction.

Les principes et contextes abordés dans ce chapitre serviront de référence pour le chapitre suivant qui décrira plus en détail le modèle utilisé dans cette étude, ses spécificités, ainsi que les paramètres et choix de configuration adoptés pour la simulation des espèces azotées en Afrique.

CHAPITRE 2 : MATERIEL ET METHODOLOGIE DE RECHERCHE

Ce chapitre décrit les outils, jeux de données et méthodes utilisés pour mener les différentes études dans le cadre de ces travaux de thèse. Il commence par une présentation des projets INSA et INDAAF, qui fournissent respectivement le cadre général du projet de recherche et les données de mesure in situ. Les stations du réseau INDAAF, réparties dans différents écosystèmes africains, offrent des observations de référence précieuses pour l'évaluation des simulations. Le modèle régional climatique RegCM5 constitue l'outil central de modélisation utilisé dans cette étude. Une description détaillée de son cœur dynamique (MOLOCH), des schémas physiques et chimiques adoptés, ainsi que des paramétrisations spécifiques comme celles relatives aux émissions biogéniques de NO, est fournie. Sont ensuite présentées les données utilisées en entrée et pour l'évaluation du modèle, incluant les données de forçage, les inventaires d'émissions, et les observations de surface et satellites mobilisées. La dernière partie de ce chapitre est consacrée aux méthodes statistiques mises en œuvre pour l'analyse des résultats, notamment l'évaluation des concentrations simulées, des tendances et de la variabilité interannuelle des dépôts d'azote simulés, des corrélations, ainsi qu'une régression multiple permettant d'estimer les contributions relatives des facteurs explicatifs aux variations des dépôts simulés.

2-1- Description et présentation des projets INSA et INDAAF

2-1-1- Projet INSA

Le projet INSA (Integrated Nitrogen Studies in Africa ; <https://doi.org/10.3030/871944>), lancé dans le cadre du programme H2020 MSCA-RISE de l'Union européenne, vise à analyser les différents aspects du bilan azoté en Afrique. Il réunit un réseau interdisciplinaire de chercheurs africains et européens issus des sciences de l'environnement et sociales.

À l'échelle planétaire, l'azote représente un nutriment vital pour la croissance végétale et la production alimentaire. Toutefois, l'Afrique fait face à un paradoxe lié à l'azote : certaines régions, comme le Sahel, présentent des sols appauvris en azote, tandis que d'autres, plus intensément cultivées (Afrique de l'Ouest, Afrique du Sud, Kenya), subissent une surcharge liée à la fertilisation excessive ou à la combustion de biomasse, avec des impacts sur la qualité de l'air et de l'eau.

Contrairement aux régions industrialisées (comme l'Europe, l'Amérique du Nord et l'Asie), l'agriculture africaine reste en grande partie déficitaire en azote, ce qui limite les rendements et aggrave l'insécurité alimentaire. INSA cherche à mieux quantifier les flux d'azote entre

l'atmosphère, les sols et les écosystèmes, et à établir un premier bilan azoté continental. Le projet s'appuie sur une approche interdisciplinaire intégrant chimie atmosphérique, écologie, qualité des sols et des eaux, biogéochimie et sciences sociales. Une attention particulière est portée à la sensibilisation et à l'éducation, à travers la production de supports pédagogiques pour divers publics.

INSA s'est donné pour objectifs de :

- examiner attentivement les effets, qu'ils soient bénéfiques ou préjudiciables, de la présence de l'azote dans les écosystèmes ;
- encourager activement une approche pluri et interdisciplinaire dans ses recherches et ses actions ;
- faciliter le partage et la diffusion des connaissances entre les scientifiques, les parties prenantes et les gestionnaires des terres ;
- sensibiliser de manière proactive les jeunes, les citoyens et les futurs décideurs aux divers rôles et aux conséquences, positives et négatives, de l'azote dans l'environnement ;
- développer des solutions concrètes et réalisables pour optimiser la gestion de l'azote et accroître son efficacité d'utilisation.

Cette thèse s'inscrit dans le cadre du **Work Package 4 (WP4)**, centré sur les interactions entre émissions, transport et dépôts d'azote, et leurs liens avec l'atmosphère, les écosystèmes et le climat. Deux axes principaux y sont développés : (i) la modélisation couplée chimie-climat à l'échelle régionale, et (ii) l'estimation des charges critiques azotées par le modèle de bilan de masse (SSMB). L'objectif final est d'évaluer les effets de ces interactions sur la durabilité agricole et la sécurité alimentaire, dans un contexte de fortes inégalités de disponibilité en azote.

2-1-2- Réseau INDAAF

2-1-2-1- Caractéristiques et description des sites INDAAF

Les programmes de mesure jouent un rôle crucial dans l'étude de la pollution de l'air et la chimie atmosphérique. En effet, les campagnes à long terme sont indispensables pour documenter les évolutions de la composition atmosphérique et caractériser la variabilité saisonnière et interannuelle. Or, les tropiques sont particulièrement pauvres en données d'observations de surface. Le programme INDAAF (International Network to study Depositions and Atmospheric chemistry in AFrica ; <https://indaaf.obs-mip.fr>) se consacre à la surveillance à long terme de la

composition atmosphérique et des flux de dépôts en Afrique depuis 1995. Il s'agit d'un Service National d'Observation (SNO) de l'INSU-CNRS, composante labellisée de l'Infrastructure Européenne ACTRIS, et participant à l'activité DEBITS du programme IGAC. Les données INDAAF forment une base unique pour les principaux écosystèmes africains, couvrant concentrations gazeuses, aérosols et chimie des pluies. Plusieurs études menées dans ce cadre ont permis de quantifier le dépôt humide d'éléments biogéochimiquement importants et d'identifier les sources atmosphériques correspondantes.

Le réseau comprend huit (08) stations en Afrique de l'Ouest et centrale (Mali, Niger, Côte d'Ivoire, Sénégal, Bénin, Congo, Cameroun) et cinq (05) stations affiliées en Afrique du Sud et sud de la Tunisie (Figure 13). Il vise à échantillonner un gradient nord-sud des écosystèmes (savanes sèches, humides, forêts) ainsi qu'un gradient est-ouest dans le Sahel, le long de la trajectoire des aérosols désertiques vers l'Atlantique tropical. Ces stations ont été décrites dans (Adon *et al.*, 2010) et dans (Marticorena *et al.*, 2010).

Nos travaux de recherche se focalisent principalement sur six (06) sites représentatifs (Figure 13) : savanes sèches (Banizoumbou ; <https://doi.org/10.25326/608> et Katibougou ; <https://doi.org/10.25326/604>), savanes humides (Djougou ; <https://doi.org/10.25326/605> et Lamto ; <https://doi.org/10.25326/275>) et forêts (Bomassa ; <https://doi.org/10.25326/607> et Zoétéélé ; <https://doi.org/10.25326/603>). Le tableau II regroupe leurs coordonnées, le pays, le climat, et les périodes représentatives des saisons sèche et humide.

Tableau II : Caractéristiques géographiques et écologiques des sites d'étude.

Ecosystèmes	Sites	Latitude, Longitude		Type de sol et/ou végéta- tion	Climat	Pays
Savanes sèches	Banizoumbou	13°18' 02°22' E	N,	Sols sableux à 91,2 %, brousse tigrée – jachère	Sahélien	Niger
	Katibougou	12°56' 07°32' W	N,	Sols sableux, arbustes cadu- cifoliés	Soudano- sahélien	Mali
Savanes humides	Djougou	09°39' 01°44' E	N,	Sols ferralli- tiques et fer- rugineux, mo- saïque de fo- rêts sèches et savane	Soudano- guinéen	Bénin
	Lamto	06°13' 05°02' W	N,	Sols ferrugi- neux, strates herbacée, ar- bustive et ar- borée	Guinéen	Côte d'Ivoire
Forêts	Bomassa	02°12' 16°20' E	N,	Forêt dense sempervirente	Équatorial	République du Congo
	Zoétélé	03°10' 11°49' E	N,	Forêt dense sempervirente	Équatorial	Cameroun

Savanes sèches (SH : Juin–Septembre, SS : Octobre–Mai), Savanes humides (SH : Avril–Octobre, SS : Novembre–Mars), Forêts (SH : Mars–Novembre, SS : Décembre–Février). SH : Saison Humide, SS : Saison Sèche.

Sources : Ossouhou *et al.* (2019).

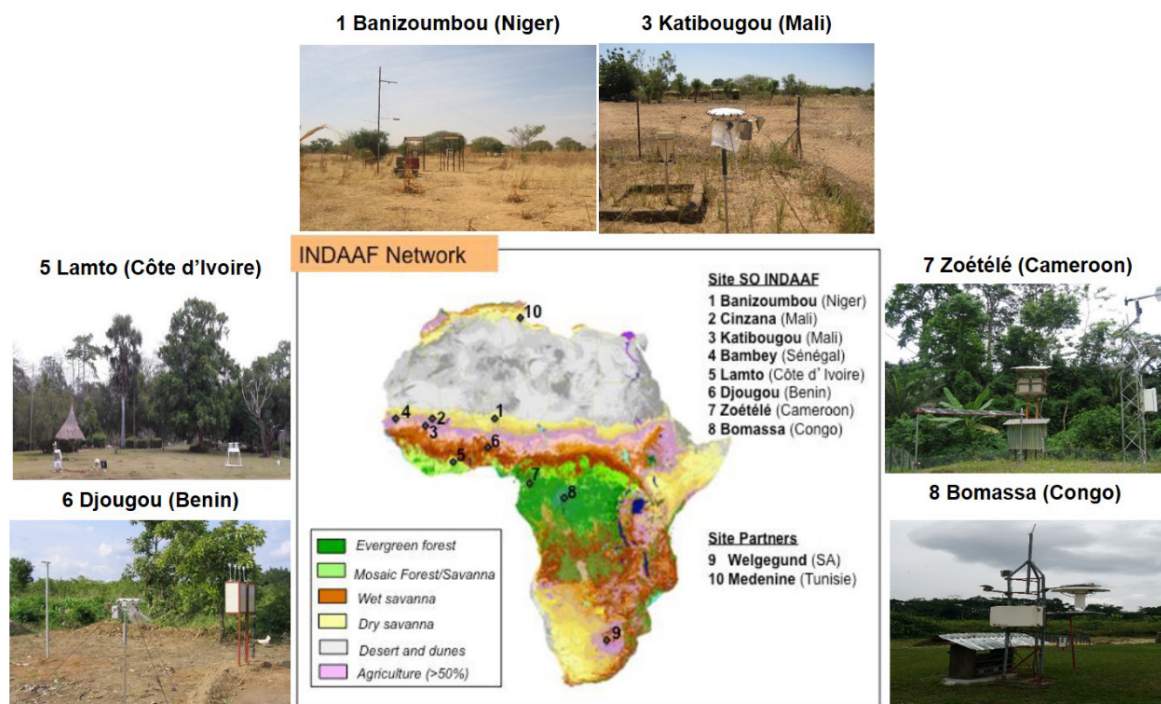


Figure 13 : Localisation des 13 stations INDAAF sur la carte de végétation de l'Afrique.

Zoom sur la végétation des stations d'étude (1) Banizoumbou (Niger), (3) Katibougou (Mali), (5) Lamto (Côte d'Ivoire), (6) Djougou (Benin), (7) Zoétélé (Cameroon) et (8) Bomassa (RDC).

Source : Ossouhou *et al.* (2019)

Les sites en savane sèche :

À **Banizoumbou** (Niger), quatre zones climatiques coexistent : saharienne au nord, sub-saharienne au centre, sahélienne à prédominance pastorale au centre-sud, et soudanienne agricole au sud. Située à 65 km à l'est de Niamey, la station INDAAF se trouve au cœur du Sahel, caractérisé par un climat semi-aride avec une saison sèche de huit mois (octobre à mai) et une saison humide de juin à septembre, la transition ayant lieu en mai.

La station **Katibougou** (Mali), près de Koulikoro à 60 km au nord-est de Bamako, est implantée dans un écosystème soudano-sahélien intact. Trois zones climatiques (saharienne, sahélienne, soudanienne) s'y distinguent selon l'influence de la mousson. La saison sèche dure aussi huit mois (octobre à mai), mais les pluies sont plus abondantes que dans d'autres savanes sèches, avec une transition en mai.

Les sites en savane humide :

Lamto (Côte d'Ivoire) est une réserve naturelle de 2500 ha située à 160 km au nord d'Abidjan, au sein du "V-Baoulé", région de savane guinéenne avec des forêts-galeries dans les bas-fonds (Menaut & César, 1979 ; Gautier, 1990). La végétation est dominée par des arbustes couvrant

trois quarts de la zone, et des graminées pérennes (Le Roux *et al.*, 1997). Le climat est chaud et pluvieux, avec une saison humide d'avril à octobre et une saison sèche de novembre à mars, avec août comme intra-saison.

La station de **Djougou** (Bénin), située à 450 km au nord de Cotonou, est un site méso-échelle d'AMMA (site d'Ouémé). Établie en 2005, elle est nichée dans une clairière entourée de forêts secondaires, cultures et jachères, soumise à des brûlis à petite échelle ces cinq dernières années. La végétation est une savane boisée de type soudanienne sud, sous climat soudano-guinéen marqué par une saison pluvieuse d'avril à octobre et une saison sèche de mi-octobre à mi-avril.

Les sites en forêt :

Zoétélé (ou Nsimi) (Cameroun) est située dans le village de Nsimi, arrondissement de Zoétélé, au Sud-Cameroun. Elle représente l'écosystème forestier équatorial. À 120 km au sud-est de Yaoundé, dans le bassin du Nyong, la région est marquée par une agriculture de défrichage et combustion des forêts. Le climat équatorial, influencé par plusieurs masses d'air et le recyclage de la vapeur d'eau, engendre des pluies abondantes toute l'année. La saison des pluies s'étend de mars à novembre, la saison sèche de décembre à février.

La station **Bomassa** (Congo), située dans le Parc National de Nouabalé-Ndoki, représente l'une des plus vastes réserves forestières d'Afrique centrale. Ce parc de près de 4000 km² est majoritairement couvert de forêts primaires et de plateaux vallonnés. Le climat équatorial y présente une saison humide de février à novembre et une saison sèche de décembre à janvier, comparable à Zoétélé.

2-1-2-2- Échantillonnage des gaz et analyse chimique

Le suivi des gaz a débuté en 1998 à Banizoumbou, Katibougou, Lamto, Bomassa et Zoétélé, puis s'est étendu à Djougou en 2005 dans le cadre du programme AMMA/LOP (Mougin *et al.*, 2009). Ces concentrations sont mesurées par échantillonnage passif selon Ferm *et al.* (1994), avec des capteurs développés par le Laboratoire d'Aérologie (LAERO) dans le cadre d'INDAAF, testés en régions tropicales et subtropicales (Carmichael *et al.*, 2003 ; Ferm & Rodhe, 1997). Les méthodes analytiques sont détaillées dans des études antérieures en Afrique (Adon *et al.*, 2010 ; Bahino *et al.*, 2018 ; Carmichael *et al.*, 2003 ; Ferm & Rodhe, 1997 ; Galy-Lacaux & Modi, 1998 ; Galy-Lacaux *et al.*, 2009).

Chaque site utilise deux capteurs passifs exposés simultanément à 1,5-2 m au-dessus du sol, en savane ou forêt, pour assurer la reproductibilité. La moyenne des doublons donne la concentration

mensuelle moyenne (Ossohou *et al.*, 2023). Après exposition, les capteurs (et blancs de terrain) sont envoyés au LAERO pour analyse par chromatographie ionique.

Depuis 1996, LAERO participe, deux fois par an, au programme d'assurance qualité WMO-GAW (World Meteorological Organization - Global Atmosphere Watch) pour les composés traces mesurés par chromatographie ionique, garantissant une précision analytique de 5 % ou mieux (réf. 700106 : <http://qasac-americas.org/>). La précision de mesure des capteurs passifs, évaluée par covariance sur doublons, est de 9,8 % pour NO₂, 20 % pour HNO₃ et 10 % pour O₃ (Adon *et al.*, 2010). Les limites de détection sont respectivement $0,2 \pm 0,1$ ppb (NO₂), $0,07 \pm 0,03$ ppb (HNO₃) et $0,1 \pm 0,1$ ppb (O₃).

2-2- Modèle régional climatique RegCM version 5

Initialement développé au National Center for Atmospheric Research (NCAR), le modèle climatique régional RegCM est maintenu et amélioré depuis plus d'une décennie au Abdus-Salam International Centre for Theoretical Physics (ICTP). Il est aujourd'hui un outil polyvalent appliqué à diverses régions géographiques, comme le soulignent Pal & Coauthors (2007) et Giorgi *et al.* (2012), et utilisé par une large communauté pour des études climatiques régionales (Giorgi and Mearns, 1999 ; Giorgi *et al.*, 2006).

La première version, RegCM1, conçue à la fin des années 1980 (Dickinson *et al.*, 1989 ; Giorgi & Bates, 1989), intégrait le schéma de surface terrestre BATS (Biosphere-Atmosphere Transfer Scheme) et le module de transfert radiatif CCM1 (Climate Community Model version 1) au sein du système MM4 (Mesoscale Model Version 4). Il comprenait aussi le schéma de convection cumulus de Kuo-Anthes (Anthes, 1977), un schéma de couche limite planétaire (PBL en anglais) dépendant de la stabilité (Blackadar, 1979) et un schéma implicite de précipitations. Le noyau dynamique hydrostatique utilisait une grille Arakawa B avec des coordonnées sigma-P. Les premières simulations multi-annuelles avec des conditions aux limites issues de modèles de circulation générale (GCM en anglais) ont été rapportées dès Giorgi (1990) et Giorgi *et al.* (1993a) avec une résolution d'environ 50-60 km.

La version RegCM2 a apporté un schéma d'intégration temporelle explicite-divisé, doublant le pas de temps et améliorant l'efficacité, ainsi que plusieurs améliorations physiques (Giorgi *et al.*, 1993b). Elle a été utilisée pour la première simulation multi-annuelle de changement climatique (Giorgi *et al.*, 1994) et pour une application paléoclimatique (Hostetler *et al.*, 1994), puis a évolué vers la version intermédiaire RegCM2.5.

RegCM3, documenté par Pal & Coauthors (2007) et Giorgi *et al.* (2006), a introduit un code

parallèle portable et convivial. Le réseau RegCNET a été créé pour faciliter l'échange entre utilisateurs et développeurs, regroupant aujourd'hui plus de 800 membres.

RegCM4 a représenté un progrès majeur avec plusieurs améliorations physiques et la conception en vue d'un modèle régional de système terrestre couplé. Une version non hydrostatique, RegCM4-NH, a également été développée. Le modèle est largement utilisé par une communauté scientifique croissante.

Avec RegCM5 (Giorgi *et al.*, 2023), le modèle inclut désormais des noyaux dynamiques hydrostatiques et non hydrostatiques, ainsi que plusieurs options physiques. Il peut être appliqué à n'importe quelle région du globe en configuration à domaine limité ou en bande tropicale. L'innovation principale de RegCM5 par rapport à RegCM4 est l'intégration du noyau dynamique non hydrostatique MOLOCH (MOdello LOcale in H coordinate) (Buzzi *et al.*, 2014; Trini Castelli *et al.*, 2020), développé au CNR-ISAC (Institute of Atmospheric Sciences and Climate - National Research Council). Cette amélioration vise à accroître précision et efficacité, notamment à haute résolution convective (quelques kilomètres). Elle est particulièrement intéressante pour la chimie atmosphérique, où le grand nombre de traceurs rend la réduction du coût numérique liée à l'advection cruciale pour les simulations longues (Coppola *et al.*, 2020; Pichelli *et al.*, 2021).

Le noyau MOLOCH est optionnel, offrant désormais trois choix de dynamique pour RegCM : RegCM4 hydrostatique (Giorgi *et al.*, 2012), RegCM4-NH non hydrostatique (Coppola *et al.*, 2021) et MOLOCH (ce travail). Toutes les options physiques, dynamiques et couplages de RegCM5 ont été décrites dans des travaux antérieurs (voir par exemple Coppola *et al.*, 2021). La section suivante détaille l'intégration du noyau MOLOCH, en lien avec les structures verticales et horizontales du modèle.

2-2-1- Coeur dynamique MOLOCH et les structures verticales et horizontales du modèle

Le noyau dynamique MOLOCH intégré dans RegCM5 (Davolio *et al.*, 2017) utilise une coordonnée verticale uniforme hybride ζ suivant le relief, définie dans l'intervalle $[0, Z_{top}]$ avec une résolution $d\zeta = \frac{Z_{top}}{kz}$, où kz est le nombre de niveaux verticaux et Z_{top} est le sommet de l'atmosphère du modèle configurable, où la vitesse verticale est nulle. La relation entre l'altitude du modèle et la coordonnée ζ est une fonction analytique de la topographie du modèle $h(x, y)$ et de la variable ζ :

$$z = h(x, y)G(\zeta) + Z_f e^{\frac{\zeta}{H}-1} \quad (2.1)$$

où $Z_f = \frac{Z_{top}}{e^{\frac{Z_{top}}{H}} - 1}$, H est une hauteur atmosphérique configurable, et la fonction $G(\zeta)$ est un polynôme en ζ :

$$G(\zeta) = 1 - a_0 \frac{\zeta}{Z_{top}} - (3 - 2a_0) \left(\frac{\zeta}{Z_{top}} \right)^2 + (2 - a_0) \left(\frac{\zeta}{Z_{top}} \right)^3 \quad (2.2)$$

avec a_0 étant une valeur configurable dans la plage $[0, 1]$. Ainsi, l'épaisseur des niveaux verticaux augmente avec l'altitude (Figure 14).

Les Figures 14 représentent les systèmes de grille verticale et horizontale utilisés par le cœur dynamique MOLOCH implémenté dans RegCM5. Celle de gauche illustre les niveaux verticaux suivant le relief et leur relation avec les hauteurs atmosphériques, montrant l'échelonnement du vent vertical (niveaux en pointillés) par rapport aux autres variables d'état du modèle (niveaux complets continus), ainsi que les conditions aux limites en haut et en bas de l'atmosphère.

Dans le plan horizontal (celle de droite), le modèle utilise une grille C d'Arakawa & Lamb (1977) avec un espacement uniforme projeté et des composantes de vent u et v décalées par rapport aux autres variables. Les variables scalaires sont définies aux points de grille X rouges, tandis que la composante du vent zonal U est définie aux points de grille verts et la composante du vent méridional V aux points de grille bleus.

Dans les sections suivantes, nous décrivons les principales paramétrisations utilisées pour cette étude.

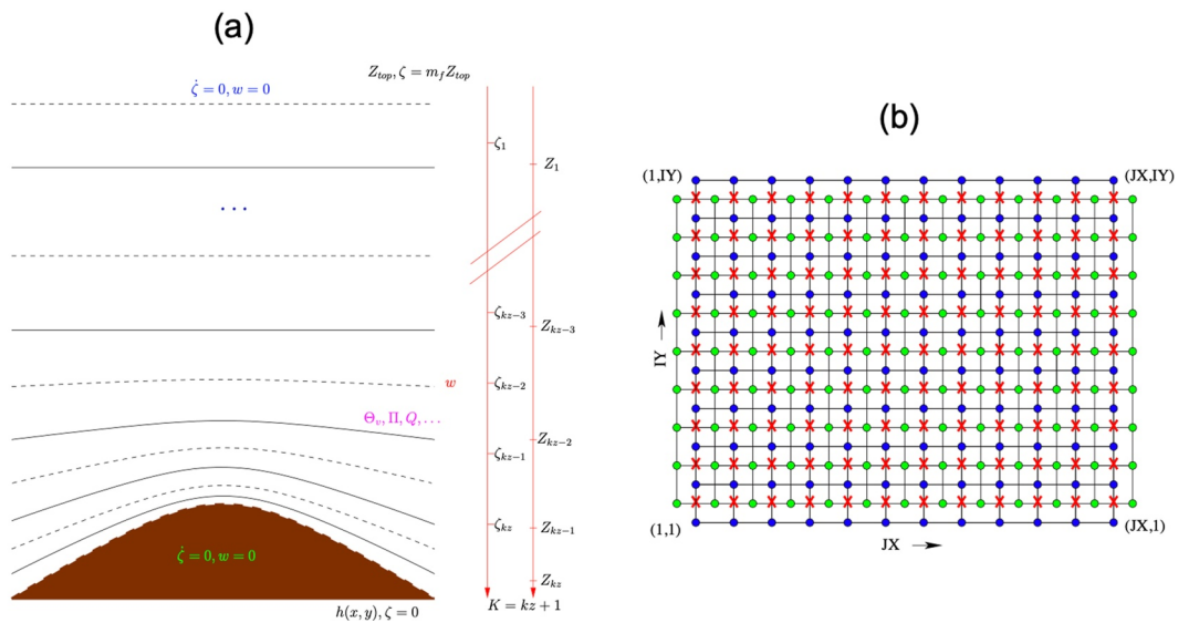


Figure 14 : Schémas représentatifs des structures verticales (a) et horizontale (b) du modèle RegCM5.

Source : Giorgi *et al.* (2023)

2-2-2- Principaux schémas physiques du modèle

2-2-2-1- Schémas de surface

Les processus de surface dans le modèle RegCM5 sont décrits par trois modèles :

- BATS : Biosphere-Atmosphere Transfer Scheme (Dickinson *et al.*, 1993)
- CLM 3.5 : Community Land Model version 3.5 (Oleson *et al.*, 2008)
- CLM 4.5 : Community Land Model version 4.5 (Oleson *et al.*, 2013)

Ces schémas intègrent divers processus physiques, biologiques et biogéochimiques des surfaces continentales. Ici, seul le CLM est présenté.

Le CLM, développé par le NCAR (Collins *et al.*, 2006), est un modèle de surface terrestre (LSM : Land Surface Model en anglais) de troisième génération. Contrairement à BATS (modèle de deuxième génération à grande feuille), CLM simule explicitement la végétation, la photosynthèse, le cycle du carbone et la dynamique végétale (Annexe I - Figures 1 et 2).

L'une des différences entre CLM et BATS réside dans leur discrétisation verticale. CLM utilise une discrétisation verticale plus fine, avec plusieurs couches de canopée et du sol, contrairement à BATS (Annexe I - Figure 3). Il modélise également les flux d'énergie de surface (rayonnement, mouvement, aérosols, poussières, etc.) (Annexe I - Figure 4) ainsi que les processus hydrologiques (précipitation, évaporation, ruissellement, infiltration, etc.) (Annexe I - Figure 5). CLM intègre aussi les processus biogéochimiques (C/N, BVOCs, photosynthèse, feux, etc.) (Annexe I - Figure 6) et les processus biogéographiques (urbanisation, couverture végétale, utilisation des sols) (Annexe I - Figure 7).

Le modèle CLM 4.5 comprend cinq (05) couches de neige et dix (10) couches de sol, avec une approche mosaïque tenant compte de quatre types de surface (glacier, lac, sol humide, végétation), subdivisés en 17 Plant Functional Types (PFTs). Les bilans d'énergie et d'eau sont calculés pour chaque PFT, puis moyennés à l'échelle de la maille.

L'adaptation de CLM à l'échelle régionale repose sur l'utilisation de données haute résolution (0,05° pour le sol, 0,5° pour la végétation), une meilleure initialisation de l'humidité du sol, et un traitement amélioré des zones côtières. La température du sol et l'humidité sont simulées avec un modèle à couches multiples. CLM applique une moyenne pondérée sur les mailles contenant à la fois océan et continent.

Le développement de CLM4.5 a permis d'intégrer des avancées récentes : meilleure représentation des flux de surface, nouveau modèle de lac, schéma vertical de biogéochimie du sol,

production et émissions de méthane, modèle de culture interactif (fertilisation, irrigation) (Oleson *et al.*, 2008).

Des études en Afrique de l'Ouest montrent que RegCM fonctionne correctement avec BATS (Diallo *et al.*, 2013; Koné *et al.*, 2022). Toutefois, CLM améliore les échanges surface-atmosphère et les rétroactions (Koné *et al.*, 2022). En revanche, son utilisation peut parfois réduire les performances du modèle, comme observé en Afrique de l'Ouest (Kouassi *et al.*, 2022) et en Inde (Halder *et al.*, 2015). Dans ce travail de thèse, CLM 4.5 a été choisi comme schéma de surface en raison de ses performances supérieures sur la région d'étude, notamment pour une meilleure simulation des processus biogéochimiques et des interactions sol-végétation-atmosphère en Afrique intertropicale.

2-2-2-2- Schémas de convection du cumulus

La convection est classée en deux types : profonde et peu profonde, selon l'ampleur verticale des mouvements convectifs. Les schémas de convection simulent les flux verticaux sous-maille, les mouvements compensatoires externes aux nuages, ainsi que les profils verticaux de chaleur et d'humidité. RegCM5 propose cinq schémas de convection :

- Kuo (Anthes, 1977),
- Emanuel (Emanuel, 1991),
- Grell (Grell, 1993),
- Tiedtke (Tiedtke, 1996),
- Kain-Fritsch (Kain & Fritsch, 1990 ; Kain, 2004)

Chaque schéma repose sur des hypothèses différentes pour représenter la convection, influençant ainsi les résultats des simulations climatiques. Leur efficacité varie selon la région ou les objectifs de l'étude, d'où l'importance d'une évaluation préalable pour choisir le plus adapté.

Parmi ces schémas, Emanuel (Emanuel, 1991) et Tiedtke (Tiedtke, 1996) se sont révélés particulièrement performants pour la simulation des climats africains (ex, Koné *et al.*, 2022). Le schéma d'Emanuel repose sur une description idéalisée des flux convectifs ascendants et descendants au sein du nuage. Il considère un entraînement d'air sec inhomogène et épisodique, et est déclenché lorsque la flottabilité dépasse la base du nuage.

Le schéma de Tiedtke, quant à lui, repose sur une approche en flux de masse et permet de représenter différents types de nuages et de courants convectifs selon le développement vertical du phénomène. Il a été introduit expérimentalement dans RegCM à partir de la version 4.3 et est

particulièrement adapté à la simulation des phénomènes convectifs intenses à petite échelle, tels que les précipitations extrêmes, les inondations éclair ou les fronts de rafales. Dans ce travail de thèse, une évaluation de sensibilité a été menée entre les différents schémas (résultats non présentés ici). À l'issue de cette évaluation, le schéma de Tiedtke a été retenu car il s'est montré le plus performant pour la région d'étude. Bien qu'Emanuel présente également de bonnes performances, Tiedtke offre une meilleure représentation de la localisation, de l'intensité et de l'évolution spatio-temporelle de la convection, ce qui est essentiel pour une estimation fiable des dépôts humides d'azote.

2-2-2-3- Schémas de radiation

Dans RegCM5, deux schémas principaux sont disponibles pour le calcul du transfert radiatif : le schéma du modèle global CCM3 (Climate Community Model version 3 ; Kiehl *et al.*, 1996), implémenté par Giorgi & Mearns (1999), et le schéma RRTM (Rapid Radiative Transfer Model ; Mlawer *et al.*, 1997 ; Mlawer & Clough, 1997).

► Schéma CCM3

Développé au NCAR, le schéma CCM3 prend en compte les contributions des gaz atmosphériques et des aérosols aux processus radiatifs à ondes courtes et longues. Il inclut les principaux gaz à effet de serre (H_2O , CO_2 , O_3 , CH_4 , N_2O , CFC) ainsi que les effets des nuages de glace et des aérosols. Le rayonnement solaire est traité via la méthode delta-Eddington (Briegleb, 1992), tandis que le rayonnement nuageux s'appuie sur la méthode de Slingo (1989), utilisant trois propriétés optiques clés : albédo, extinction optique et paramètre d'asymétrie. L'interaction rayonnement-aérosols repose sur les propriétés optiques des particules, notamment le coefficient d'absorption et l'albédo de diffusion.

► Schéma RRTM

Le schéma RRTM, récemment intégré dans RegCM5, est un modèle rapide et précis de transfert radiatif à bande corrélée- k , développé dans le cadre du programme ARM (Atmospheric Radiation Measurement) pour améliorer la représentation des processus radiatifs dans les modèles météorologiques globaux. Il est fortement contraint par des comparaisons au modèle de référence LBLRTM (Line-By-Line Radiative Transfer Model) (Clough *et al.*, 1992 ; Clough & Iacono, 1995). RRTM utilise 16 bandes spectrales pour la région infrarouge (LW, $0-3000\text{ cm}^{-1}$) et applique la technique de distribution k , qui permet une intégration efficace des coefficients d'absorption issus du LBLRTM. Chaque bande est subdivisée en 16 intervalles, totalisant 256

opérations de transfert radiatif. Le schéma prend en compte l'absorption de nombreux gaz (H_2O , CO_2 , O_3 , CH_4 , N_2O , O_2 , N_2 , CFC-11, -12, -22, CCl_4), ainsi que le continuum de la vapeur d'eau selon Clough *et al.* (1989), qui inclut à la fois la largeur des raies due à l'auto-broadening (collisions entre molécules d'eau) et à l'élargissement étranger (collisions de l'eau avec les molécules de N_2 et O_2). Le schéma inclut aussi des options pour le traitement du rayonnement par les nuages dans le domaine infrarouge, avec plusieurs méthodes disponibles, notamment l'approche large bande utilisée dans le CCM de NCAR et des méthodes multi-spectrales issues des travaux de Ebert & Curry (1992) et Hu & Stamnes (1993). Il peut également traiter l'émissivité et la réflectance spectrales de surface. L'efficacité du schéma RRTM et la précision de ses résultats par rapport aux simulations LBLRTM sont discutées en détail dans Mlawer *et al.* (1997).

Dans le cadre de cette thèse, nous avons utilisé les paramétrisations RRTM pour le calcul des transferts radiatifs.

2-2-2-4- Schémas de la couche limite planétaire

La couche limite planétaire (PBL, pour Planetary Boundary Layer) désigne la couche inférieure de la troposphère directement influencée par les échanges avec la surface terrestre. Elle joue un rôle central dans la dynamique atmosphérique régionale, notamment dans le déclenchement de la convection et la formation des nuages bas. Dans RegCM5, deux principaux schémas permettent de représenter les processus physiques de la PBL : le schéma classique de Holtslag *et al.* (1990) et celui plus récent de l'Université de Washington (UW-PBL) (Bretherton *et al.*, 2004a).

► Schéma Holtslag

Le schéma de Holtslag calcule la hauteur de la PBL de manière diagnostique à l'aide d'un critère de nombre de Richardson critique en vrac. Ensuite, un profil vertical non local de diffusivité turbulente est appliqué pour la chaleur, l'humidité et le moment, avec l'ajout d'un terme de transport à contre-gradient pour la température et l'humidité. La diffusivité dépend notamment de la vitesse de friction, de la hauteur, de la longueur de Monin-Obhukov, et de la hauteur de la couche limite. Cependant, des limitations ont été identifiées avec ce schéma, notamment une mauvaise représentation des nuages stratus bas. Ce biais a été attribué à un transport vertical trop intense, réduisant la stabilité dans les basses couches (O'Brien *et al.*, 2012).

► Schéma UW (University of Washington-PBL)

Pour mieux représenter les couches nuageuses stratiformes, une paramétrisation plus avancée basée sur la fermeture de turbulence de Bretherton *et al.* (2004a) a été introduite dans RegCM4,

puis dans RegCM5. Le schéma UW est un modèle de type diffusion locale de gradient descendant, de 1.5^{ème} ordre. Contrairement au modèle de Holtslag, qui base son échelle de vitesse sur les conditions de surface, UW utilise l'énergie cinétique turbulente (TKE, Turbulent Kinetic Energy) locale pour calculer cette échelle. La TKE est calculée de manière prognostique en considérant l'équilibre entre production bouyante (incluant le refroidissement radiatif au sommet des nuages), production par cisaillement, dissipation, transport vertical, diffusion, et advection horizontale. Ce schéma représente également explicitement les processus d'entraînement et d'évaporation dans les nuages, considérés comme critiques pour la dissipation des stratocumulus marins (Lilly, 1968 ; Nicholls & Turton, 1986). Le code UW implémenté dans RegCM est proche de celui utilisé par Bretherton *et al.* (2004a) et McCaa & Bretherton (2004), avec deux différences notables : (1) une formulation alternative de l'échelle de longueur, et (2) un calcul des flux de surface intégré au schéma de surface du modèle (BATS ou CLM4.5).

Deux options sont disponibles pour l'échelle de longueur :

- la formulation classique de Bretherton *et al.* (2004b) : $l = kz$,
- et celle de Blackadar, proposée par Grenier & Bretherton (2001) : $l = \frac{kz}{1+kz/\lambda}$, où λ est une constante (souvent fixée à $0,085 \times h_{PBL}$).

La formulation de Grenier & Bretherton (2001) permet de maintenir un profil de TKE auto-similaire, cohérent avec les observations lorsque la hauteur de la PBL varie. Dans nos simulations, nous avons utilisé cette seconde option avec l'échelle de longueur de Blackadar. Enfin, les flux d'enthalpie, d'humidité et de moment sont calculés dans le schéma de surface terrestre (CLM4.5), contrairement à l'approche initiale de Bretherton *et al.* (2004a).

2-2-2-5- Schémas de précipitations de grande échelle

Dans RegCM5, les précipitations à grande échelle (non-convectives) sont représentées par deux types de paramétrisations : le schéma SUBEX, historiquement utilisé, et le schéma plus récent de Nogherotto-Tompkins, introduit pour améliorer la représentation des processus microphysiques complexes.

► Schéma SUBEX

Le schéma SUBEX (Subgrid Explicit Moisture Scheme) de Pal *et al.* (2000), basé sur les travaux de Sundqvist *et al.* (1989), est conçu pour simuler les précipitations de grande échelle issues de la condensation dans les nuages non convectifs. Il modélise plusieurs processus : l'auto-conversion des gouttelettes nuageuses en pluie, l'accrétion, l'évaporation, ainsi que la

couverture nuageuse fractionnaire.

La fraction nuageuse FC est exprimée comme fonction de l'humidité relative RH , entre deux seuils RH_{\min} et RH_{\max} , selon :

$$FC = \sqrt{\frac{RH - RH_{\min}}{RH_{\max} - RH_{\min}}} \quad (2.3)$$

La pluie P est produite lorsque le contenu en eau liquide nuageuse Q_c dépasse un seuil Q_c^{th} , selon :

$$P = C_{\text{ppt}} \left(\frac{Q_c}{FC} - Q_c^{th} \right) FC \quad (2.4)$$

où :

- C_{ppt} est un coefficient de conversion lié à la durée d'auto-conversion,
- Q_c^{th} est un seuil de formation de précipitations dépendant de la température T (en °C), défini par :

$$Q_c^{th} = C_{\text{acs}} \cdot 10^{-0.49+0.013T} \quad (2.5)$$

Le paramètre C_{acs} contrôle l'intensité du processus d'auto-conversion. Dans notre configuration de thèse, le modèle RegCM5 est utilisé en mode atmosphérique forcé, sans couplage océanique interactif. Les flux air-mer sont donc simulés à l'aide du schéma de couche de surface océanique SST (Sea Surface Temperature) proposé par Zeng *et al.* (1998), qui diagnostique les flux de chaleur sensible, latente et de quantité de mouvement en fonction de la stabilité atmosphérique.

► Schéma de Nogherotto-Tompkins

Ce schéma microphysique avancé représente explicitement plusieurs espèces d'hydrométéores, avec une distinction entre l'eau liquide nuageuse, la glace nuageuse, la pluie et la neige. Chaque espèce est exprimée en termes de rapport de mélange q_x ($\text{kg}\cdot\text{kg}^{-1}$) et évolue selon l'équation générale suivante :

$$\frac{Dq_x}{Dt} = S_i + \frac{1}{\rho} \frac{\partial}{\partial z} (\rho V_x q_x) + D \quad (2.6)$$

où :

- S_i regroupe les termes source et puits dus aux processus microphysiques (condensation, congélation, fonte, etc.),

- le second terme représente la sédimentation gravitationnelle (V_x étant la vitesse terminale de chute),
- D inclut les autres processus diabatiques (comme la convection profonde),
- le membre de gauche correspond à l'évolution advective à grande échelle.

Les équations sont résolues à l'aide d'un schéma implicite simple, introduit initialement dans le système de prévision de l'ECMWF, afin de limiter la dépendance aux résolutions verticales élevées. Ce schéma, extensible à cinq espèces ou plus, est stable à tous les pas de temps, conservatif, mais présente un caractère diffusif pour les espèces à forte vitesse de chute. Une discrétisation temporelle explicite (forward) et spatiale amont (backward) est utilisée. L'advection à grande échelle et les autres processus diabatiques sont gérés en dehors du module microphysique, offrant ainsi une flexibilité de couplage. Ce schéma permet également une extension vers des espèces supplémentaires telles que la grêle ou différentes classes granulométriques de cristaux de glace.

2-2-3- Principaux schémas de chimie du modèle

En plus des schémas physiques, RegCM a connu des développements notables dans le couplage avec les aérosols et la chimie atmosphérique.

2-2-3-1- Modules des aérosols

Un schéma simplifié d'aérosols, conçu pour les simulations climatiques régionales à long terme, a été progressivement intégré dans RegCM. Solmon *et al.* (2006) ont développé une première version intégrant le SO₂, les sulfates, le carbone organique et le carbone noir. Un module de poussière désertique à 4 classes granulométriques a été introduit par Zakey *et al.* (2006), suivi d'un schéma de sel marin à 2 classes par Zakey *et al.* (2008). La distribution des sols a été actualisée selon Laurent *et al.* (2008), et la distribution granulométrique des émissions de poussière peut être représentée selon Kok (2011). Le calcul des émissions de poussière comprend : la distribution granulométrique des sols par maille, le calcul de la vitesse seuil de friction, le flux horizontal des agrégats en saltation et le flux vertical des particules transportables. Ces schémas sont activés pour les mailles dominées par une végétation désertique ou semi-désertique, selon l'interface de surface utilisée (BATS ou CLM). Lorsque tous les types d'aérosols sont activés, 12 équations supplémentaires sont résolues, intégrant le transport (vents à maille résolue, turbulence, convection), les sources, et les dépôts (sec et humide). Ces aérosols interagissent radiativement dans les bandes solaire et infrarouge. Le module a été utilisé pour simuler les effets climatiques régionaux des aérosols de sulfate en Chine (Giorgi *et al.*, 2002), des pous-

sières sahariennes (Konaré *et al.*, 2008; Solmon *et al.*, 2008), asiatiques et méditerranéennes (Santese *et al.*, 2010), ainsi que des fumées issues de la biomasse africaine (Malavelle *et al.*, 2011; Solmon *et al.*, 2021).

La partition gaz-aérosol des espèces inorganiques semi-volatiles (NH_3 , NO_3^- , SO_4^{2-}) est calculée à l'aide du modèle d'équilibre thermodynamique ISORROPIA-II (Fountoukis & Nenes, 2007; Nenes *et al.*, 1998), qui détermine la répartition entre la phase gazeuse et la phase particulaire, ainsi que la composition des aérosols sulfate–nitrate–ammonium.

2-2-3-2- Chimie en phase gazeuse : module CBM-Z

Le module de transport chimique a été étendu par (Shalaby *et al.*, 2012) pour inclure les espèces en phase gazeuse à partir d'une équation de continuité de masse (développée pour les aérosols) pour chaque traceur i (χ^i) (Solmon *et al.*, 2006) :

$$\frac{\partial \chi^i}{\partial t} = -V \cdot \nabla \chi^i + F_H^i + F_V^i + T_{cum}^i + S_r^i - R_{w,ls}^i - R_{w,cum}^i - D_{dep}^i + R_{net}^i \quad (2.7)$$

où les termes représentent respectivement : advection, diffusions turbulentes, transport par convection profonde, émissions, dépôts humides (à maille résolue et convectifs), dépôt sec, et production nette chimique. Cette équation est résolue en deux étapes : une première pour les processus physiques avec le schéma "leapfrog", une seconde pour la chimie, appelée toutes les 900s.

Dans cette étude, nous utilisons le mécanisme photochimique CBM-Z (Zaveri & Peters, 1999; Shalaby *et al.*, 2012), qui offre un bon compromis entre précision et coût de calcul. Il traite explicitement des espèces clés (ozone, NO_x , CO, COVs) et améliore le mécanisme CBM-IV (Gery *et al.*, 1989) par : Une meilleure prise en compte des alcanes (méthane, éthane), une distinction des oléfines selon leur réactivité, l'inclusion des réactions RO_2 en conditions de faibles NO_x et nocturnes, le traitement des nitrates organiques, hydroperoxydes et isoprène, la méthode de l'équilibre des radicaux (RBM) (Barth *et al.*, 2002). CBM-Z permet ainsi une transition plus fluide entre milieux urbains et ruraux, tout en maintenant une stabilité numérique adaptée aux simulations régionales à long terme. Bien qu'il simplifie certaines interactions NO_x/COV , il reste fiable pour les grandes tendances atmosphériques (Cao *et al.*, 2021). Il modélise 52 espèces chimiques via 132 réactions, en mobilisant 24 traceurs pronostiques. Cette approche permet une simulation réaliste et efficiente de la chimie troposphérique. Il est cependant important de noter les incertitudes persistantes sur les émissions de COV en Afrique

(Marais *et al.*, 2014a), qui influencent la performance de tout schéma chimique dans cette région.

2-2-3-3- Module de dépôt sec : Modèle big-leaf de Zhang *et al.* (2003a)

Le dépôt sec des espèces gazeuses et des particules fait référence au transfert de ces composants entre l'atmosphère et les surfaces en l'absence de précipitation, impliquant leur absorption ou leur adsorption à la surface, que ce soit sur le sol, la végétation, ou autre. Ce processus est influencé par trois principaux facteurs qui déterminent son efficacité : la turbulence atmosphérique, les caractéristiques chimiques de chaque composant et la nature spécifique de la surface sur laquelle ils se déposent.

La variété et la complexité des propriétés physiques, biologiques et chimiques des surfaces, combinées à la diversité des caractéristiques physiques et chimiques des substances, posent des défis pour la modélisation des processus de dépôt sec. Bien que la surveillance continue puisse être utilisée dans certains cas pour estimer les taux de dépôt dans une région donnée, l'approche principale pour évaluer les bilans atmosphériques repose sur l'utilisation de modèles numériques de météorologie et de chimie atmosphérique, qui intègrent la dynamique des processus de dépôt sec (Wesely & Hicks, 2000)..

La littérature propose diverses formulations du dépôt sec allant des modèles à une seule couche appelés "big-leaf" (Wesely, 1989; Erisman *et al.*, 1994, , etc.), en passant par des modèles spécifiques pour des applications particulières (Gao *et al.*, 1993; Tetzlaff *et al.*, 2002, , etc.). L'incertitude des modèles existants est d'environ 30 % pour l'estimation des vitesses de dépôt sec. Habituellement, le flux de dépôt sec F_{dry} est estimé à l'aide de la vitesse de dépôt V_d , calculée en multipliant la concentration (X_a) par ladite vitesse (la méthode inférentielle), selon l'équation :

$$F_{dry} = V_d \cdot X_a \quad (2.8)$$

Notons que la paramétrisation détaillée de la vitesse V_d est fournie en Annexe II.

Cette méthode dite inférentielle a été largement employée dans diverses études portant sur différents types d'écosystèmes, comme celles menées par Shen *et al.* (2009), Pineda Rojas & Venegas (2009), Jin *et al.* (2006), Zhang *et al.* (2005), Zhang *et al.* (2009), Delon *et al.* (2010) et Flechard *et al.* (2011). Cependant, les flux déduits de cette méthode dépendent étroitement de la validité des estimations des vitesses de dépôt sec.

Wesely & Hicks (2000) ont souligné que malgré les améliorations apportées aux modèles et les résultats satisfaisants obtenus dans des conditions spécifiques sur certains sites, de nombreuses

incertitudes subsistent et des recherches supplémentaires sont nécessaires. Zhang *et al.* (2003a) ont développé un modèle "big-leaf" (dans le contexte de l'Amérique du Nord) intégrant une paramétrisation révisée du dépôt sec. L'évaluation de ce modèle par Zhang *et al.* (2003b) réalisée à l'aide de données expérimentales provenant de forêts tropicales denses en Asie a montré que cette nouvelle paramétrisation permet d'obtenir des vitesses de dépôt sec réalistes pour des gaz tels que O₃ et SO₂ (Tsai *et al.*, 2010). De plus, ce modèle permet d'estimer simultanément les vitesses de dépôt de plusieurs autres gaz, tels que NH₃, NO₂ et HNO₃. Adon *et al.* (2013) ont appliqué ce modèle afin d'estimer les vitesses de dépôt sec de O₃, SO₂, NO₂, NH₃ et HNO₃ sur des sites représentatifs des principaux écosystèmes africains, démontrant ainsi la faisabilité de son utilisation dans ce contexte. Il convient toutefois de noter que très peu d'études de validation et d'estimation des vitesses de dépôt sec ont été menées pour les écosystèmes tropicaux.

Le dépôt sec est calculé pour 31 espèces en phase gazeuse dans le modèle. Les paramètres d'entrée clés pour le modèle de Zhang comprennent des données physiologiques (telles que les paramètres de couverture terrestre), des facteurs biophysiques (comme l'indice de surface foliaire, LAI) et des données météorologiques. Le LAI joue un rôle crucial dans le calcul des résistances de la canopée. Dans notre modèle, les LAI sont alignés sur le schéma de Zhang, tandis que les types de couverture terrestre sont supposés être cohérents avec le modèle de surface BATS. Les LAI de Zhang sont ensuite interpolés à la résolution du modèle, en tenant compte du type de végétation prédominant dans chaque maille. Ces paramètres d'entrée primaires, en particulier les données météorologiques, sont interactifs et directement récupérés à partir du modèle de surface CLM4.5.

Les principales améliorations apportées au modèle de Zhang pour nos simulations concernent les valeurs de la résistance du sol (R_{sol}) et le calcul de la vitesse de friction (u^*).

1. Les valeurs par défaut de résistance de surface (R_g) pour l'ozone, issues de Zhang *et al.* (2003b), sont utilisées. Pour la zone océanique, la valeur de R_g a été réduite de 2000 à 1000 s.m⁻¹ afin d'obtenir des vitesses de dépôt sec plus cohérentes avec celles rapportées dans la littérature (par exemple, Wu *et al.*, 2011; Zhang *et al.*, 2002b). La résistance par défaut conduisait à des valeurs qui sous-estimaient le dépôt d'ozone et provoquaient une surestimation des concentrations d'ozone en surface au-dessus des océans. Cet ajustement reflète mieux la réactivité et la solubilité plus élevées de l'ozone sur les surfaces océaniques, améliorant ainsi la précision des concentrations simulées.
2. La vitesse de friction (u^*) est un paramètre clé dans le calcul de la résistance aérodyna-

mique (R_a). Selon Padro *et al.* (1991), l'équation utilisée pour estimer R_a exige que le nombre de Richardson (Rib) reste inférieur à 0,21 en conditions stables. Cette contrainte est particulièrement importante dans les zones forestières tropicales, où les vents moyens sont faibles, car u^* et la vitesse de dépôt sont souvent plus faibles que celles rapportées dans la littérature (par exemple Adon *et al.*, 2013; Zhang *et al.*, 2003b). Pour notre simulation, nous avons recalculé u^* à partir des valeurs interactives fournies par le schéma CLM4.5, afin de garantir le respect de ce critère, en imposant des seuils minimums de à 0,4 $m.s^{-1}$ pour les forêts et à 0,1 $m.s^{-1}$ pour les savanes, sur la base d'une analyse statistique montrant que $Rib > 0,21$ pour des valeurs de u^* inférieures à ces seuils, cohérent avec Adon *et al.* (2013). Bien que le seuil de 0,4 $m.s^{-1}$ puisse sembler élevé par rapport à d'autres études, par exemple sur les forêts tempérées (Flechard *et al.*, 2011), les forêts tropicales africaines connaissent typiquement des vents plus faibles et une stabilité atmosphérique plus élevée, justifiant un seuil supérieur dans cette région. De plus, à la résolution spatiale du modèle RegCM et avec la convection paramétrée, les vitesses du vent u^* modélisées sont incertaines, car les rafales thermiques intermittentes sous-mailles ne sont pas résolues, ce qui peut conduire à une sous-estimation de u^* effectif. Ainsi, ces seuils minimums représentent une correction pragmatique appliquée uniquement dans le calcul du dépôt sec afin d'éviter des résistances aérodynamiques irréalistes et les biais associés dans les vitesses de dépôt. Cette correction n'affecte pas les valeurs de u^* utilisées ailleurs dans le modèle.

2-2-3-4- Module de dépôt humide : Modèle MOZART

Le dépôt humide est représenté comme un processus de perte du premier ordre dans l'opérateur de chimie, avec des taux de perte calculés en fonction des taux de précipitations à grande échelle et convectives préalablement diagnostiqués. Pour cette étude, il est paramétré dans RegCM comme dans le modèle global MOZART (Model for Ozone and Related chemical Tracers; Horowitz *et al.*, 2003; Emmons *et al.*, 2010). Les espèces solubles telles que HNO_3 , H_2O_2 , CH_2O , les hydroperoxydes organiques (CH_3OOH , C_2H_5OOH , C_3H_7OOH , $ROOH$, etc.), les nitrates d'alkyle tels que ONIT, les alcools tels que (CH_3OH et C_2H_5OH), subissent une élimination humide par lessivage en nuage, en utilisant la paramétrisation des constantes de loi de Henry effectives dépendantes de la température, de Giorgi & Chameides (1985). De plus, les espèces hautement solubles (HNO_3 , H_2O_2 , ONIT, etc.) sont également éliminées par lessivage sous les nuages, en utilisant la formulation décrite en détail par Brasseur *et al.* (1998). Dans le

modèle, 26 traceurs CBM-Z sont pris en compte pour l'élimination humide.

Par rapport aux travaux de Shalaby *et al.* (2012) et Ciarlo *et al.* (2021), nous avons amélioré de manière significative la paramétrisation du dépôt humide en développant une nouvelle interface qui utilise directement la production d'eau de pluie à partir des nuages et les termes de taux de précipitation issus à la fois des pluies stratiformes de Nogherotto *et al.* (2016) et des pluies convectives de Tiedtke (1989). Cela renforce l'interaction entre la chimie atmosphérique et les processus de précipitation convective lors des saisons pluvieuses tropicales africaines, permettant d'obtenir des estimations du dépôt humide plus proches des valeurs rapportées dans la littérature (eg., Delon *et al.*, 2010; Ossouhou *et al.*, 2021).

2-2-3-5- Module de NO biogénique : Modèle ANN

Dans le cadre de cette thèse, un développement majeur a consisté en l'intégration d'un module dédié aux émissions de NO biogéniques dans le modèle de surface CLM4.5, basé sur un réseau de neurones artificiels (ANN : Artificial Neural Network) de type perceptron multicouches (MLP). Cette méthode, développée par Delon *et al.* (2007), repose sur sept paramètres environnementaux clés (la vitesse du vent, le taux de fertilisation, la température de surface, le pourcentage de sable, l'humidité du sol, le pH du sol et la température du sol en profondeur) influençant l'activité microbienne du sol responsable des émissions de NO. L'algorithme calcule un flux normalisé de NO à partir d'une combinaison pondérée non linéaire de ces variables, à l'aide d'une fonction d'activation de type tangente hyperbolique. Les poids associés sont ajustés par un processus d'apprentissage supervisé. Le modèle a été couplé dynamiquement à RegCM5 via CLM4.5, permettant une estimation interactive des émissions de NO en réponse aux conditions météorologiques simulées. Dans cette étude, nous utilisons la structure de réseau de neurones artificiels (ANN) de Delon *et al.* (2007), mais en appliquant les poids mis à jour fournis dans Delon *et al.* (2008), qui offrent une meilleure représentation des émissions pulses dans les écosystèmes semi-arides en raison de la forte saisonnalité sèche-humide, alors que cette caractéristique est moins marquée dans les savanes humides et les forêts. Ces poids révisés ont également été utilisés dans des applications ultérieures du modèle (par exemple., Delon *et al.*, 2010, 2012, 2015).

Les équations complètes, l'architecture du réseau ANN, ainsi que le détail des paramètres d'entrée et du processus d'apprentissage supervisé sont présentés dans l'Annexe III.

Il convient de noter que, bien que la formulation de l'ANN ait été initialement calibrée sur des écosystèmes semi-arides, elle est ici appliquée à un large éventail d'écosystèmes, y compris des

zones densément forestières. Ses performances peuvent donc être moins fiables dans les forêts tropicales humides, où les facteurs contrôlant les émissions de NO (par exemple l'humidité du sol, l'effet de couverture du couvert végétal) diffèrent des environnements de calibration. Cette limitation est davantage discutée dans la Section 3.3.3.

2-3- Descriptions des données

Cette section décrit les données de simulation et de validation utilisées pour forcer, initialiser et évaluer le modèle. Ces jeux de données sont essentiels pour la crédibilité des projections climatiques.

2-3-1- Données de forçage et d'entrée

Les conditions initiales et aux limites sont fondamentales dans tout modèle numérique, car elles définissent les champs atmosphériques comme la température, la pression, l'humidité, le vent ou encore la hauteur géopotentielle. Dans cette étude, nous utilisons les réanalyses ERA5 du Centre Européen pour les Prévisions Météorologiques à Moyen Terme (ECMWF en anglais), qui combinent modélisation numérique et observations multiples (radiosondages, satellites, avions) pour fournir une estimation cohérente de l'état atmosphérique global (Hersbach *et al.*, 2020). ERA5 offre une résolution de 0.25° , avec des pas de temps de 6 heures, sur la période 1940 à aujourd'hui, et constitue la base dynamique de nos simulations. Les variables de surface comme l'humidité initiale du sol proviennent de la réanalyse MERRA-2 du Goddard Earth Sciences (GES) de la NASA. Quant aux températures de surface de la mer (SST), elles sont issues des données hebdomadaires OI_{WK} de la NOAA. Les données topographiques, fixes dans le temps, sont extraites de la base de données mondiale d'élévation multi-résolution (GMTED en anglais, Danielson & Gesch, 2011) du USGS (United States Geological Survey), avec une résolution de 30 secondes d'arc (environ $0,008^\circ$), et définissent notamment le géopotential de surface dans le modèle.

Une amélioration majeure apportée à RegCM dans cette étude réside dans l'utilisation de la réanalyse chimique CAMS pour les conditions aux limites de chimie atmosphérique, remplaçant la climatologie mensuelle prescrite par défaut à partir du modèle MOZART. CAMS (Wagner *et al.*, 2021), produit par le service Copernicus, fournit des champs tridimensionnels cohérents en aérosols, gaz réactifs et gaz à effet de serre, avec un pas de 6 heures, couvrant la période 2003–2022. Ce couplage permet une meilleure représentation des interactions entre dynamique et composition atmosphérique dans nos simulations.

2-3-2- Données d'évaluation

Pour l'évaluation des paramètres physiques, nous utilisons plusieurs sources, incluant des données de stations météorologiques, de satellites et des réanalyses. Le tableau III synthétise les variables utilisées pour chaque base de données :

- Tropical Rainfall Measuring Mission 3B42-version 7 (TRMM; Huffman *et al.*, 2007)
- Climatic Research Unit version TS4.03 (CRU; Harris *et al.*, 2020)
- ERA5 (Hersbach *et al.*, 2020)

Les données CRU reposent uniquement sur des observations in situ, tandis que TRMM provient d'observations satellitaires. ERA5 combine observations et modélisation. Cette approche multi-sources permet de mieux appréhender les incertitudes des paramètres météorologiques (précipitations, vent, température), un enjeu crucial pour l'Afrique, où les mesures in situ sont rares et le climat complexe.

Tableau III : Synthèse des données de validation pour les paramètres physiques.

	TRMM	CRU	ERA5
Variables	P	T	T, U, V et W
Résolution horizontale	0,25°	0,5°	0.25°
Couverture spatiale	Océan et Terre	Terre	Océan et Terre
Période	1997-2020 (3H)	1901-2018 (mensuelle)	1940-présent (6H)

Pour la validation chimique, les simulations sont comparées aux mesures in situ du réseau INDAAF. Elles sont aussi confrontées aux données de réanalyse chimique CAMS, aux sorties du modèle global GEOS-Chem (Goddard Earth Observing System-Chemistry; <https://doi.org/10.5281/zenodo.3974569>), ainsi qu'aux concentrations de NO₂ de surface dérivées des satellites OMI et TROPOMI (Cooper *et al.*, 2022). GEOS-Chem est un modèle global 3D de transport chimique piloté par les données météorologiques assimilées de la NASA. CAMS fournit une réanalyse chimique intégrant mesures satellitaires et in situ, améliorant la précision des espèces simulées. Les concentrations de NO₂ au sol sont obtenues en combinant les données satellites

OMI et TROPOMI avec les modélisations de GEOS-Chem, ajustées par des mesures au sol (Cooper *et al.*, 2022).

2-3-3- Inventaires d'émissions

Toutes les émissions dans RegCM5 sont contrôlées par des émissions anthropiques, de combustion de biomasse et des émissions naturelles. L'interface de RegCM est conçue pour être mise en œuvre sur n'importe quel domaine d'échelle de ces inventaires d'émissions, à l'échelle mondiale. En effet, l'utilisation de ces inventaires entraîne des grilles relativement plus grossières que celles utilisées dans de nombreux modèles régionaux de qualité de l'air, qui sont souvent développés pour des régions sources spécifiques par des agences locales ou étatiques. Le code de prétraitement regrille et interpole les données d'émissions à la même projection et résolution de modèle que celles nécessaires à RegCM5 et unifie les unités d'émission pour différents inventaires.

Ce travail inclut les inventaires mensuels d'émissions anthropiques de CAMS-version 6.2 (Gratier *et al.*, 2019). Avec une résolution spatiale de $0,1^\circ$ et couvrant la période 2000-2024, ces inventaires sont développés au Laboratoire d'Aérodynamique de Toulouse et ont été utilisés comme inventaires d'émissions anthropiques pour cette étude. Nous avons utilisé des émissions à l'échelle quotidienne provenant de GFED4 (Global Fire Emissions Data, version 4; Randerson *et al.*, 2018) pour les feux de biomasse avec une résolution spatiale de $0,25^\circ$ valables de 1997 à 2021 (voir figure 15).

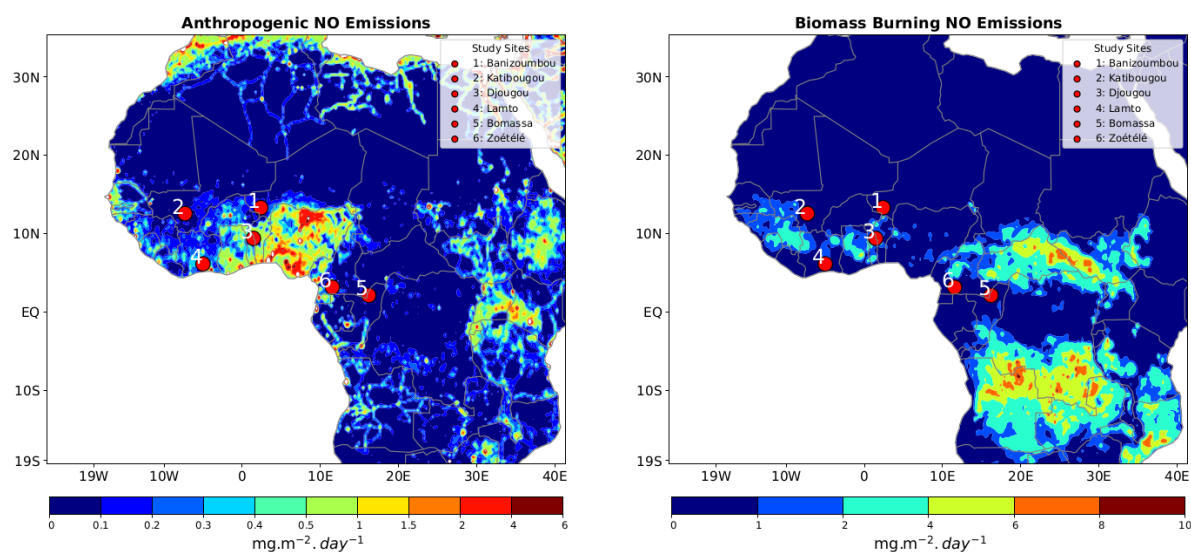


Figure 15 : Émissions annuelles moyennes de NO et localisation des sites de mesure du réseau INDAAF.)

Ces émissions sont d'origine anthropique et sont issues des feux de biomasse (moyennées sur la période 2010-2013). La carte illustre l'ensemble du domaine simulé par le modèle. Les sites de mesure incluent :

Banizoumbou, Katibougou, Djougou, Lamto, Bomassa et Zoétéélé.

Comme une autre plus-value apportée, il convient de noter que nous avons précédemment effectué un travail d'agrégation ("lumping" en anglais) de ces inventaires en accord avec le module chimique CBM-Z du modèle. En d'autres termes, les espèces du module CBM-Z ont été générées à partir de ces bases de données par des combinaisons linéaires.

Les émissions de COV biogéniques sont calculées dans un modèle d'émissions naturelles en ligne, MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature; Guenther *et al.*, 2006), puis mises en œuvre dans le modèle via le modèle de surface (Tawfik *et al.*, 2012). Les émissions biogéniques en ligne utilisent la température, le rayonnement et l'humidité du sol modélisés, ce qui permet un inventaire cohérent basé sur la météorologie et la climatologie modélisées.

2-4- Outils statistiques d'évaluation

Dans cette thèse, plusieurs méthodes statistiques classiques non paramétriques sont employées pour évaluer les écarts entre les sorties du modèle et les observations.

2-4-1- Coefficient de corrélation spatiale (PCC)

Le coefficient de corrélation PCC (Pattern Correlation Coefficient, en anglais) entre les variables à corréler S (la variable simulée) et O (l'observation) est défini comme le rapport de leur covariance (*cov*) au produit de leurs écarts types (σ). Il a pour but de quantifier l'intensité de la relation linéaire entre ces deux variables (Wilks, 2011). La formule pour calculer le coefficient de corrélation entre les variables S et O est :

$$PCC = \frac{cov(S, O)}{\sigma_s \cdot \sigma_o} \quad (2.9)$$

Ici, σ_s et σ_o désignent les écarts types des simulations et des observations, respectivement, et *cov*(S, O) représente leur covariance (Wilks, 2011). Une valeur de PCC proche de -1 ou 1 indique une corrélation forte entre les simulations et les observations, qu'elle soit négative ou positive.

2-4-2- Biais moyen et erreur quadratique (Bias et RMSE)

Le biais moyen (Bias) est la moyenne des différences entre chaque paire de données des deux séries. Soit ($O_i; i = 1, 2, 3, \dots, N$) la série des observations et ($S_i; i = 1, 2, 3, \dots, N$), la série des simulations, avec *N* représentant le nombre total de données. Le biais mesure la tendance du

modèle à surestimer (valeurs positives) ou sous-estimer (valeurs négatives) les observations. Il est défini par :

$$e_i = S_i - O_i \quad (2.10)$$

$$Bias = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N e_i \quad (2.11)$$

Le Root Mean Square Error (RMSE) quantifie la dispersion des écarts entre les valeurs simulées et observées. Comme le Bias, une RMSE proche de zéro indique une forte similitude entre les deux séries. Elle est calculée comme suit :

$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (e_i)^2} \quad (2.12)$$

Le Bias et la RMSE sont couramment utilisés pour évaluer la performance des modèles météorologiques. Le Bias reflète la tendance systématique de l'erreur, tandis que la RMSE intègre à la fois la variabilité et l'amplitude des écarts. Une étude de Chai & Draxler (2014) a montré que la RMSE est généralement plus robuste, notamment lorsque les écarts suivent une distribution gaussienne. Elle est aussi plus sensible aux valeurs extrêmes que le Bias.

2-4-3- Ecart absolu moyen (MAD) et l'écart absolu en pourcentage par rapport à la moyenne (APDM)

Pour quantifier la variabilité interannuelle (IAV) des dépôts d'azote réactif, deux indicateurs statistiques sont utilisés : la déviation absolue moyenne (MAD) et l'écart absolu en pourcentage par rapport à la moyenne (APDM). Ces indicateurs permettent d'évaluer, respectivement, l'amplitude absolue et relative des variations annuelles des flux (Mao *et al.*, 2016; Mu & Liao, 2014; Zhu *et al.*, 2017). Leur formulation est donnée en Annexe III.

2-4-4- Test de Mann-Kendall

La détection de tendances significatives dans les séries de dépôt a été réalisée à l'aide du test non paramétrique de Mann-Kendall (MK), largement utilisé pour l'analyse des séries temporelles climatiques ou environnementales (Mann, 1945; Kendall, 1975). L'amplitude des tendances a été estimée à l'aide de la pente de Sen, une méthode robuste qui donne la médiane des pentes entre toutes les paires de points de la série (Sen, 1968). Ces méthodes, peu sensibles aux

valeurs aberrantes, sont particulièrement adaptées aux séries courtes ou bruitées. Les détails méthodologiques et formulations sont disponibles en Annexe III.

2-4-5- Fonction de densité de probabilité

La densité de probabilité d'une distribution continue, telle que la distribution normale, est une fonction mathématique qui décrit la probabilité qu'une variable aléatoire prenne une valeur particulière. La distribution normale, également connue sous le nom de distribution gaussienne en l'honneur de Carl Friedrich Gauss, est l'une des distributions les plus couramment rencontrées en statistiques. C'est une distribution de probabilité continue qui prend la forme d'une courbe en cloche (Figure 16). Elle s'exprime par :

$$f(x) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\left[\frac{x-\mu}{2\sigma}\right]^2} \quad (2.13)$$

La courbe de distribution normale est caractérisée par deux paramètres principaux : la moyenne μ et l'écart type σ . Elle est symétrique, ce qui signifie que si vous la coupez en son centre, les deux moitiés seront des images miroirs l'une de l'autre. Idéalement, la moyenne, la médiane et le mode sont les mêmes, bien que dans la pratique, ils soient très proches. L'aire totale sous la courbe est toujours égale à 1.

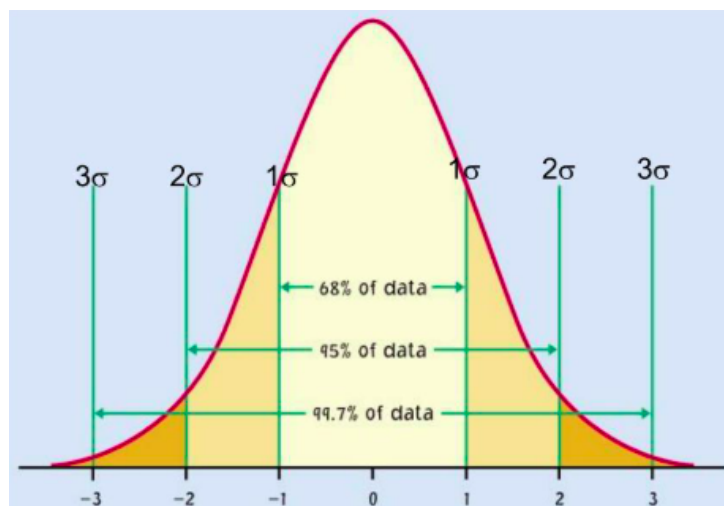


Figure 16 : Fonction de densité de probabilités montrant les aires à l'intérieur des écarts-types. Source : <http://www.ltconline.net/greenl/courses/201/probdist/zScore.htm>.

La distribution normale reste unimodale, présentant ainsi un unique sommet sur la courbe. Elle suit également le théorème central limite. Cette distribution est cruciale car toute la théorie des tests t, des tests f et du test du khi-carré sur échantillons en dépend. Elle respecte également les règles empiriques suivantes concernant les écarts types par rapport à la moyenne (voir également

Figure 16) :

- Environ 68% des données se situent dans le premier écart-type de la moyenne.
- Environ 95% des données se situent à moins de 2 écarts-types de la moyenne.
- Environ 99.7% des données se situent à moins de 3 écarts-types de la moyenne.

2-4-6- Régression linéaire multiple

La régression linéaire multiple est une méthode statistique permettant de modéliser la relation entre une variable dépendante et plusieurs variables explicatives. Elle repose sur l'ajustement d'un modèle de type :

$$Y = \beta_0 + \beta_1 X_1 + \beta_2 X_2 + \dots + \beta_p X_p + \varepsilon \quad (2.14)$$

où Y représente la variable dépendante, X_1, \dots, X_p les variables explicatives, β_0 l'ordonnée à l'origine, β_i les coefficients associés aux variables explicatives, et ε le terme d'erreur.

Dans ce cadre, l'analyse est conduite à partir des coefficients standardisés, obtenus après normalisation des variables explicatives. Ceux-ci permettent d'estimer l'importance relative de chaque variable dans la variation de la variable cible.

Afin de quantifier cette importance, la contribution relative de chaque variable explicative X_i est calculée selon la formule :

$$\text{Contribution relative}_i = \frac{|\beta_i|}{\sum_{j=1}^p |\beta_j|} \times 100 \quad (2.15)$$

Cette approche permet ainsi d'identifier, de manière comparative, les variables qui expliquent le mieux les fluctuations de la variable étudiée.

2-5- Expériences de simulations

Parmi les options pour la physique du modèle ci-dessus énumérées, des sélections clés ont été effectuées pour le domaine de l'Afrique, notamment le Modèle de Transfert Radiatif Rapide (RRTM), le schéma de turbulence de l'Université de Washington (UW), le schéma de microphysique en vrac de Nogherotto *et al.* (2016), et le schéma de convection de Tiedtke (1996). Les processus de surface continentale sont traités par le Modèle de Terre Communautaire, version 4.5 (CLM4.5), qui fournit également des paramètres essentiels utilisés par le schéma de chimie atmosphérique en phase gazeuse CBM-Z, tels que les résistances de surface, l'humidité, la température du sol, etc.

Trois études principales ont été menées dans le cadre de cette thèse. La première étude consiste dans un premier temps, en une évaluation des principaux paramètres caractéristiques du climat africain, à savoir la température de surface, les précipitations et la circulation de mousson, afin de valider la capacité de RegCM5 à reproduire correctement le climat régional africain. Puis, l'impact des émissions biogéniques de NO sur les niveaux de concentration des espèces gazeuses O₃, NO₂ et HNO₃ est évaluée. Cette étude permet de mesurer l'importance de la prise en compte des émissions NO par les sols dans la simulation de la chimie atmosphérique de l'azote. Pour cela, deux simulations différentes répertoriées dans le tableau IV, ont été menées en utilisant RegCM5, sur trois ans (Janvier 2010- Février 2013). Les deux premiers mois de cette période sont utilisés comme période de mise en route pour les deux expériences (phase d'initialisation du modèle : "spin-up") et ne sont pas pris en compte dans l'analyse des résultats. Le domaine de simulation s'étend de 19,35°S à 35,48°N en latitude et de 24,98°W à 41,65°E en longitude. Ce domaine a été soigneusement défini afin d'englober les principaux processus climatiques et atmosphériques pertinents pour cette étude, tels que la mousson ouest-africaine et le creux thermique saharien, ainsi que les régions fortement influencées par la combustion de biomasse et les émissions anthropiques (Afrique de l'Ouest, du Centre et de l'Est). Bien qu'il ne couvre pas l'ensemble du continent africain, le domaine se concentre sur les zones les plus actives en matière d'émissions biogéniques de NO (BioNO) et inclut l'ensemble des sites de mesure du réseau INDAAF utilisés pour l'évaluation du modèle. La figure 15 présente le domaine de simulation ainsi que la localisation des sites de mesure INDAAF.

Les deux derniers volets sont effectués sur une période plus longue (janvier 2011 – décembre 2019). Le troisième volet porte sur l'estimation du bilan régional du dépôt d'azote par le modèle RegCM5 à l'échelle du domaine d'étude et des principaux écosystèmes africains. Le quatrième volet analyse l'influence des émissions d'azote et de certains facteurs climatiques (température, précipitation, vent) sur la variabilité de ces dépôts d'azote. Pour ces deux derniers volets, le domaine de simulation a été réduit par rapport à celui utilisé dans les deux premières études, en raison de la durée plus longue des simulations et des ressources de calcul limitées dont nous disposons. Le compromis consistait à restreindre spatialement le domaine tout en conservant les zones les plus actives et représentatives, afin de garantir la faisabilité des simulations tout en assurant la pertinence scientifique des analyses menées. Il s'étend donc de 6°S à 30°N en latitude et de 20°W à 39°E en longitude. Un accent a également été mis sur quatre sous-domaines distincts pour des analyses spécifiques, chacun présentant des caractéristiques spécifiques en

termes de cycle annuel de précipitations : Sahel (10W-38E ; 10N-16N), Côte de Guinée (13°W-10°E ; 5°N-10°N), Afrique de l'Est (29°E-40°E ; 6°S-10°N) et Afrique Central (10°E-29°E ; 6°S-10°N).

Tableau IV : Synthèse des expériences de simulation.

Nom	Période	Spin-up	Description
BASE	Jan 2010 - Fev 2013	Jan-Fev 2010	Simulation sans BioNO
BIONO	Jan 2010 - Fev 2013	Jan-Fev 2010	BASE + BioNO
DEP	Nov 2010 - Dec 2019	Nov-Dec 2010	BASE + BioNO

1. Simulation BASE : Avec les émissions de combustion de biomasse et anthropiques, sans émissions de NO provenant des sols (période : 3 ans).
2. Simulation BIONO : Avec les émissions de combustion de biomasse, anthropiques et les émissions de NO provenant des sols (période : 3 ans).
3. Simulation DEP : Avec les émissions de combustion de biomasse, anthropiques et les émissions de NO provenant des sols (période : 9 ans).

Toutes les simulations ont été réalisées avec une résolution horizontale de 30 km x 30 km en longitude et en latitude, avec 35 niveaux verticaux (1000 hPa - 3,6 hPa). L'intervalle de temps entre deux mises à jour successives des variables atmosphériques (vent, température, humidité, etc.) au cours de la simulation (pas de temps du modèle) est de 210 secondes.

Conclusion partielle

Ce chapitre a présenté l'ensemble des outils et données utilisés pour étudier la variabilité et les tendances des dépôts d'azote en Afrique. Il a d'abord introduit le cadre des projets INSA et INDAAF, en soulignant leur rôle respectif dans l'acquisition de données de terrain et le développement des approches de modélisation. Le modèle régional climatique RegCM5 a été présenté en détail, notamment son cœur dynamique (MOLOCH), ainsi que les schémas physiques et chimiques utilisés pour représenter les processus atmosphériques et de surface. Les différentes catégories de données utilisées ont ensuite été décrites. Il s'agit des données de forçage météorologique (la réanalyse ERA5) et de chimie (la réanalyse CAMS), des données d'observation pour l'évaluation des concentrations (stations INDAAF, réanalyse, modèle de référence, produits satellites), ainsi que des inventaires d'émissions anthropiques, de combustion de biomasse et biogéniques nécessaires à la simulation des concentrations et dépôts d'azote.

Enfin, les outils statistiques retenus pour l'analyse ont été explicités : le test de Mann-Kendall pour la détection de tendances, le calcul du MAD et de l'APDM pour caractériser la variabilité interannuelle, ainsi que la régression linéaire multiple permettant d'estimer les contributions relatives des facteurs explicatifs. Cette méthodologie constitue le socle des analyses présentées dans les chapitres de résultats.

PARTIE 2 : RÉSULTATS ET DISCUSSION

CHAPITRE 3 : MODÉLISATION RÉGIONALE DE L'IMPACT DES ÉMISSIONS DE NO BIOGÉNIQUE SUR LA CHIMIE ATMOSPHERIQUE EN AFRIQUE

Ce chapitre s'intéresse à la modélisation régionale de l'influence des émissions de monoxyde d'azote biogénique (BioNO) issues des sols africains sur la chimie atmosphérique. L'analyse repose sur des simulations réalisées avec le modèle climatique régional RegCM5, couplé à un module de chimie atmosphérique intégrant une paramétrisation interactive des émissions de BioNO. Deux expériences de modélisation (avec et sans BioNO) ont été menées afin d'évaluer l'impact des flux biogéniques sur les concentrations de NO₂, HNO₃ et O₃. Les simulations sont confrontées à des données d'observation in situ (réseau INDAAF), à des données satellitaires (OMI, TROPOMI), à des réanalyses chimiques (CAM5), ainsi qu'à des modèles de référence comme GEOS-Chem. Certains résultats de ce chapitre ont fait l'objet d'une publication dans la revue *Atmospheric Chemistry and Physics* (ACP) en 2025 (voir la partie Publication).

3-1- Validation du climat régional simulé

Avant d'étudier les processus chimiques atmosphériques et les interactions avec les émissions biogéniques, il est essentiel d'évaluer la capacité du modèle RegCM5 à reproduire le climat régional africain. La validation du climat simulé permet de s'assurer que les grandeurs météorologiques majeures (température, précipitation, circulation de mousson) sont correctement représentées, car elles influencent directement les processus de formation, de transport et de dépôt des composés chimiques atmosphériques. Dans le cadre de cette étude, les simulations climatiques ont été réalisées sur une période de trois ans. L'évaluation porte principalement sur les moyennes saisonnières et journalières de la température, des précipitations et des champs de vent, éléments clés du climat régional africain. Une analyse climatique exhaustive ne relevant pas des objectifs de ce travail, seuls les paramètres ayant un impact direct sur la chimie atmosphérique sont considérés ici. Les résultats du modèle sont comparés à différentes bases de données d'observation, notamment les réanalyses ERA5 pour la température et les champs de vent, ainsi que les données TRMM pour les précipitations. Cette comparaison permet de mettre en évidence les performances globales du modèle, d'identifier les biais régionaux et de juger de la fiabilité des sorties climatiques en vue des analyses chimiques présentées dans les sections suivantes.

3-1-1- Circulation de mousson et flux régionaux

La mousson ouest-africaine constitue un élément central du climat régional, en particulier entre le golfe de Guinée et la bande sahélienne. Une bonne représentation de cette dynamique est indispensable pour comprendre les variations saisonnières du climat et leurs implications sur la chimie atmosphérique.

Les champs de vent moyens à 850 hPa simulés par le modèle RegCM5 ont été confrontés aux données de réanalyse ERA5 (Figure 17). Cette altitude correspond à la couche active de la mousson. Les résultats montrent que le modèle parvient à reproduire les principales caractéristiques du flux de mousson, avec un vent moyen de sud-ouest atteignant jusqu'à 17°N, ainsi qu'une circulation de type harmattan plus au nord. Le front de mousson et la dépression thermique saharienne (Saharan Heat Low, SHL) sont également bien localisés, bien que l'amplitude du SHL soit sous-estimée (Figure 17). Cette sous-estimation est susceptible d'affaiblir l'intensité du flux de mousson simulé, en particulier entre le golfe de Guinée et le Sahel, ce qui pourrait contribuer à la sous-estimation des précipitations sahéliennes observée, discutée dans la section suivante (cf Figure 18-c). Ce lien est cohérent avec les mécanismes décrits par plusieurs études antérieures (par exemple, Chauvin *et al.*, 2010; Evan *et al.*, 2015). En dehors de la zone de mousson, RegCM5 restitue également correctement les faibles vitesses de vent observées dans la région équatoriale centrale, avec une bonne concordance spatiale avec les données ERA5.

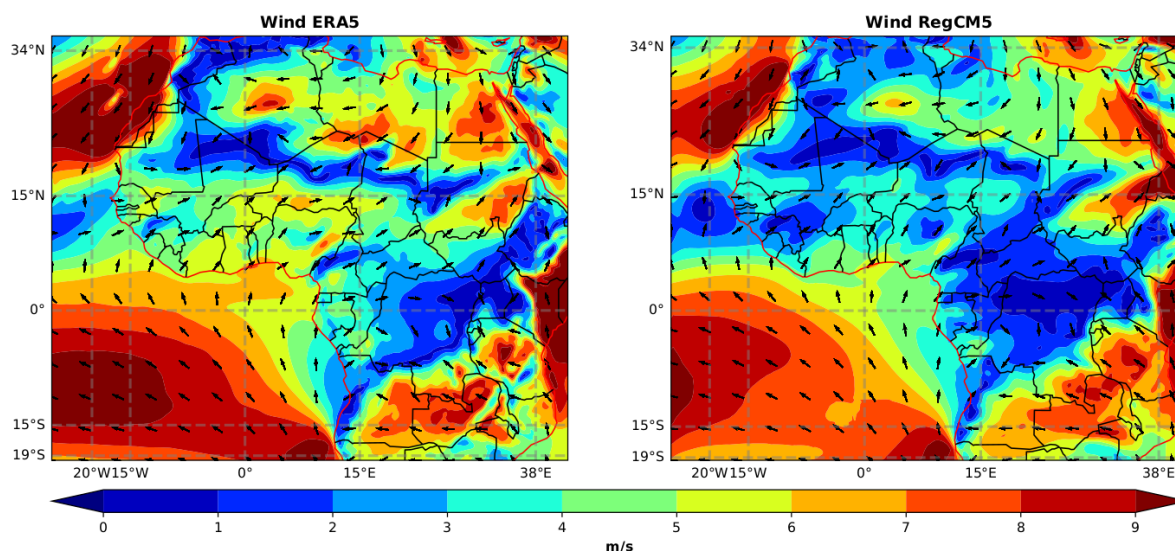


Figure 17 : Comparaison entre vitesses du vent de mousson.

Vent estimé à 875 hPa pour la période JJA (Juin-Juillet-Août) pour la réanalyse ERA5 et la simulation RegCM5.

Malgré quelques biais d'intensité, ces résultats indiquent que la circulation atmosphérique régionale est globalement bien représentée par le modèle, ce qui renforce la crédibilité des

simulations utilisées dans le cadre de cette étude.

3-1-2- Température de surface

La température de surface à 2 mètres est un paramètre fondamental dans l'évaluation des modèles climatiques régionaux, en particulier en Afrique où les contrastes thermiques entre le Sahara et les zones forestières tropicales sont marqués.

Le modèle RegCM5 parvient à reproduire globalement les gradients latitudinaux de température, avec des températures élevées dans les régions sahariennes et plus modérées dans les zones équatoriales forestières. Cependant, une analyse plus fine des simulations révèle un biais froid notable dans la région située entre le nord du Sahel et le sud du Sahara, avec des écarts allant de -5 à -1°C pendant la saison de mousson (Juin–Juillet–Août), comme le montre la Figure 18-f. Ce biais est cohérent avec ce qui est rapporté dans plusieurs études antérieures (Sylla *et al.*, 2012; Tadross *et al.*, 2006), et pourrait s'expliquer par un déséquilibre dans le budget radiatif de surface. En effet, ce dernier dépend des flux nets de rayonnement court (SW) et long (LW), eux-mêmes influencés par des paramètres de surface, la couverture nuageuse et la présence d'aérosols. Des estimations excessives de la couverture nuageuse en altitude (Sylla *et al.*, 2012) ou une modélisation inadéquate des aérosols (Lavaysse *et al.*, 2011) pourraient également contribuer à ce biais négatif. Dans la région du Saharan Heat Low (SHL), ce biais froid semble cohérent avec un affaiblissement du flux de mousson et une réduction des précipitations simulées.

À l'inverse, dans les régions équatoriales, une légère sous-estimation des températures pourrait être liée à un excès de précipitations simulées, entraînant un refroidissement par effet de rétroaction sol-atmosphère. Ce phénomène est appuyé par les travaux de Sylla *et al.* (2012), qui ont mis en évidence une corrélation entre biais froids en température et biais positifs en précipitations. Par ailleurs, une surestimation locale des températures a été observée sur la côte de l'Afrique centrale (Mbienda *et al.*, 2023), probablement liée à une représentation insuffisante des nuages bas fréquents dans cette région (Philippon *et al.*, 2019).

Dans l'ensemble, bien que certains biais persistent régionalement, la simulation des températures de surface par RegCM5 reste réaliste à l'échelle continentale, et permet de garantir une représentation cohérente des conditions météorologiques nécessaires aux analyses chimiques à venir.

3-1-3- Températures journalières

En complément de l'analyse des moyennes saisonnières, l'étude des distributions journalières de température permet de mieux évaluer la représentation de la variabilité thermique à court terme dans le modèle. Cette approche est particulièrement utile pour identifier les biais dans la fréquence des événements chauds ou modérés, qui influencent les processus physico-chimiques atmosphériques. L'analyse a été conduite pour la période JJA, sur la zone sahélienne définie entre 10°W–10°E et 10°N–16°N. Cette région présente à la fois un régime pluviométrique distinctif et une forte sensibilité aux émissions de BioNO, ce qui en fait un domaine d'intérêt prioritaire pour cette étude.

Des fonctions de densité de probabilité (PDF) ont été tracées afin de comparer les températures simulées par RegCM5 à celles de la réanalyse ERA5 (Figure 18-h). Les résultats montrent que la distribution simulée est globalement cohérente avec les observations, bien que le pic de fréquence soit légèrement décalé. Le modèle simule une fréquence élevée (>18 %) de jours avec des températures comprises entre 10 et 30°C, alors que moins de 15 % des journées dépassent les 30 °C. À l'inverse, ERA5 montre une part plus importante de journées chaudes (25-35 °C), avec une fréquence de 2 à 16 %, contre 1 à 13 % pour RegCM5. Cette sous-estimation des températures élevées est cohérente avec le biais froid mis en évidence dans les analyses saisonnières (Figure 18-f). Malgré ces écarts, la forme générale de la distribution est bien capturée, ce qui indique une capacité raisonnable du modèle à reproduire la variabilité thermique journalière dans cette zone clé.

3-1-4- Précipitation spatiale

Les précipitations jouent un rôle central dans la dynamique du climat régional africain. Leur représentation réaliste est indispensable pour la modélisation des processus atmosphériques, en particulier dans les régions tropicales fortement influencées par la mousson.

Dans la simulation RegCM5, les valeurs de précipitation saisonnière (JJA) varient de 0 à plus de 13 mm.jour⁻¹ sur l'ensemble du domaine d'étude. Les distributions spatiales simulées sont globalement cohérentes avec les observations TRMM, notamment en ce qui concerne l'emplacement des maxima et des gradients pluviométriques (Figures 18-a et 18-b). Le modèle reproduit correctement la ceinture de pluie sahélienne, associée à la Zone de Convergence Intertropicale (ZCIT), qui s'étend des montagnes du Darfour à l'Est jusqu'au golfe de Guinée et l'océan Atlantique. Cependant, des biais notables subsistent. On observe une sous-estimation des précipitations dans les régions sahélienne et d'Afrique centrale (allant de -5 à -0,5 mm.jour⁻¹), et une

surestimation dans certaines zones équatoriales, notamment les hauts plateaux camerounais (de 1 à 5 mm.jour⁻¹). Ces écarts peuvent être partiellement attribués à une combinaison d'incertitudes liées aux jeux de données d'observation et de limitations du modèle dans la représentation des processus physiques. Par exemple, les données TRMM tendent à sous-estimer les précipitations sur certaines zones (Afrique de l'Est, hauts plateaux de Guinée et du Cameroun) par rapport aux données GPCP, qui sont quant à elles davantage cohérentes avec les mesures pluviométriques au sol (Sylla *et al.*, 013b; Nikulin *et al.*, 2012). Il est important de souligner que la simulation des précipitations est fortement sensible aux choix des paramétrisations physiques du modèle, notamment en ce qui concerne la convection, le schéma de surface continentale ou encore la couche limite atmosphérique. En particulier, la représentation des systèmes convectifs tropicaux, qui dominent les précipitations en Afrique, constitue une source majeure d'incertitude dans les modèles régionaux. Le nombre de combinaisons possibles étant important, l'optimisation du modèle constitue un processus complexe et long (KhayatianYazdi *et al.*, 2021). Malgré ces limites, les biais observés dans les simulations restent dans des marges comparables à celles des modèles climatiques globaux de référence (CMIP6) et des modèles régionaux utilisés dans le cadre de CORDEX pour l'Afrique (Bucchignani *et al.*, 2018; Zittis *et al.*, 2016).

Ces résultats confirment la capacité du modèle RegCM5 à représenter correctement les grandes structures des précipitations saisonnières en Afrique, tout en mettant en évidence les zones d'incertitude à considérer dans l'interprétation des résultats chimiques.

3-1-5- Précipitations journalières

L'analyse des précipitations journalières permet de compléter l'évaluation du modèle en examinant sa capacité à reproduire la fréquence et l'intensité des événements pluviométriques. Cette évaluation repose également sur l'étude des fonctions de densité de probabilité (PDF) pour la période JJA, dans la région sahélienne (10°W–10°E ; 10°N–16°N), choisie en raison de son régime pluviométrique particulier et de son exposition marquée aux émissions BioNO, qui seront étudiées plus en détail par la suite.

Les résultats (Figure 18-g) montrent que RegCM5 parvient à reproduire correctement les précipitations faibles (inférieures à 10 mm.jour⁻¹) et extrêmes (supérieures à 100 mm.jour⁻¹), avec une bonne concordance avec les données satellitaires TRMM. En revanche, le modèle tend à surestimer la fréquence des précipitations de moyenne intensité, comprises entre 10 et 60 mm.jour⁻¹. Pour les événements les plus intenses (au-delà de 70 mm.jour⁻¹), les fréquences simulées restent légèrement inférieures à celles observées par TRMM, ce qui est cohérent avec

les biais pluviométriques identifiés dans les analyses saisonnières précédentes.

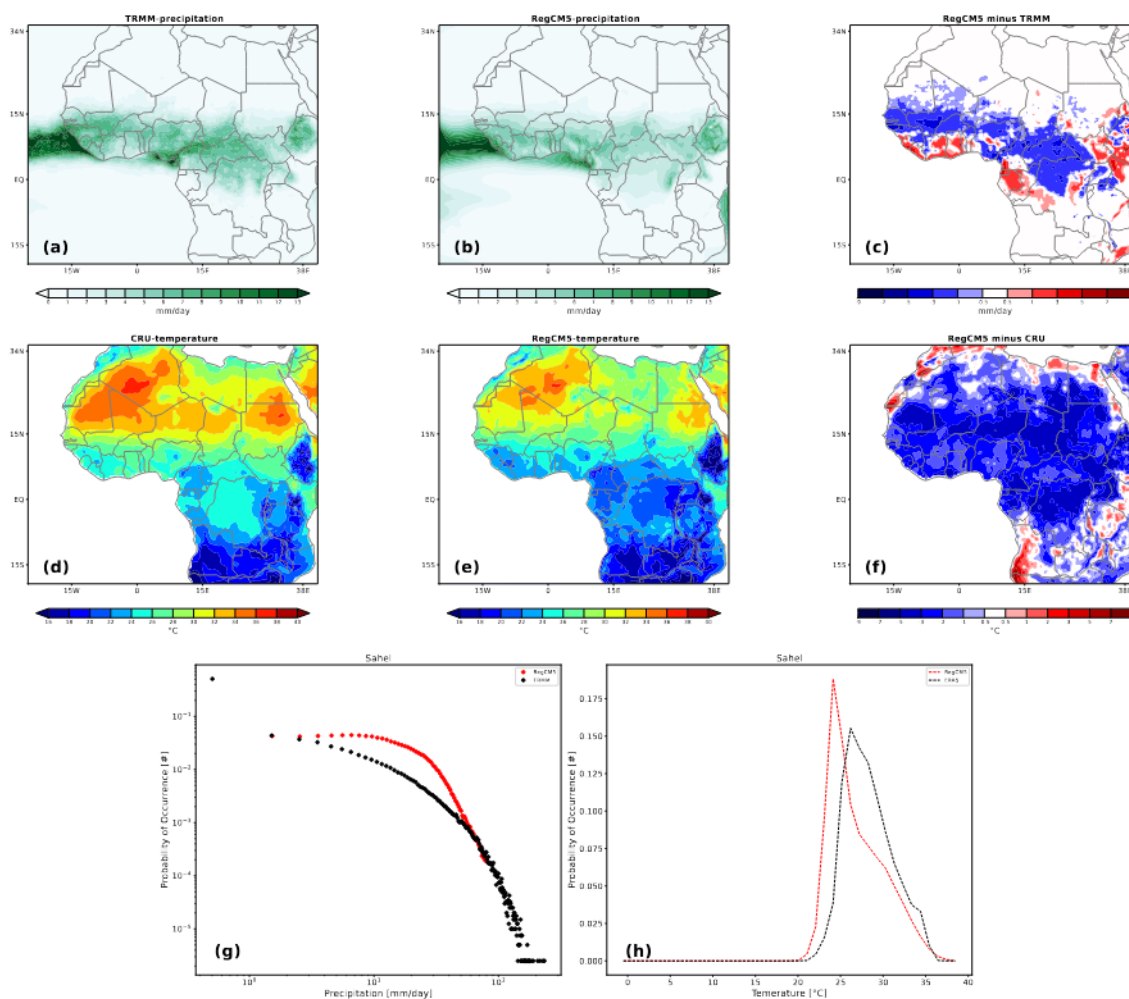


Figure 18 : Moyennes estivales simulées des précipitations et de la température de surface. Les biais sont calculés par rapport aux observations TRMM (précipitations) et CRU (température). Les distributions de fréquence journalière sont comparées aux données ERA5 (température) et TRMM (précipitations). Les unités sont : mm.jour⁻¹ pour les précipitations et °C pour la température.

Dans l'ensemble, malgré certains écarts dans les distributions d'intensité, les résultats confirment que le modèle reproduit de manière cohérente les principales structures de la variabilité journalière des précipitations, en accord avec les observations.

3-1-6- Variabilité latitudinale de la mousson ouest-africaine

La dynamique saisonnière de la mousson ouest-africaine est un marqueur fondamental du cycle hydrologique régional. Pour l'évaluer, un diagramme de Hovmöller a été construit à partir des précipitations moyennes en fonction du temps et de la latitude, sur une bande longitudinale comprise entre 10°W et 10°E. Cette représentation permet d'analyser les principales phases de la mousson au Sahel, en comparant les données simulées par RegCM5 aux observations issues du satellite TRMM (Figure 19).

Les résultats mettent en évidence trois phases caractéristiques du cycle monsoonique africain, telles que décrites dans la littérature (Hourdin *et al.*, 2010; Sultan & Janicot, 2003; Koné *et al.*, 2022). La première phase, correspondant à l'installation de la saison des pluies ("la pré-mousson"), débute à la mi-avril dans les observations TRMM, avec un noyau de précipitations concentré entre 4° et 7°N, le long de la côte guinéenne. Dans la simulation RegCM5, cette phase est retardée d'environ un mois, avec un début vers la mi-mai à juin, et une intensité pluviométrique plus faible que dans les observations. La deuxième phase, représentant ("la phase de mousson"), est marquée par une migration vers le nord de la bande principale de précipitations, atteignant environ 15°N entre juillet et septembre. Cette remontée est bien reproduite par le modèle, bien que le maximum simulé ne remonte pas aussi loin vers le nord que celui observé, ce qui confirme l'existence d'un biais sec dans la région sahélienne déjà évoqué précédemment.

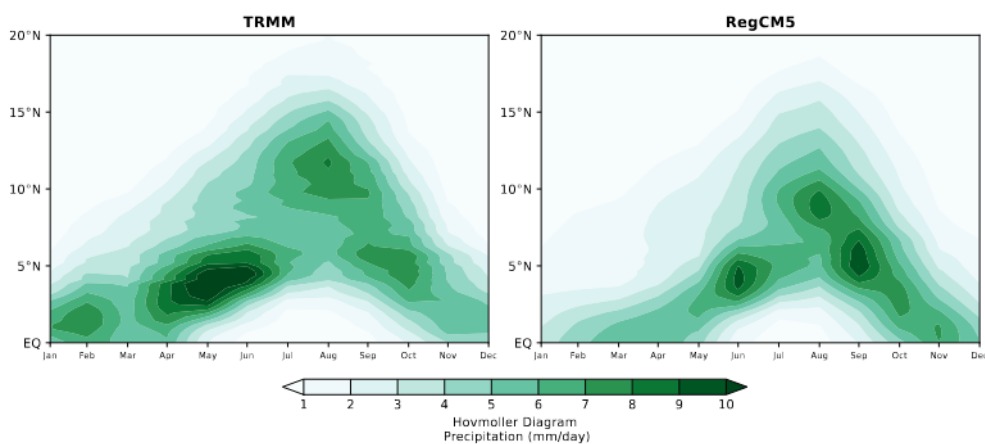


Figure 19 : Diagramme de Hovmöller des précipitations mensuelles.

Les précipitations (en $\text{mm}\cdot\text{jour}^{-1}$) sont moyennées entre les longitudes 10°W et 10°E sur l'ensemble de la période d'étude.

Enfin, la troisième phase correspond au retrait de la mousson, avec un retour progressif des précipitations vers la côte à partir de septembre. Cette phase est également bien capturée par RegCM5, même si les précipitations simulées en fin de saison apparaissent plus intenses que celles mesurées par TRMM.

Dans l'ensemble, les structures saisonnières latitudinales de la mousson ouest-africaine sont raisonnablement bien représentées par le modèle, avec de bonnes performances lorsqu'on les compare aux données d'observation.

Les résultats présentés ci-dessus montrent que le modèle RegCM5 est capable de reproduire de manière satisfaisante les principales caractéristiques climatiques régionales. Cette évaluation positive de ses performances constitue une base solide pour l'analyse qui suit, dédiée à l'étude de

la chimie atmosphérique. Dans la section suivante, nous nous concentrons plus spécifiquement sur la modélisation des émissions de NO d'origine biogénique (BioNO), ainsi que sur leur impact sur les concentrations troposphériques de NO₂, HNO₃ et O₃.

3-2- Simulation des émissions de BioNO

3-2-1- Facteurs de contrôle des BioNO

L'humidité du sol est l'un des facteurs majeurs régissant l'activité microbienne à l'origine des émissions de BioNO. Dans ce contexte, la simulation de ce paramètre dans RegCM5 a été évaluée par comparaison avec les données du système d'assimilation FLDAS (Famine Early Warning Systems Network Land Data Assimilation System) (McNally *et al.*, 2018). Comme illustré par la Figure 20 (b-c et e-f), les plus fortes valeurs d'humidité du sol en saison JJA sont localisées dans les zones de forêt dense (entre 7°S et 4°N) et dans les régions où les précipitations sont plus intenses. Malgré une légère sous-estimation globale des valeurs simulées par rapport aux observations FLDAS, notamment dans les zones sahariennes, RegCM5 parvient à bien représenter la distribution spatiale de l'humidité du sol, aussi bien en DJF qu'en JJA. Il convient toutefois de souligner que la fiabilité des données FLDAS en régions arides reste limitée, en raison du manque de données in-situ et de la difficulté des capteurs satellitaires à restituer correctement l'humidité des sols secs (Rao *et al.*, 2022).

La distribution spatiale des émissions simulées de BioNO reflète logiquement l'influence des variables environnementales intégrées dans le modèle ANN utilisé (Delon *et al.*, 2007). Ainsi, les régions sahariennes situées au nord (vers 16°N) présentent des émissions très faibles, en lien avec un faible contenu en azote, une absence d'apports exogènes en azote, une humidité du sol minimale et des sols très sableux. Ces derniers favorisent un drainage rapide et une forte évaporation, empêchant ainsi le maintien d'une humidité suffisante pour soutenir les processus microbiens producteurs de NO (Delon *et al.*, 2008). Entre 8°N et 16°N, dans la région sahélienne, les zones à fortes émissions de BioNO sont localement associées à une combinaison favorable d'humidité du sol, de pH, et d'apports azotés importants (apports montrés dans les travaux de Potter *et al.* (2010). La variabilité saisonnière de ces « hotspots » est essentiellement contrôlée par l'humidité des sols (Figure 20), elle-même pilotée par la dynamique de la mousson.

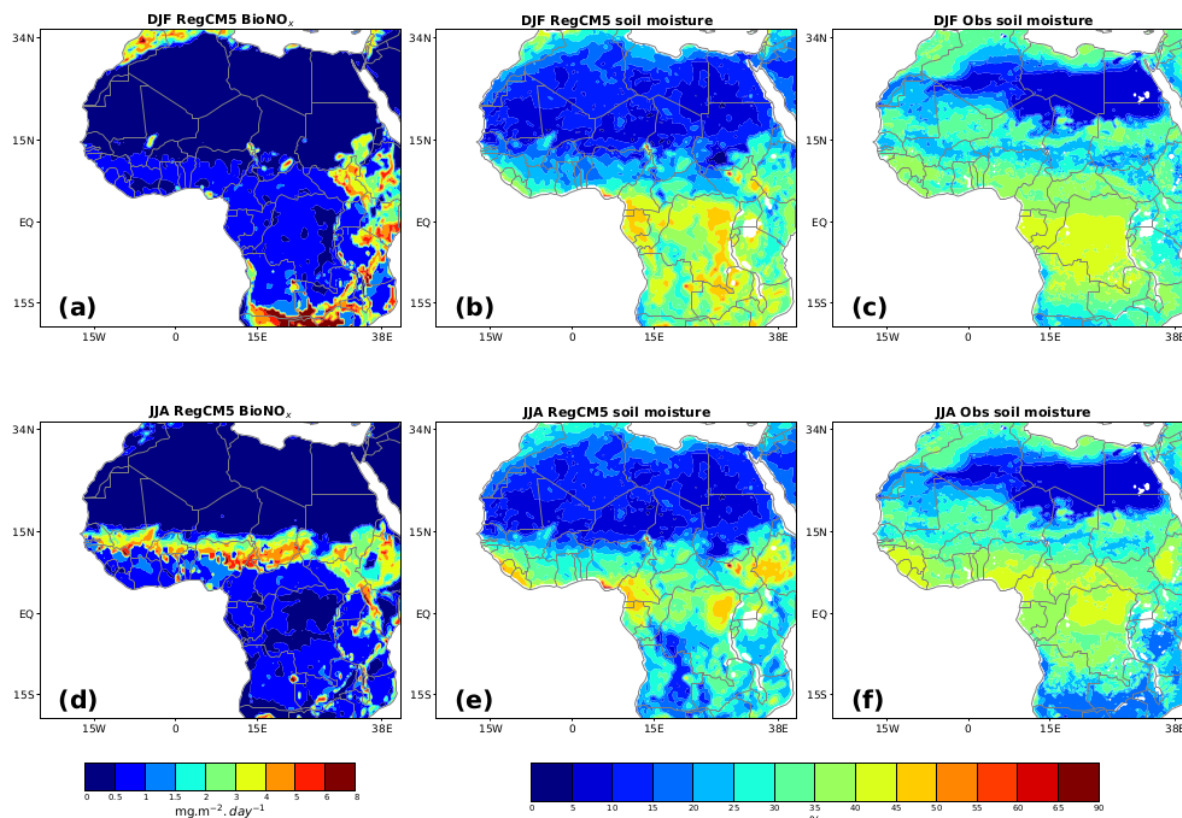


Figure 20 : Émissions simulées de BioNO_x et comparaison de l'humidité du sol pour les saisons DJF et JJA.

Elles sont exprimées en $\text{mg m}^{-2} \text{ jour}^{-1}$. L'humidité du sol provient du modèle de surface Noah de FLDAS (profondeur de sol 10–40 cm, en %).

Dans les régions forestières plus au sud (régions à fort LAI), les émissions sont réduites par l'effet d'inhibition de la canopée, qui limite les émissions du sol vers l'atmosphère. Par ailleurs, l'algorithme de type réseau de neurones artificiels (ANN) utilisé dans cette étude, conçu à partir de données issues majoritairement de régions semi-arides et tempérées, montre de meilleures performances sur la bande sahélienne que dans les zones forestières (Delon *et al.*, 2008). Dans ces dernières, la dynamique des émissions est influencée par des processus spécifiques, tels que la densité de la couverture végétale, la richesse en matière organique ou encore la diversité des communautés microbiennes (Pilegaard, 2013). Cette variabilité suggère la nécessité d'un entraînement plus spécifique du modèle ANN pour améliorer sa robustesse dans des écosystèmes tropicaux humides.

3-2-2- Estimation des flux d'émission

La validation des émissions simulées de BioNO en Afrique est rendue difficile par le manque de mesures directes disponibles. Dans ce contexte, les résultats du modèle RegCM5 sont comparés à une sélection de données issues de la littérature et de campagnes de terrain.

Les flux simulés de BioNO dans cette étude varient de 0,02 à 7 mg·m⁻²·jour⁻¹, ce qui correspond à des moyennes saisonnières allant de 0,1 à 37,52 ngN·m⁻²·s⁻¹. Ces valeurs sont en bon accord avec celles rapportées dans la littérature, notamment par Delon *et al.* (2008), qui indiquent des flux compris entre 0,43 et 6,52 mg·m⁻²·jour⁻¹, ou par Davidson & Kinglerlee (1997), avec des estimations allant de 0,5 à 28 ngN·m⁻²·s⁻¹. Les simulations sont également cohérentes avec les mesures issues du vol B227 de l’avion BAe-146 dans le cadre du programme FAAM (Facility for Airborne Atmospheric Measurements), dont les données varient de 0,8 à 35 ngN·m⁻²·s⁻¹. En revanche, les flux simulés restent supérieurs aux estimations de Ganzeveld *et al.* (2002) pour la région sahéenne, qui se situent entre 2,32 et 11,6 ngN·m⁻²·s⁻¹. Ils sont toutefois proches des mesures issues de la campagne de terrain DACCIWA en Afrique de l’Ouest, menée en juin et juillet 2016, qui ont montré des flux allant jusqu’à 48,39 ngN·m⁻²·s⁻¹ (Pacifico *et al.*, 2019). Feig *et al.* (2008) ont obtenu des valeurs similaires pour l’Afrique australe, avec des flux compris entre 4,7 et 27,01 ngN·m⁻²·s⁻¹. Un résumé comparatif des estimations issues de la littérature est présenté dans le Tableau V, afin d’illustrer la cohérence des flux simulés avec les valeurs mesurées ou modélisées dans différentes études régionales sur le continent africain.

Tableau V : Résumé de quelques estimations d’émissions de BioNO issues de la littérature.

Région / Biome	Intervalle des flux (ngN·m ⁻² ·s ⁻¹)	Période	Référence
Sahel	2,32 - 35,29	Août 2006	Delon <i>et al.</i> (2008)
Sahel	2,32 - 11,6		Ganzeveld <i>et al.</i> (2002)
Niger	0,8 - 35	Août 2006	Vol B227 Flight B227 (FAAM, https://www.faam.ac.uk)
Afrique de l’Ouest	0 - 48,39	Juin–Juillet 2016	Pacifico <i>et al.</i> (2019))
Savane semi-aride (Afrique du Sud)	4,7 - 27,01	Juin 2003 - Octobre 2005	Feig <i>et al.</i> (2008)
Pâturage sahéen semi-aride (Dahra, Sénégal)	2 - 10	Juillet 2012, Juillet 2013, Novembre 2013	Delon <i>et al.</i> (2017)

À l’échelle du domaine de simulation, la quantité totale d’azote émise par les émissions de

BioNO varie entre 0,01 et 4,4 TgN·mois⁻¹. En se focalisant sur la région sahélienne (10°W–10°E, 10°N–20°N), correspondant à une surface d'environ 2,3 millions km², les émissions simulées vont de 0,0006 à 0,23 TgN·mois⁻¹. Ces résultats sont cohérents avec les estimations de Stewart *et al.* (2008), qui rapportent une fourchette de 0,03 à 0,3 TgN sur deux mois (juillet-août), ou encore celles de Yan *et al.* (2005), qui proposent une valeur annuelle de 1,373 TgN pour l'ensemble du continent africain. Delon *et al.* (2010) ont estimé à 0,35 TgN·an⁻¹ les émissions annuelles sur le Sahel, tandis que Vinken *et al.* (2014), à partir de données issues de l'instrument OMI (Ozone Monitoring Instrument), ont évalué ce flux à 0,52 TgN·an⁻¹. Ces estimations sont du même ordre de grandeur que celle de Williams *et al.* (2009), qui propose une valeur de 0,575 TgN·an⁻¹ à partir d'inventaires biogéniques. Enfin, il convient de noter que nos estimations simulées sont plus élevées que celles obtenues par Simpson & Darras (2021) dans le cadre du programme européen CAMS, à l'aide du modèle EMEP MSC-W (Meteorological Synthesising Centre – West of the European Monitoring and Evaluation Programme). Dans leur étude, les émissions varient de 0 à 3,5 mg·m⁻²·jour⁻¹ pour la même région et période. L'inclusion dans notre algorithme ANN de paramètres de surface supplémentaires susceptibles de contrôler les émissions pourrait expliquer ces écarts.

3-3- Analyse des concentrations simulées et impact des émissions de BioNO

3-3-1- NO₂ régional : comparaison aux données de réanalyse et de modèle de référence

Nous analysons tout d'abord les concentrations saisonnières simulées de surface en NO₂ pour la simulation BASE, sur l'ensemble du domaine. Les résultats sont comparés aux données de réanalyse (CAMS) ainsi qu'aux sorties d'un modèle global de chimie atmosphérique (GEOS-Chem). La variabilité des concentrations simulées de NO₂ dans la région d'étude est principalement gouvernée par les émissions de feux de biomasse (voir Figure 15, ce qui se traduit par des structures spatiales et saisonnières similaires entre RegCM5, CAMS et le modèle GEOS-Chem (Figure 21). Cette cohérence s'explique par l'accord général entre les différents inventaires d'émissions de biomasse utilisés.

Cependant, des divergences sont observées à l'échelle régionale, en particulier en Afrique de l'Ouest. Les modèles à résolution plus fine (RegCM5 et la réanalyse CAMS) permettent de mieux représenter les détails spatiaux que le modèle global à maille plus grossière. De manière générale, les concentrations simulées de surface en NO₂ par RegCM5 dans la configuration BASE sont plus faibles (de 0,7 à 0,9 ppb) que celles fournies par CAMS et GEOS-Chem,

notamment sur la région sahélienne en JJA. Ces différences sont cependant atténuées dans les zones de feux de biomasse situées principalement au centre (en DJF) et au sud (en JJA) du continent africain. L'écart entre les estimations résulte essentiellement des différences dans la prise en compte des émissions de NO, notamment les sources biogéniques (BioNO), anthropiques et issues des feux. Dans la simulation BASE, les émissions de BioNO ne sont pas incluses. À l'inverse, CAMS s'appuie sur une climatologie fixe issue de la base de données POET <http://www.aero.jussieu.fr/projet/ACCENT/POET.php>, tandis que GEOS-Chem utilise une paramétrisation dynamique basé sur le schéma de Hudman *et al.* (2012), pour les émissions de BioNO. D'autres facteurs, comme la hauteur d'injection des panaches de biomasse et les flux de NO associés, peuvent également contribuer aux différences observées.

L'introduction des émissions de BioNO dans RegCM5 permet de combler partiellement ces écarts en augmentant les concentrations de surface en NO₂, qui deviennent plus proches, voire supérieures à celles de CAMS (Figures 21-b et 21-f), notamment dans les écosystèmes de transition comme les savanes et prairies (voir Figure 13).

Pour quantifier l'impact des BioNO sur la basse troposphère, nous avons analysé la différence entre les simulations BIONO et BASE (Figure 22), sur une coupe verticale moyennée entre 10°W et 10°E, de 4° à 21°N. L'ajout des émissions biogéniques entraîne une augmentation saisonnière des concentrations moyennes de NO₂ en surface, de l'ordre de 2 à 4 ppb, avec un maximum de +3 ppb sur la région sahélienne (10–21°N) en JJA.

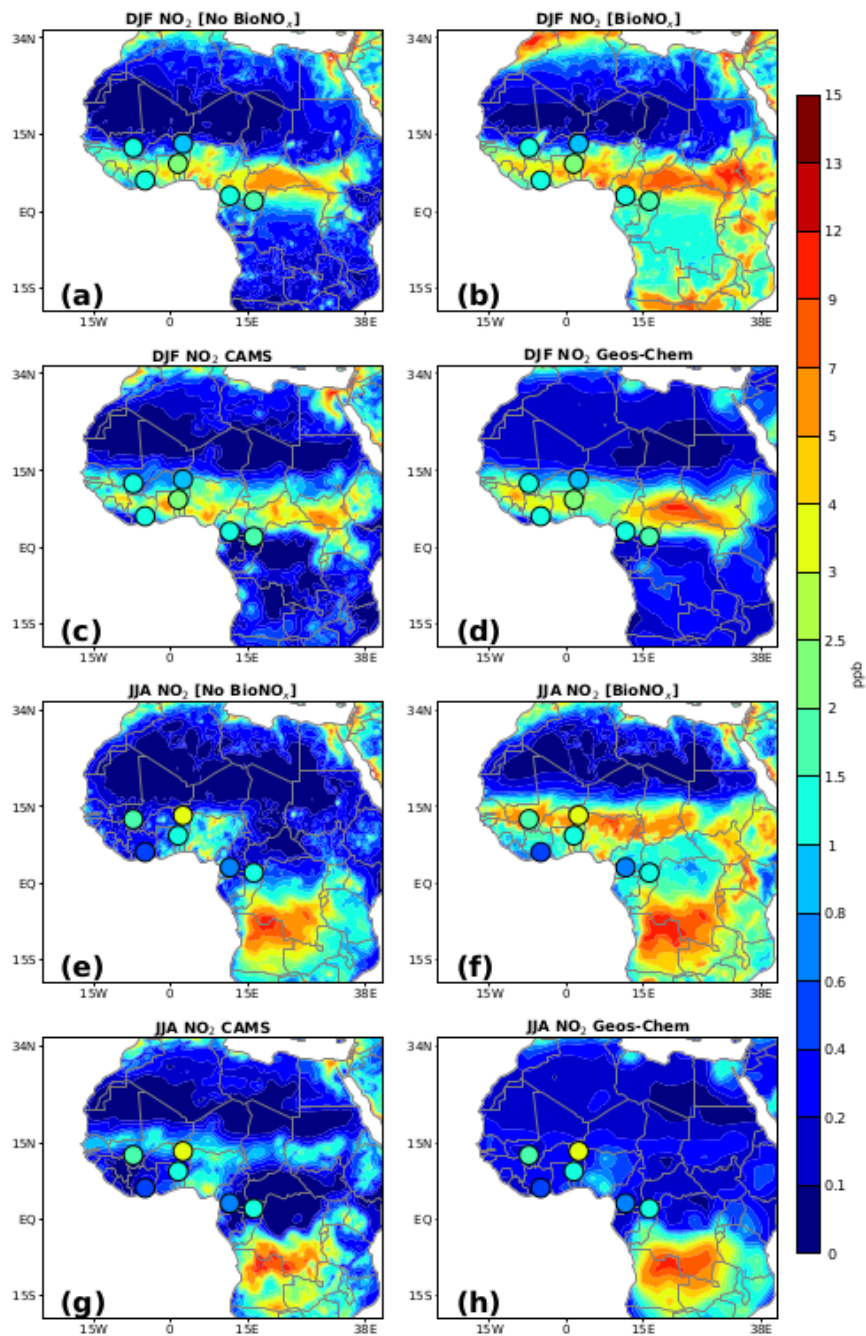


Figure 21 : Comparaison des concentrations de NO_2 simulées.

La comparaison est faite entre la simulation BASE, la simulation BIONO, la réanalyse CAMS et le modèle GEOS-Chem pour les saisons DJF et JJA. Les valeurs mesurées aux stations INDAAF sont superposées et représentées par de petits cercles sur les cartes.

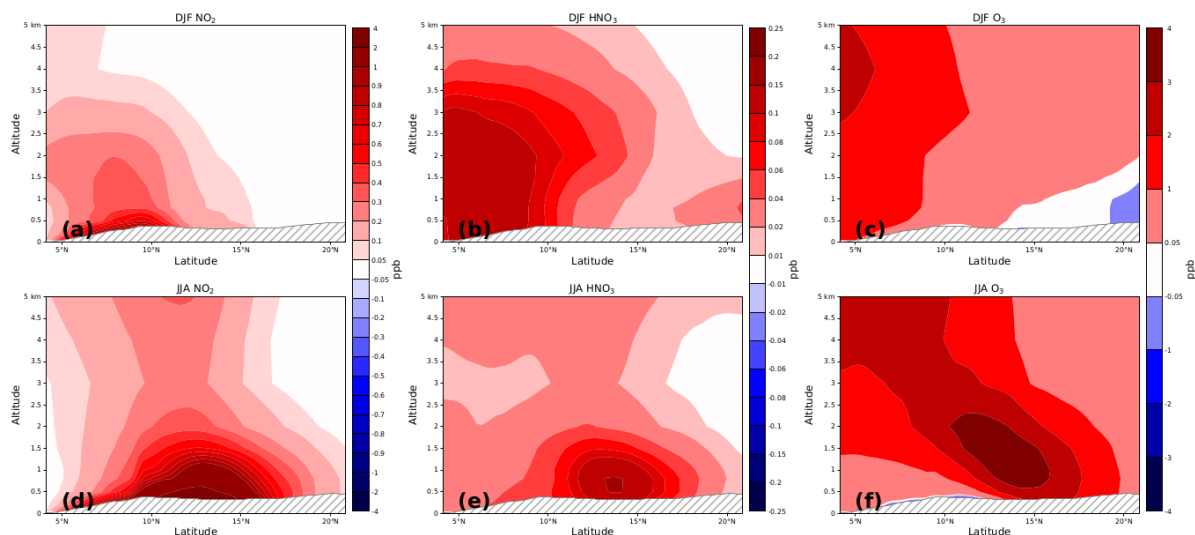


Figure 22 : Différences DJF et JJA des concentrations simulées.

La différence est faite entre les simulations BIONO et BASE pour NO₂ (a, d), HNO₃ (b, e) et O₃ (c, f). Elle est présentée le long du transect 4–21°N et moyennée entre 10°W et 10°E. Les unités sont en ppb.

Cette hausse est cohérente avec les flux de BioNO simulés (Figures 20-a et 20-d) et la distribution des différences de concentrations de surface entre les deux simulations (Figures 31-a et 31-d). Nos résultats s'accordent avec ceux de Delon *et al.* (2008), qui estiment une augmentation locale en NO₂ de 0,9 ppb induite par les BioNO à 4°E entre 7°N et 21°N. Des simulations globales (Steinkamp *et al.*, 2009) indiquent également une augmentation moyenne du NO_x troposphérique de 7 à 17 % en DJF et JJA suite à l'ajout des émissions biogéniques.

3-3-2- NO₂ régional : comparaison aux observations satellitaires

La comparaison entre les concentrations de NO₂ simulées par le modèle RegCM5 et les données satellitaires met en évidence à la fois les points forts et les limites du modèle (Figures 23 et 24). Deux jeux de données d'observation ont été utilisés pour évaluer la simulation. Le premier jeu de données concerne les concentrations de NO₂ au niveau de la surface, dérivées à partir des observations des satellites OMI (Ozone Monitoring Instrument) et TROPOMI (TROPOspheric Monitoring Instrument), selon la méthodologie développée par Cooper *et al.* (2022) (Figure 23). Cette approche combine les colonnes annuelles de NO₂ estimées à partir d'OMI, qui sont ensuite affinées spatialement à l'aide des données haute résolution de TROPOMI, puis converties en concentrations de surface via le modèle chimique GEOS-Chem contraint par des mesures au sol. Le produit final fournit des moyennes annuelles de NO₂ à une résolution spatiale d'environ 1 km x 1 km.

Le second jeu de données provient des colonnes troposphériques de NO₂ issues du satellite OMI/Aura pour la période 2010–2013 (Figure 9), telles que présentées dans le produit OMNO2d

(Lamsal *et al.*, 2021). Ces données journalières, à une résolution de $0,25^\circ \times 0,25^\circ$, sont adaptées à l'étude des grandes structures spatiales du NO_2 troposphérique et ont été filtrées pour ne conserver que les conditions de ciel peu nuageux (couverture nuageuse $< 30\%$).

La simulation RegCM5 reproduit correctement la distribution spatiale globale du NO_2 sur le domaine. Les concentrations les plus élevées sont observées, tant dans le modèle que dans les données satellites, dans les zones sahéliennes et forestières où les feux de biomasse jouent un rôle majeur (cf. Figure 15). Toutefois, les concentrations simulées sont globalement surestimées par rapport aux observations issues de TROPOMI (surface) et OMI (colonne troposphérique), en particulier lorsque les émissions de BioNO sont incluses.

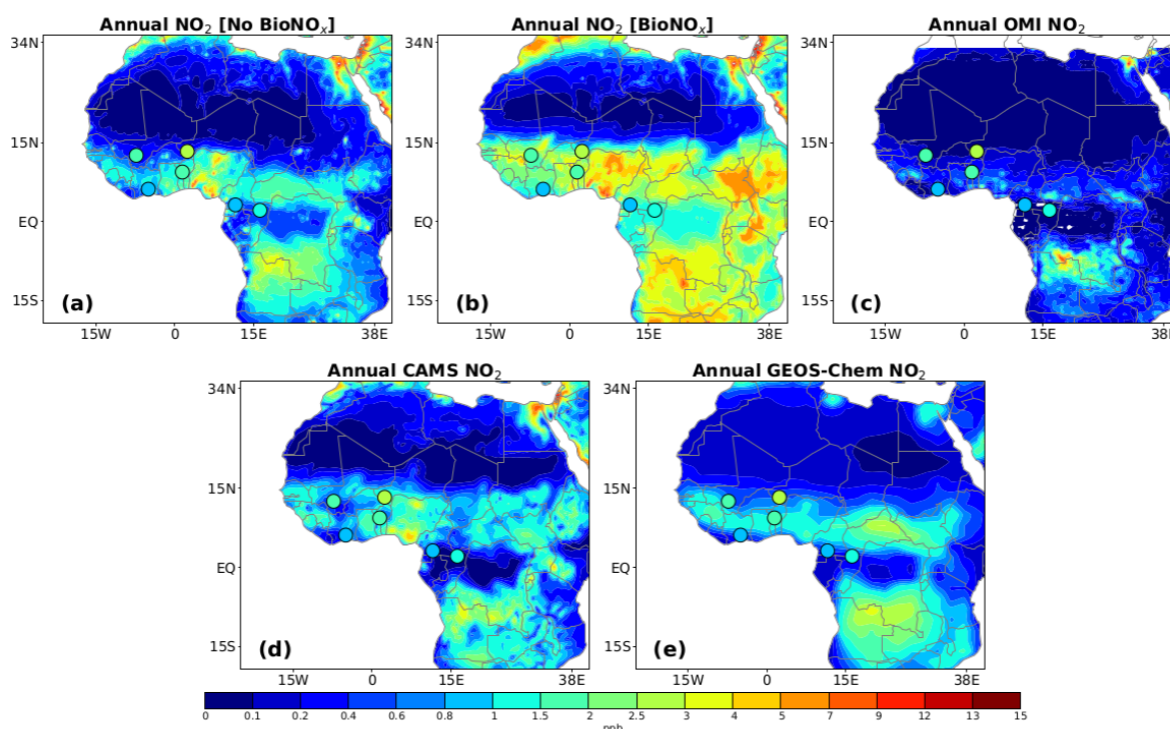


Figure 23 : Comparaison des concentrations moyennes annuelles de surface de NO_2 .

La comparaison est faite entre la simulation BASE, la simulation BIONO, la réanalyse CAMS, le modèle GEOS-Chem et le satellite OMI/TROPOMI sur la période 2010-2013. Les valeurs mesurées aux stations INDAAF sont superposées et représentées par de petits cercles sur la carte.

Cette surestimation peut s'expliquer par plusieurs facteurs : (i) la représentation des émissions biogéniques et des feux dans le modèle ; (ii) les incertitudes intrinsèques aux produits satellitaires. En effet, comme le soulignent Cooper *et al.* (2022), le processus de conversion des colonnes observées par satellite en concentrations de surface est sujet à plusieurs sources d'erreur : environ 10 % pour la récupération des colonnes obliques à partir des radiances satellites, et entre 23 et 37 % pour le calcul des facteurs de masse d'air. Ainsi, l'écart entre les simulations et les données satellitaires pourrait autant provenir des limites du modèle que des incertitudes inhérentes aux

observations. Une analyse de corrélation spatiale avec les données OMI montre une concordance modérée entre les modèles et les observations (Figure 24), avec un coefficient de corrélation de Pearson (PCC) de 0,41 sans BioNO, et de 0,37 lorsqu'elles sont incluses.

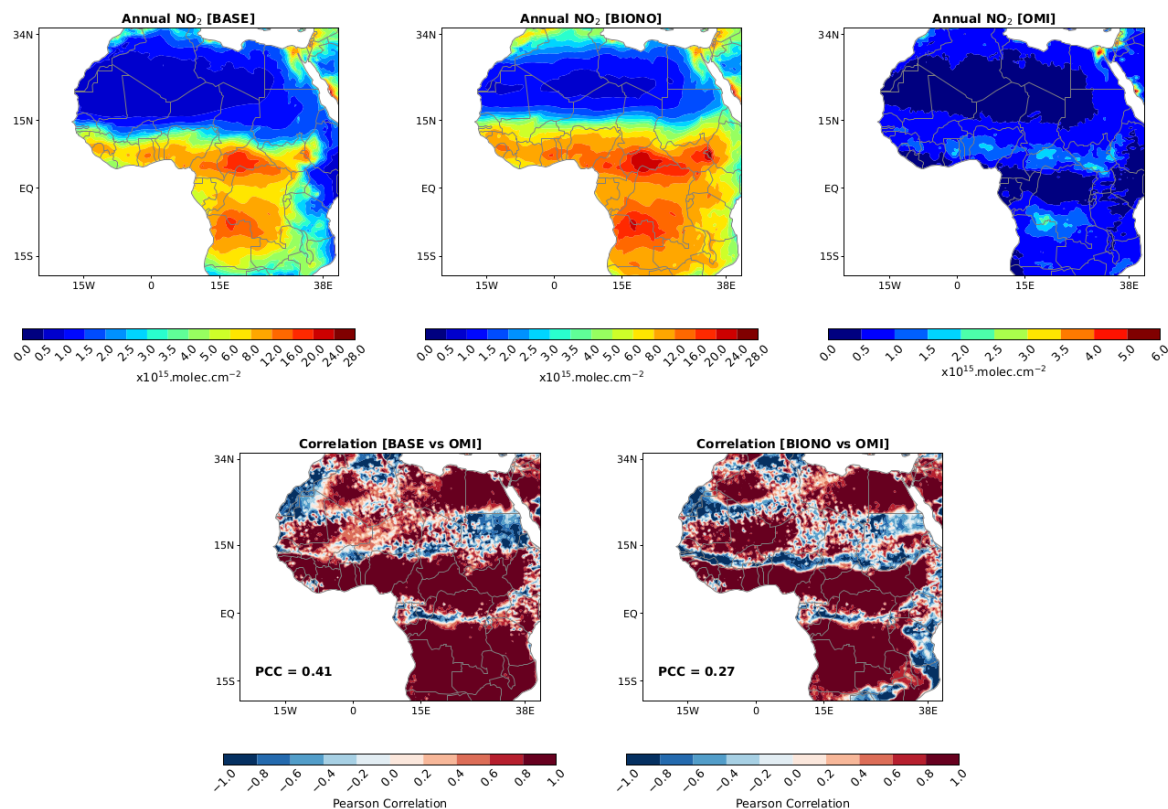


Figure 24 : Comparaison des colonnes troposphériques de NO₂ et corrélation spatiale de Pearson associée.

La comparaison est faite entre la simulation BASE, la simulation BIONO, le satellite OMI/Aura sur la période 2010–2013. Les valeurs mesurées aux stations INDAAF sont superposées et représentées par de petits cercles sur la carte.

Cette légère baisse peut s'expliquer par le fait que les données OMI intègrent toute la colonne troposphérique, tandis que la simulation est influencée par le mélange vertical et les représentations locales des sources d'émissions. De plus, certaines émissions diffuses (par exemple d'origine biogénique) ou localisées peuvent ne pas être pleinement captées par les satellites (Ossouhou *et al.*, 2019).

Malgré ces divergences ponctuelles, la structure spatiale des concentrations simulées de NO₂ reste globalement en accord avec les observations satellitaires, notamment dans les régions où les processus à grande échelle (comme les feux) dominant.

3-3-3- NO₂ local : comparaison aux observations in-situ

Afin d'approfondir l'évaluation des concentrations simulées de NO₂, les résultats du modèle ont été comparés aux concentrations mensuelles moyennes issues des stations INDAAF. Les sorties

du modèle au niveau le plus proche de la surface (environ 40 m du sol) ont été interpolées aux emplacements des sites de mesure pour la période simulée. Les biais des simulations BASE et BIONO (calculés à partir des moyennes mensuelles sur 3 ans) ainsi que les corrélations avec les observations ont été analysés (voir Annexe 5 - Tableau 1 et Figure 26).

Les Figures 25 et 26 montrent que la simulation BASE a tendance à sous-estimer les concentrations de NO₂, sauf durant les mois de décembre et janvier dans les savanes humides (Lamto, Djougou), ce qui est également observé dans la réanalyse CAMS (Figure 25). Dans les savanes sèches (Banizoumbou, Katibougou), la sous-estimation est particulièrement marquée durant la saison humide, avec un biais pouvant atteindre -4 ppb en juin et octobre à Banizoumbou. Mostafa *et al.* (2019), en utilisant le modèle RegCM4, ont également montré une tendance à la sous-estimation des concentrations mensuelles moyennes de NO₂ par rapport aux données d'observation au Caire (Égypte), avec une sous-estimation maximale observée au mois d'avril sur quatre sites représentatifs.

L'intégration des émissions de BioNO permet une nette amélioration dans la réduction des biais pendant la saison humide des savanes sèches. Par exemple, en juin à Banizoumbou, le biais négatif le plus élevé passe de -4,62 ppb dans la simulation BASE à -3,94 ppb dans la simulation BIONO. Toutefois, ce biais reste important et est aussi présent dans la réanalyse CAMS (-3,85 ppb) ainsi que dans le modèle GEOS-Chem (-4,54 ppb) pour le même mois et site (Annexe 5 - Tableau 1). De plus, on peut observer dans la figure 25 que la simulation BIONO tend à produire des concentrations maximales de NO₂ au milieu de la saison des pluies, tandis que les observations indiquent plutôt des pics au début et à la fin de cette saison, suggérant un schéma bimodal. Ce décalage pourrait être dû à l'absence, dans l'approche par réseau de neurones artificiels (ANN), de la prise en compte d'un stock azoté du sol. En effet, dans la région sahélienne, ce stock atteint un maximum en fin de saison des pluies, lorsque la biomasse herbacée sénescence commence à se décomposer, entraînant une augmentation des flux de BioNO, un processus non représenté dans le modèle. La distribution temporelle des événements pluvieux pourrait également contribuer à ce comportement, les émissions les plus fortes ayant tendance à survenir après une période sèche suivie d'un épisode de pluie (Gasche & Papan, 1999; Hickman *et al.*, 2018; Johansson *et al.*, 1988; Jaeglé *et al.*, 2005; Yienger & Levy, 1995).

Concernant les savanes humides, le modèle reproduit raisonnablement bien les observations dans la simulation BASE pendant la saison sèche, où des biais positifs sont toutefois observés (entre 0,2 et 1,6 ppb). Ces concentrations élevées de NO₂ sont liées aux émissions issues des feux

de biomasse (Oppenheimer *et al.*, 2004). Selon Ossohou *et al.* (2019), ces émissions peuvent expliquer les biais positifs observés à toutes les stations sauf à Banizoumbou et Katibougou. L'ajout des émissions de BioNO dans le modèle accentue parfois ces biais, notamment à la station de Djougou où le biais augmente de 1,2 ppb en janvier, soit une augmentation de 79,9 %. Cela pourrait refléter une surestimation des émissions de BioNO par le modèle dans les savanes humides, possiblement due à une réponse excessive de l'algorithme ANN à l'humidité du sol, ainsi qu'à une réduction de canopée moins efficace comparée aux régions forestières. Le modèle GEOS-Chem présente d'ailleurs des biais similaires à Djougou, suggérant un problème systématique lié aux incertitudes sur les émissions ou à la photochimie locale.

Enfin, pour les régions de transition ou les forêts tropicales (Bomassa, Zoétélé), les simulations BASE et les réanalyses CAMS présentent toutes deux une forte sous-estimation des concentrations par rapport aux mesures INDAAF. Cette sous-estimation pourrait être liée à une mauvaise représentation des sources anthropiques de NO_x près de la surface ou des processus chimiques régionaux. Le modèle GEOS-Chem présente également un biais négatif comparable, atteignant -1,94 ppb en janvier à Bomassa. De plus, les stations INDAAF sont souvent localisées dans des zones présentant de forts gradients simulés de NO_2 , en particulier en saison sèche (DJF), ce qui peut amplifier les écarts locaux entre les observations et la simulation. L'inclusion des émissions de BioNO permet ici de réduire ces écarts en augmentant les concentrations de NO_x , ce qui rapproche également les niveaux simulés d'ozone des observations (Figures 25 et 26).

Dans l'ensemble, les résultats de la Figure 25 montrent que l'inclusion des émissions de BioNO conduit à une amélioration notable des concentrations de NO_2 de surface simulées dans certaines stations INDAAF, en particulier dans les zones semi-arides. Cela indique que la paramétrisation basée sur l'ANN reproduit de manière raisonnable les émissions locales de NO du sol lorsque les conditions pédoclimatiques sont en accord avec les données d'entraînement. Cependant, nous soulignons que ces améliorations à l'échelle locale ne se traduisent pas directement par une représentation fiable à l'échelle régionale ou continentale. En effet, l'augmentation relativement importante des concentrations de NO_2 observée dans certaines régions lors de l'ajout de BioNO reflète la nature épisodique et spatialement hétérogène des émissions de NO du sol, en particulier dans les zones semi-arides après les événements d'humectation des sols. Ainsi, ces augmentations n'impliquent pas que les émissions totales de BioNO dépassent systématiquement les émissions anthropiques ou celles issues des feux de biomasse à l'échelle continentale. Le fort impact relatif observé localement traduit plutôt la grande sensibilité des

concentrations de NO_2 aux émissions épisodiques de BioNO.

Par ailleurs, notre paramétrisation exclut actuellement d'autres sources naturelles de NO_x : les émissions de NO_x issues des éclairs, qui contribuent de façon substantielle au budget troposphérique tropical en NO_x (Jaeglé *et al.*, 2005). Leur omission conduit probablement à une sous-estimation du NO_x naturel total et peut entraîner une amplification artificielle de l'impact relatif du BioNO dans nos résultats. De même, les émissions issues des feux de biomasse (BB) du jeu de données GFED4, bien que largement utilisées, sont connues pour comporter des incertitudes et sont probablement sous-estimées en Afrique (par exemple., van Wees & van der Werf, 2019; Giglio *et al.*, 2013). De plus, comme les émissions de BB et de BioNO peuvent être corrélées saisonnièrement, une partie de l'amélioration observée lors de l'ajout du BioNO pourrait compenser des émissions de BB sous-représentées ou des émissions de NO_x d'éclairs non représentées.

L'extrapolation de la paramétrisation BioNO basée sur l'ANN à des régions dont l'occupation du sol et les conditions météorologiques sont mal représentées dans les données d'entraînement, comme les forêts tropicales denses, introduit également une incertitude supplémentaire dans les simulations à l'échelle régionale. Enfin, des études récentes d'inversion basées sur TROPOMI (Opacka *et al.*, 2025) suggèrent indépendamment que les inventaires ascendants actuels sous-estiment les sources naturelles de NO_x en Afrique. Leurs résultats indiquent que les émissions de NO du sol devraient être augmentées d'environ 26%, tandis que les émissions de NO_x issues des éclairs pourraient être sous-estimées d'un facteur 4. Ces conclusions sont en accord avec nos résultats et soutiennent l'importance d'améliorer la représentation des sources naturelles de NO_x , y compris les émissions de BioNO basées sur les processus, pour mieux simuler le NO_2 atmosphérique en Afrique.

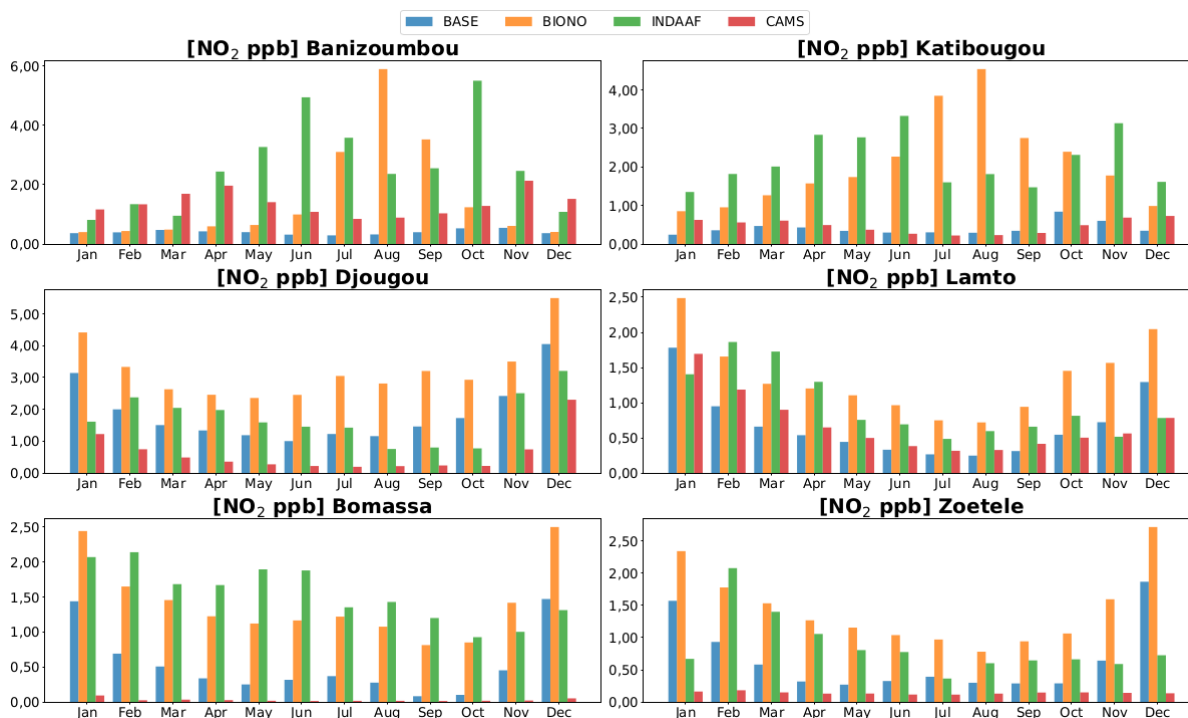


Figure 25 : Concentrations mensuelles moyennes de NO_2 simulées pour les sites INDAAF. Les concentrations sont présentées pour la simulation BASE, la simulation BIONO, la réanalyse CAMS ainsi que les mesures INDAAF.

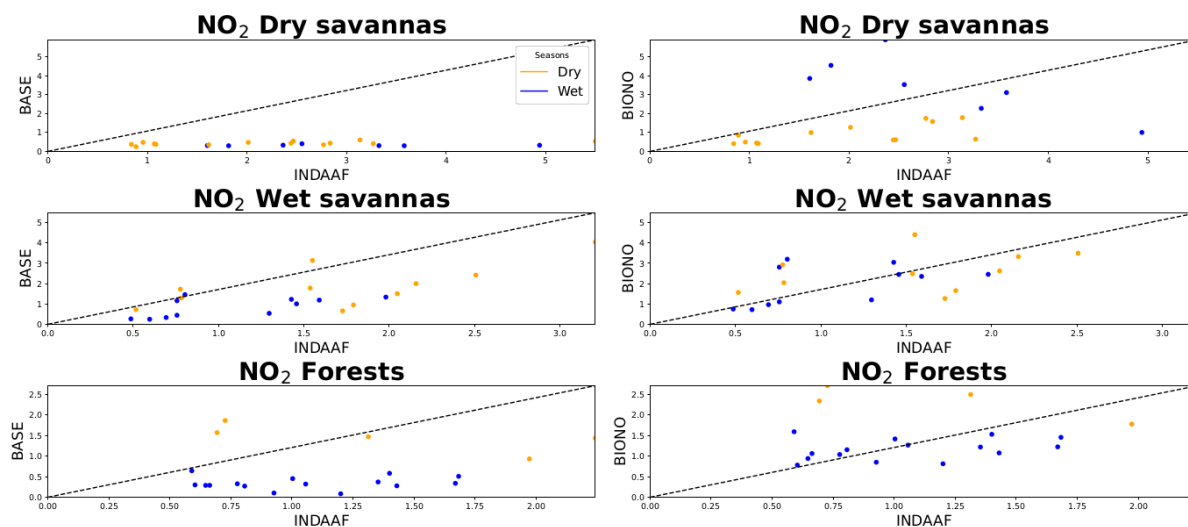


Figure 26 : Concentrations de surface de NO_2 observées (INDAAF) comparées aux concentrations simulées.

Les émissions de BioNO sont prises en compte dans le panneau de droite.

3-3-4- HNO_3 régional : comparaison aux données de réanalyse et de modèle de référence

Les simulations montrent une représentation cohérente de la distribution spatiale de HNO_3 entre les différents modèles (Figure 27). Les concentrations simulées par RegCM5 sont relativement proches de celles fournies par la réanalyse CAMS, mais toutes deux restent nettement inférieures aux concentrations simulées par le modèle GEOS-Chem, ce qui est en partie lié

aux champs d'ozone (O_3) qui seront discutés ultérieurement. Dans la région sahélienne, les faibles concentrations de HNO_3 simulées pendant la saison JJA (run BASE) sont probablement liées à la sous-estimation de NO_2 déjà discutée entre 5° et $20^\circ N$, la HNO_3 étant un produit de l'oxydation du NO_2 . De manière générale, l'ajout des émissions de BioNO augmente les concentrations spatiales simulées de HNO_3 , rapprochant les résultats de RegCM5 de ceux des modèles CAMS et GEOS-Chem (Figure 27). Lorsque les émissions de BioNO sont prises en compte, les concentrations de HNO_3 dans la basse troposphère augmentent jusqu'à 0.3 ppb (Figure 22), avec une corrélation spatiale évidente avec les zones à fortes émissions de BioNO (Figures 20-a et 20-d), comme observé pour NO_2 . Toutefois, l'impact des émissions de BioNO sur HNO_3 est moins marqué que sur NO_2 . Cette moindre sensibilité est probablement liée à des mécanismes chimiques complexes contrôlés par la formation des radicaux OH et de l'ozone O_3 (Steinkamp *et al.*, 2009). En effet, la formation de HNO_3 à partir du NO_2 nécessite la présence d'oxydants tels que OH et O_3 , dont la concentration est fortement modulée par la photochimie régionale et les émissions. Par conséquent, l'effet de BioNO sur les concentrations simulées de HNO_3 est moins direct que pour NO_2 .

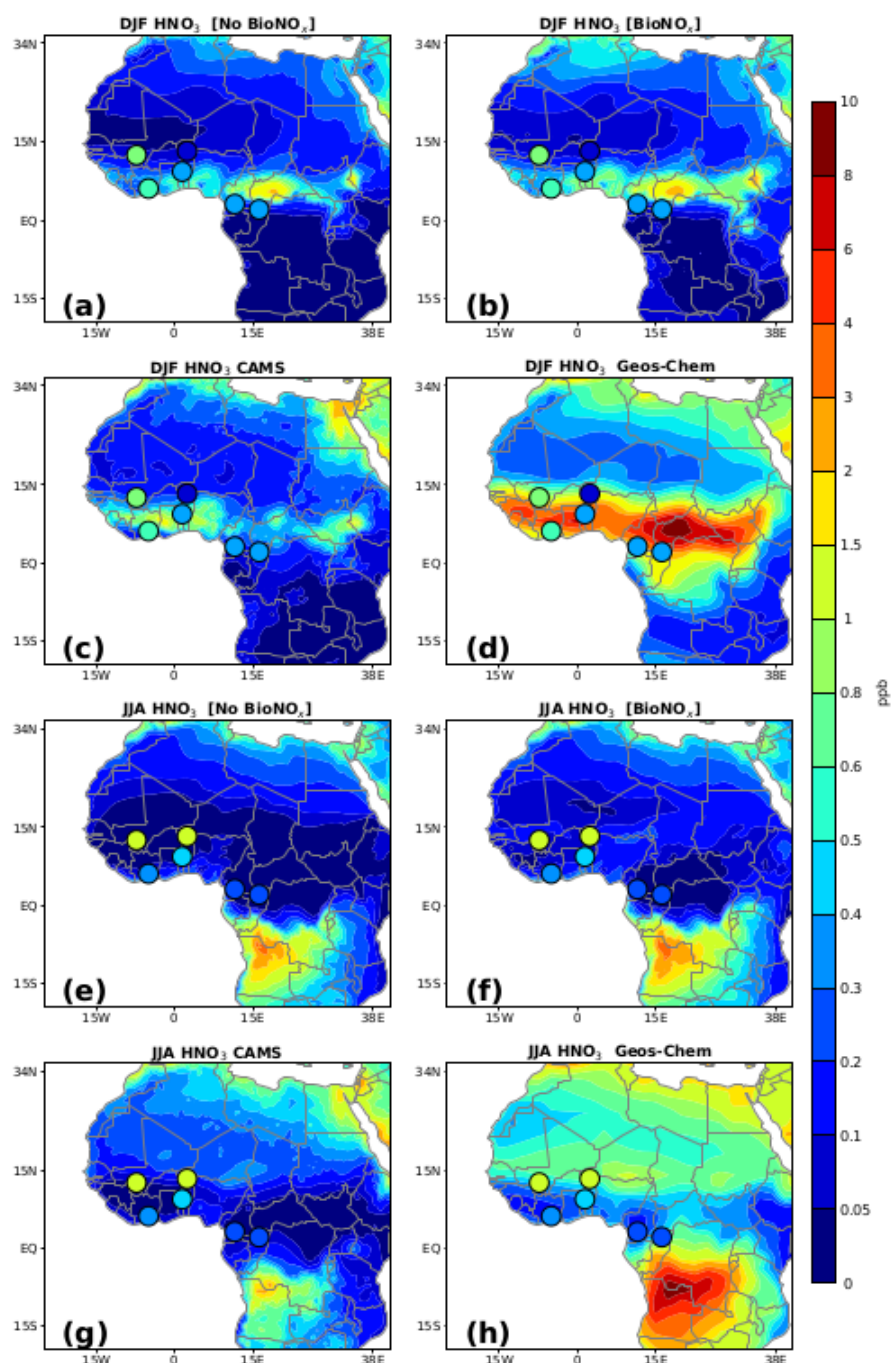


Figure 27 : Comparaison des concentrations de HNO_3 simulées.

La comparaison est faite entre la simulation BASE, la simulation BIONO, la réanalyse CAMS et le modèle GEOS-Chem pour les saisons DJF et JJA. Les valeurs mesurées aux stations INDAAF sont superposées et représentées par de petits cercles sur les cartes.

3-3-5- HNO_3 local : comparaison aux observations in-situ

Comme pour le NO_2 , les concentrations de HNO_3 simulées par RegCM5 et CAMS montrent une sous-estimation marquée par rapport aux mesures disponibles des stations INDAAF (Figure 28). Les biais sont plus importants durant la saison humide et plus faibles pendant la saison

sèche, période où les émissions liées aux feux de biomasse dominant par rapport aux émissions de BioNO (Figure 28/Annexe 5 - Tableau 2). Le biais maximal, observé à la fin du mois de juin en saison des pluies dans les savanes sèches, peut être attribué, au moins en partie, aux mêmes mécanismes que ceux identifiés pour les concentrations moyennes mensuelles de NO₂. Selon Lin *et al.* (2013), l'augmentation des émissions de NO issues du sol et les taux élevés d'oxydation de NO_x sous des conditions chaudes peuvent générer des niveaux atmosphériques élevés de HNO₃.

Malgré une sous-estimation persistante, l'inclusion des émissions de BioNO dans RegCM5 permet de réduire les biais et d'améliorer l'accord avec les observations (Figure 28). Cette amélioration est visible à tous les sites d'étude avec, par exemple, une réduction du biais négatif maximale de -1,73 à -1,67 ppb en juin sur les savanes sèches, soit une diminution de 3,51 %. Ce biais est également présent dans les modèles CAMS et GEOS-Chem pour la même période et la même station (Katibougou), avec des valeurs atteignant respectivement -1,67 et -1,11 ppb. Dans les savanes humides, on observe un biais négatif maximal de -0,77 ppb contre -0,80 ppb en avril (soit une réduction de 4,56 %) et une diminution de 2,27 % du biais en zone forestière. Au-delà de l'amélioration des niveaux de concentration de surface sur les six sites reculés et à l'échelle régionale, l'introduction des émissions en ligne via l'algorithme ANN améliore également la corrélation spatiale entre les concentrations simulées (RegCM5) et celles observées (INDAAF). Cet enrichissement lié au BioNO permet également de mieux représenter l'évolution saisonnière des niveaux de NO₂ et HNO₃ par rapport aux mesures (Figures 26 et 29).

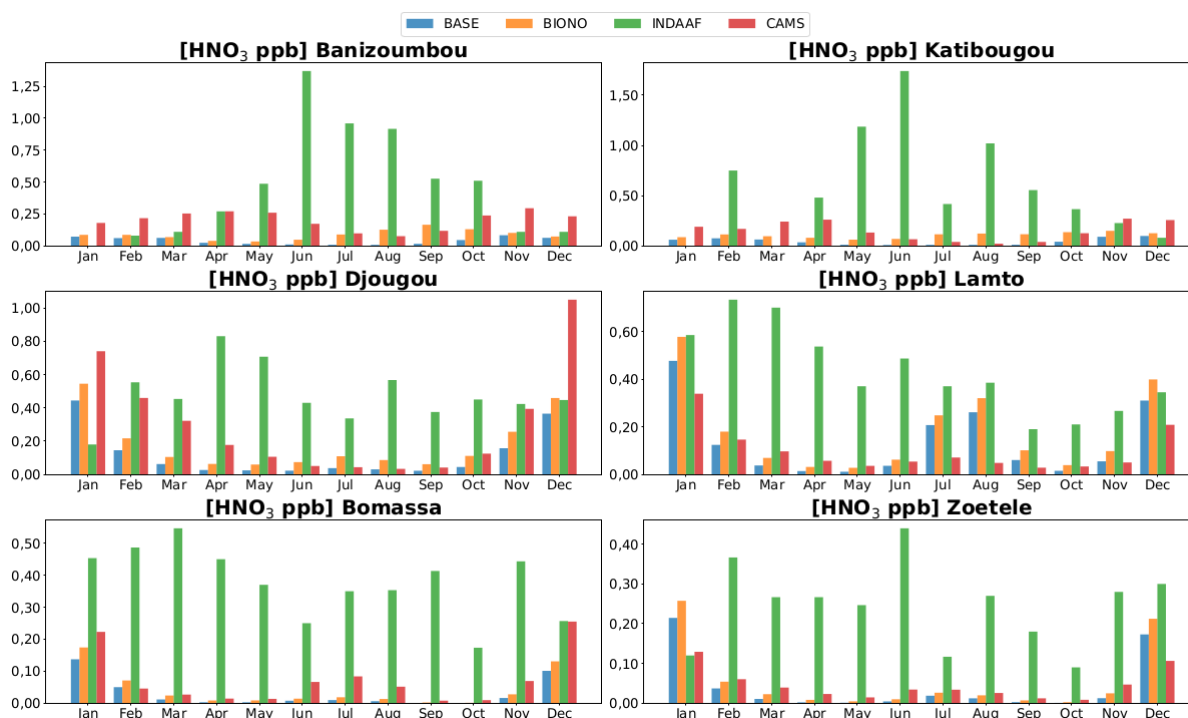


Figure 28 : Concentrations mensuelles moyennes de HNO_3 simulées pour les sites INDAAF. Les concentrations sont présentées pour la simulation BASE, la simulation BIONO, la réanalyse CAMS ainsi que les mesures INDAAF.

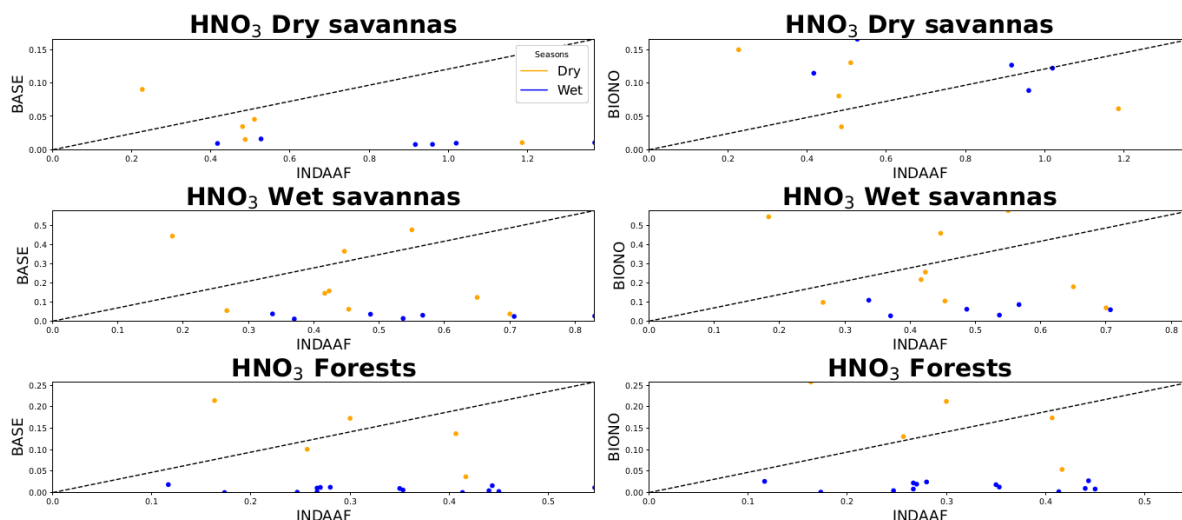


Figure 29 : Concentrations de surface de HNO_3 observées (INDAAF) comparées aux concentrations simulées.

Les émissions de BioNO sont prises en compte dans le panneau de droite.

3-3-6- Ozone régional : comparaison aux données de réanalyse et de modèle de référence

La photochimie de l’ozone, en interaction avec les processus de transport, d’émission et de dépôt, joue un rôle central dans le contrôle des concentrations de composés azotés dans l’atmosphère. La simulation de l’ozone troposphérique reste un défi important en raison des nombreuses sources de variabilité et d’incertitude (Young *et al.*, 2018). Elle dépend d’un ensemble complexe

de facteurs interdépendants, tels que les émissions de précurseurs, la variabilité météorologique, la production et la destruction photochimiques, le dépôt de surface, le transport à longue distance, ainsi que les échanges entre stratosphère et troposphère (Lelieveld & Dentener, 2000).

Nous analysons ici la capacité du modèle RegCM5 à reproduire l'ozone régional, ainsi que l'impact des émissions de BioNO sur la production d'ozone à l'échelle continentale. La figure 30 montre les concentrations régionales d'ozone simulées à la surface par RegCM5 dans les expériences BASE et BIONO, comparées à la réanalyse chimique CAMS et au modèle GEOS-Chem. Une forte saisonnalité des concentrations de surface en O₃ est observée entre les saisons hivernale (DJF) et estivale (JJA), comme l'illustre la Figure 30. Durant la saison DJF, une production importante d'ozone est localisée entre 5°N et 15°N, en lien avec les feux de biomasse (Figure 15). Les concentrations simulées par RegCM5 montrent des motifs spatiaux cohérents avec ceux de CAMS et de GEOS-Chem, mais avec des valeurs plus faibles dans les zones sources, GEOS-Chem affichant les concentrations les plus élevées. Dans les régions où la production chimique locale est faible, telles que le Sahara, le niveau de fond en O₃ est principalement contrôlé par le transport vertical et de longue distance (Sauvage *et al.*, 2005). Ces résultats soulignent la plus-value des conditions aux limites chimiques améliorées utilisées dans RegCM5, qui permettent de mieux représenter les concentrations saisonnières en O₃, comparativement à l'approche par défaut, tout en prenant en compte les événements de transport à grande échelle.

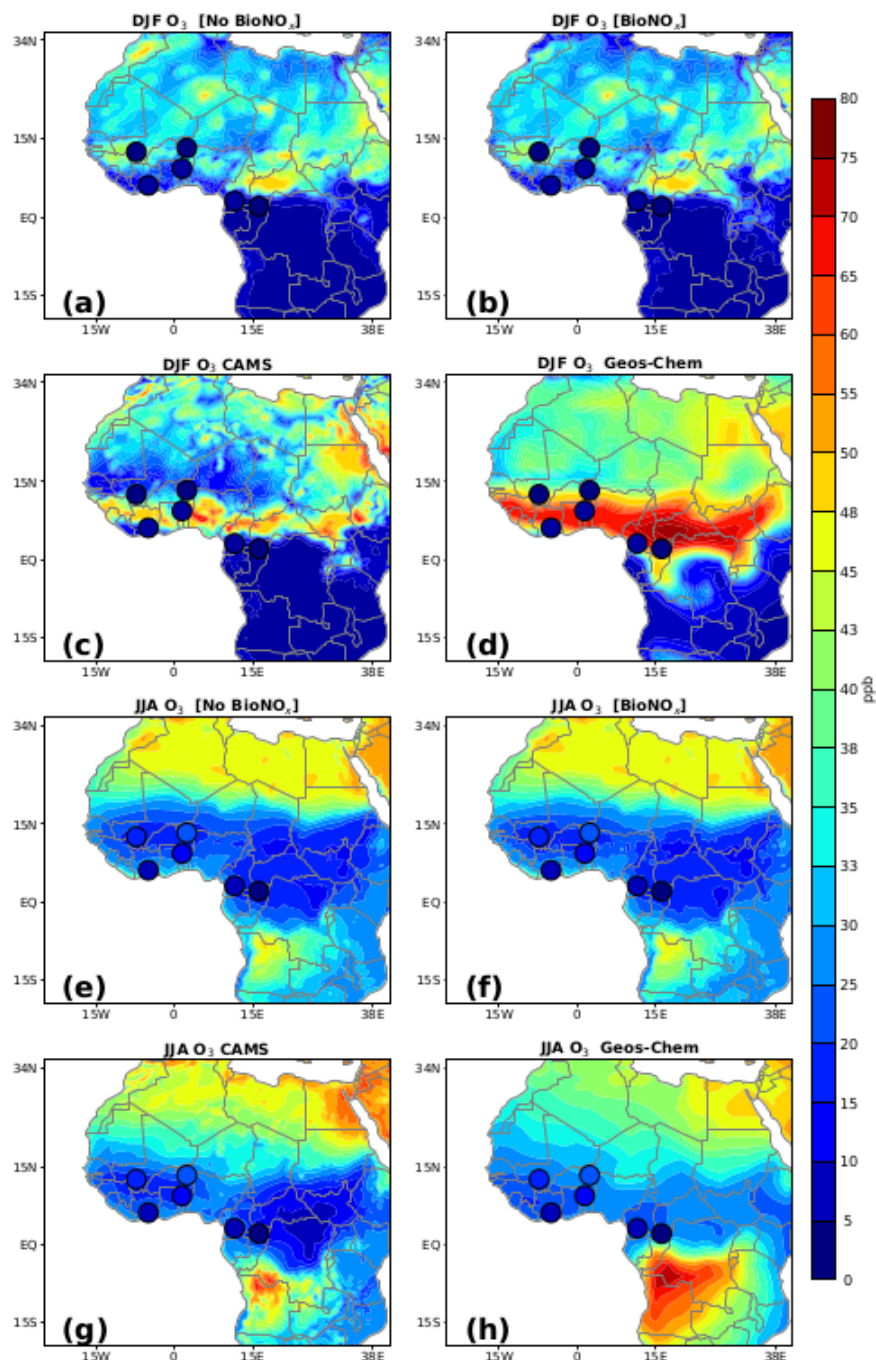


Figure 30 : Comparaison des concentrations de O₃ simulées.

La comparaison est faite entre la simulation BASE, la simulation BIONO, la réanalyse CAMS et le modèle GEOS-Chem pour les saisons DJF et JJA. Les valeurs mesurées aux stations INDAAF sont superposées et représentées par de petits cercles sur les cartes.

En JJA, on observe également une cohérence entre les gradients continentaux simulés par RegCM5 et ceux de la réanalyse CAMS et du modèle GEOS-Chem. Toutefois, une légère surestimation de l’ozone est notée sur l’Afrique du Nord, attribuable à une intensification du transport vertical et du mélange durant la mousson ouest-africaine. Ce phénomène pourrait aussi s’expliquer par un transport sud-nord plus efficace en JJA (Sauvage *et al.*, 2007), ou encore

par une surestimation des échanges stratosphère-troposphère et de la production photochimique locale sous forte radiation solaire (Li *et al.*, 2019). En revanche, dans les régions méridionales dominées par les feux de biomasse, où se concentrent les «points chauds» d’ozone (Sauvage *et al.*, 2007), RegCM5 tend à sous-estimer les concentrations de surface par rapport à CAMS et surtout à GEOS-Chem.

Il est important de souligner que l’analyse des seules concentrations de surface offre une vue partielle des divergences inter-modèles. Une évaluation approfondie du budget troposphérique de l’ozone serait nécessaire pour une analyse plus systématique, mais elle dépasse le cadre de cette étude. Plusieurs travaux ont montré que les divergences dans les simulations d’ozone par les modèles sont particulièrement marquées dans les régions tropicales. Par exemple, une comparaison approfondie entre les modèles GEOS-Chem et CAM-chem (Community Atmosphere Model-chemistry) (Lin *et al.*, 2024) a mis en évidence des différences notables dans les budgets d’ozone et les profils verticaux, en lien avec des variations dans les schémas de photolyse, les interactions avec les aérosols et les processus de transport convectif. Ces différences influencent la manière dont l’ozone est redistribué verticalement, impactant ainsi les concentrations observées en surface (Li *et al.*, 2019). Des études comparatives récentes portant sur l’ozone troposphérique dans diverses régions tropicales, y compris en Afrique, confirment que de telles divergences sont fréquentes et souvent liées à la manière dont chaque modèle traite les émissions, les hauteurs d’injection et les dynamiques verticales (Lin *et al.*, 2024). Tsvilidou *et al.* (2023) soulignent qu’il est essentiel de prendre en compte la combinaison entre la hauteur d’injection des précurseurs de l’ozone et le mélange vertical intense caractéristique des tropiques, qui détermine en grande partie les concentrations en surface. À cela s’ajoutent les interactions non linéaires entre les NO_x et les COV, ainsi que les incertitudes liées aux émissions biogéniques, qui doivent être analysées avec précaution lors de l’interprétation des résultats des modèles.

Les figures 31-c et 31-f illustrent l’influence des émissions de BioNO sur le champ simulé d’ozone en surface par RegCM5. La production ou la destruction successive de O_3 ne dépend pas uniquement des concentrations de NO_x , mais aussi du rapport NO_x/COV , qui détermine le régime chimique de l’ozone dans les différentes sous-régions du domaine. À l’échelle régionale à continentale, et pour les deux saisons, l’introduction des émissions de BioNO entraîne à la fois une augmentation et une diminution de la production d’ozone en surface, avec un effet globalement croissant dans la basse troposphère (Figures 22-c,f et 31-c,f).

Dans les zones coïncidant avec de fortes émissions de BioNO, on observe cependant une réduc-

tion notable des concentrations d'ozone en surface, atteignant jusqu'à 2 ppb. Cette diminution est probablement liée à des processus de titration de l'ozone, caractéristiques d'un régime limité en COV. En effet, dans les zones riches en NO_x (comme les sources de BioNO), la formation d'ozone peut être limitée par les COV, ou bien alterner entre différents régimes chimiques selon, par exemple, l'heure de la journée (Kleinman, 1994 ; Sillman & He, 2002). À mesure que l'on s'éloigne de ces sources intenses de NO_x , la réponse moyenne de l'ozone devient positive, traduisant le changement classique de régime chimique en aval des sources. Ce processus est illustré en JJA dans la région de la mousson (vent vertical «wa») où les sources sahéliennes intenses de BioNO diminuent localement l'ozone de surface, mais contribuent à une augmentation en aval dans le nord du Sahel et le sud du Sahara (motif dipolaire visible sur la figure 31-f). Dans ce cas, le rapport NO_x/COV diminue et le régime chimique devient plus limité en NO_x (Delon *et al.*, 2008; Stewart *et al.*, 2008).

En DJF, l'augmentation de l'ozone de surface peut atteindre jusqu'à 4 ppb dans la partie sud du domaine, tandis qu'en JJA, on observe des hausses allant jusqu'à 3 ppb au-dessus du Sahel et de l'Afrique de l'Est. En Afrique de l'Ouest, les effets du régime limité en NO_x s'étendent jusqu'à la basse troposphère, avec une augmentation moyenne de la concentration en ozone atteignant 4 ppb (Figures 22-c,f). Ce comportement est cohérent avec les résultats de Delon *et al.* (2008), qui ont montré qu'une augmentation modérée des concentrations de NO_x conduit à une légère hausse de l'ozone simulé à toutes les altitudes (0–15 km), caractéristique d'un régime limité en NO_x . Plusieurs études ont confirmé que, dans une grande partie de la troposphère et dans de nombreuses régions tropicales, y compris en Afrique, la formation de O_3 est principalement limitée par les NO_x (par exemple Li *et al.*, 2021; Tadic *et al.*, 2021).

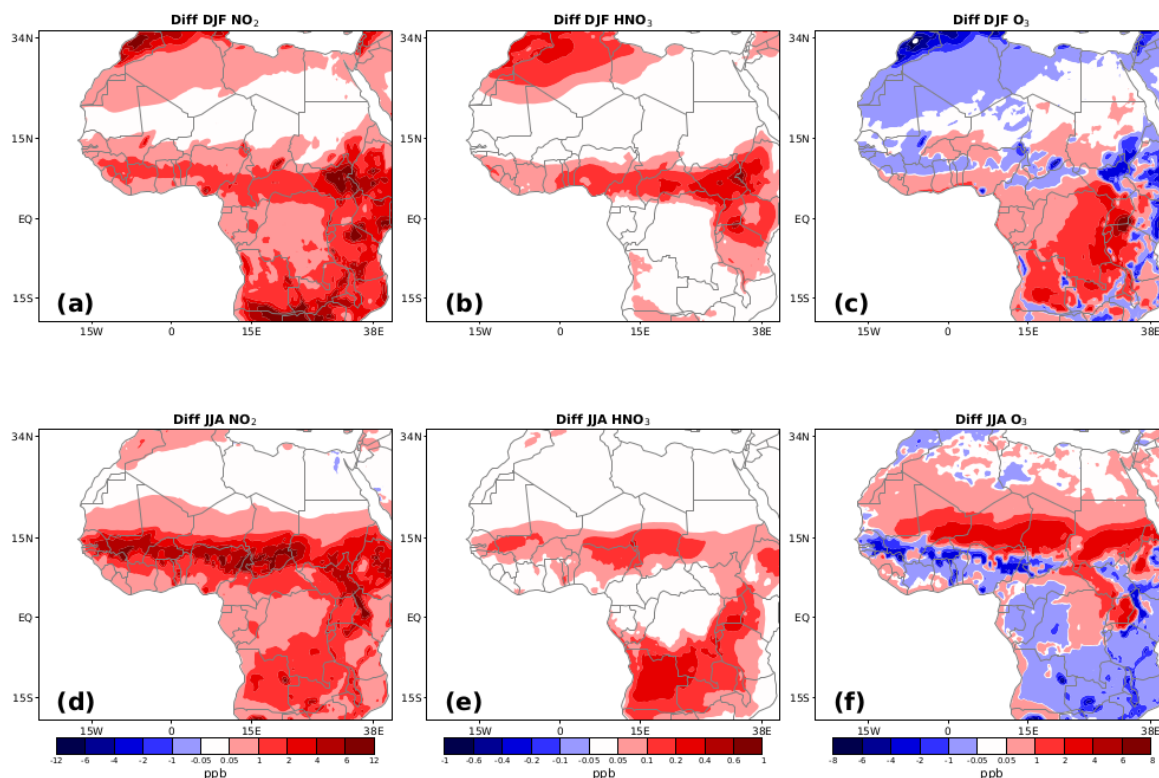


Figure 31 : Différences DJF et JJA des concentrations de surface simulées.

La différence est faite entre les simulations BIONO et BASE pour NO₂ (colonne de gauche), HNO₃ (colonne du centre) et O₃ (colonne à droite).

3-3-7- Ozone local : comparaison aux observations in-situ

La comparaison avec les mesures in-situ du réseau INDAAF montre que l'ajout des émissions de BioNO améliore peu les concentrations simulées d'ozone à l'échelle locale, contrairement aux autres espèces étudiées précédemment (Figure 32). On observe toutefois une réduction générale du biais, traduisant une meilleure concordance entre les valeurs simulées et observées sur la plupart des sites durant la période de juin à août. Par exemple, en savane sèche, le biais négatif maximal est réduit de 83,38 % en juin à Banizoumbou (voir Annexe 5 - Tableau 3). Néanmoins, les émissions de BioNO entraînent parfois une augmentation du biais positif, comme en mars à Banizoumbou où l'on note une hausse de +2,4 %.

Pour la période JJA, en savanes humides et en forêts équatoriales, on observe une légère diminution des concentrations simulées de O₃ lorsque les émissions de BioNO sont prises en compte, ce qui conduit à une amélioration très modeste des résultats du modèle. Dans les écosystèmes forestiers tropicaux, les concentrations en ozone en surface sont fortement influencées par le transport régional en provenance des zones de feux, mais aussi par les échanges verticaux locaux entre la surface et la basse troposphère.

La comparaison avec les modèles CAMS et GEOS-Chem montre que ces derniers ont également des difficultés à représenter fidèlement les concentrations d’ozone observées sur les sites INDAAF. Par exemple, en janvier à Zoétéle, CAMS et GEOS-Chem présentent respectivement des biais de 24,77 ppb et 49,95 ppb, ce qui reste particulièrement élevé malgré l’utilisation de schémas chimiques avancés et de techniques d’assimilation de données. Ces écarts suggèrent que les différences observées proviennent de limites plus larges dans la représentation de la dynamique régionale de l’ozone par les modèles. Comparer les concentrations simulées à celles mesurées in situ peut être délicat, notamment en raison de la présence d’une canopée dense sur les sites de mesure, qui peut fortement influencer la dynamique locale et la chimie atmosphérique (Bryan et Steiner, 2013). Les schémas de dépôt secs utilisés pour l’ozone, notamment le schéma de « big leaf », ne permettent qu’une représentation grossière des processus de dépôt au sein de la canopée. De plus, certaines pertes chimiques spécifiques à la couche de canopée ne sont pas correctement paramétrées (Ganzeveld & Lelieveld, 2004 ; Sun *et al.*, 2022). Ces processus de dépôt et de transformation chimique au sein de la canopée devraient idéalement être pris en compte pour mieux expliquer les écarts entre les simulations et les observations in-situ, en particulier le fait que les concentrations observées sont systématiquement bien plus faibles que celles simulées (Figures 32 et 33).

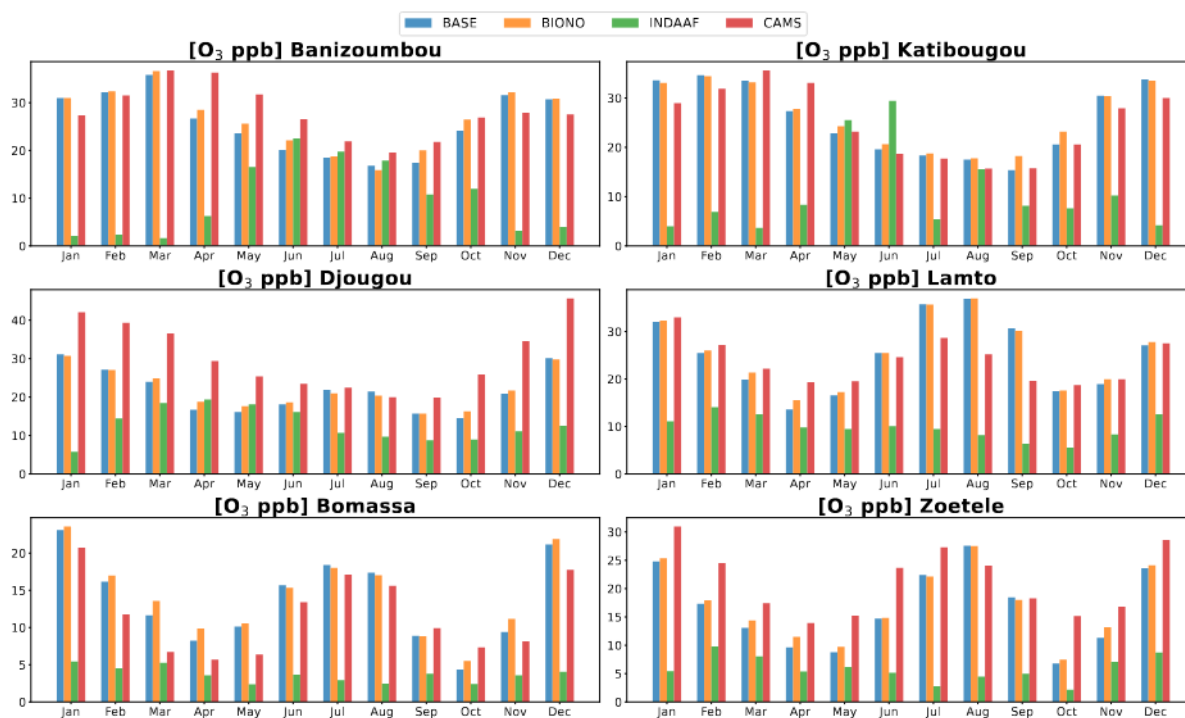


Figure 32 : Concentrations mensuelles moyennes de O₃ simulées pour les sites INDAAF.

Les concentrations sont présentées pour la simulation BASE, la simulation BIONO, la réanalyse CAMS ainsi que les mesures INDAAF.

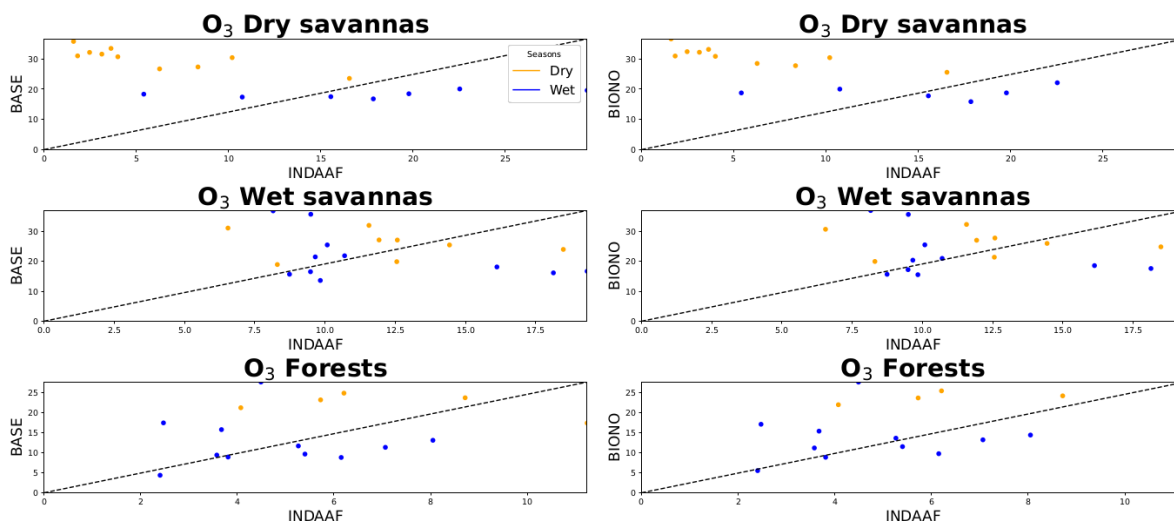


Figure 33 : Concentrations de surface de O_3 observées (INDAAF) comparées aux concentrations simulées.

Les émissions de BioNO sont prises en compte dans le panneau de droite.

Conclusion partielle

Ce chapitre a présenté une évaluation des performances du modèle RegCM5 en matière de simulation climatique et chimique sur la région de l’Afrique intertropicale. Dans un premier temps, nous avons analysé les variables climatiques clés telles que la température, les précipitations et la circulation de mousson, afin de juger de la capacité du modèle à reproduire les conditions environnementales influençant les processus chimiques. Les résultats ont montré que RegCM5 reproduit assez bien les structures saisonnières du climat régional, bien que certaines sous-estimations persistent, notamment une sous estimation des températures et des précipitations de l’ordre de -5 à -1 °C et de -5 à $0,5$ $mm.day^{-1}$, respectivement. À l’échelle régionale, les concentrations simulées de NO_2 , HNO_3 et O_3 s’accordent globalement avec la réanalyse CAMS et les simulations du modèle de référence GEOS-Chem. À l’échelle locale, des comparaisons avec les mesures des stations INDAAF ont mis en évidence une sous-estimation des concentrations de NO_2 et HNO_3 , en particulier pendant la saison humide sur les stations de savane sèche, mais également une surestimation notable de l’ozone. Dans un second temps, l’impact des émissions de BioNO a été analysé. L’introduction de ces émissions permet d’améliorer les concentrations simulées de NO_2 et HNO_3 et de réduire les biais dans certaines régions (jusqu’à 86% de réduction en zones forestières par exemple). L’effet sur l’ozone est plus contrasté, avec des baisses locales liées à la titration par le NO, et des hausses régionales en lien avec un régime chimique limité en NO_x . Ces effets varient selon les écosystèmes et les saisons, illustrant la complexité des interactions entre chimie atmosphérique, climat et sources d’émissions. Les résultats

soulignent ainsi la plus-value de l'intégration dynamique des émissions de BioNO, notamment dans les régions sahéliennes, tout en montrant les limites de l'approche actuelle basée sur un réseau neuronal artificiel (ANN), qui ne prend pas en compte l'évolution du stock d'azote dans le sol. Cette première évaluation ouvre la voie à une analyse plus détaillée des dépôts azotés, objet du chapitre suivant.

CHAPITRE 4 : ESTIMATIONS REGIONALE ET LOCALE DU DEPOT D'AZOTE

Dans le chapitre précédent, nous avons mis en évidence l'importance de l'intégration des BioNO dans le modèle, montrant ainsi que cette inclusion améliore la représentation des concentrations d'espèces en comparaison avec les observations du réseau INDAAF. Forts de ce constat, nous nous intéressons dans ce chapitre à l'estimation des dépôts atmosphériques d'azote, en nous appuyant sur une simulation de neuf ans (2011-2019) prenant en compte ces émissions de NO.

4-1- Emissions d'azote

Dans cette partie, les émissions de NO_x et de NH₃ sont analysées, car elles constituent des facteurs potentiellement majeurs dans le contrôle des concentrations régionales d'azote et des dépôts associés. La figure 34 présente la distribution géographique (34a et 34b) ainsi que l'évolution mensuelle (34c et 34d) des émissions de NO_x et de NH₃ sur le domaine, moyennées sur la période 2011–2019. Les émissions les plus élevées de NO_x sont observées en Afrique de l'Est, en particulier dans les régions caractérisées par une activité agricole intense et des émissions biogéniques. Cette répartition coïncide avec la forte activité convective et les saisons humides marquées qui caractérisent l'Afrique de l'Est (Palmer *et al.*, 2023), favorisant les émissions biogéniques et les pratiques agricoles. Des émissions importantes de NO_x sont également observées en Afrique centrale (zone forestière), principale source d'émissions liées aux feux de biomasse (Dajuma *et al.*, 2020), ainsi que sur la côte guinéenne, où les sources anthropiques, telles que les zones urbaines et le trafic routier, prédominent (Oluleye *et al.*, 2021).

Les émissions de NH₃ présentent des fortes valeurs dans les zones agricoles, notamment sur la côte guinéenne et certaines parties de l'Afrique de l'Est. Cette répartition reflète l'intensité des activités agricoles, telles que l'utilisation d'engrais et l'élevage, qui constituent les principales sources d'émission de NH₃ dans les régions tropicales. En comparaison, l'Afrique centrale présente des émissions plus faibles, en lien avec des pratiques agricoles moins intensives.

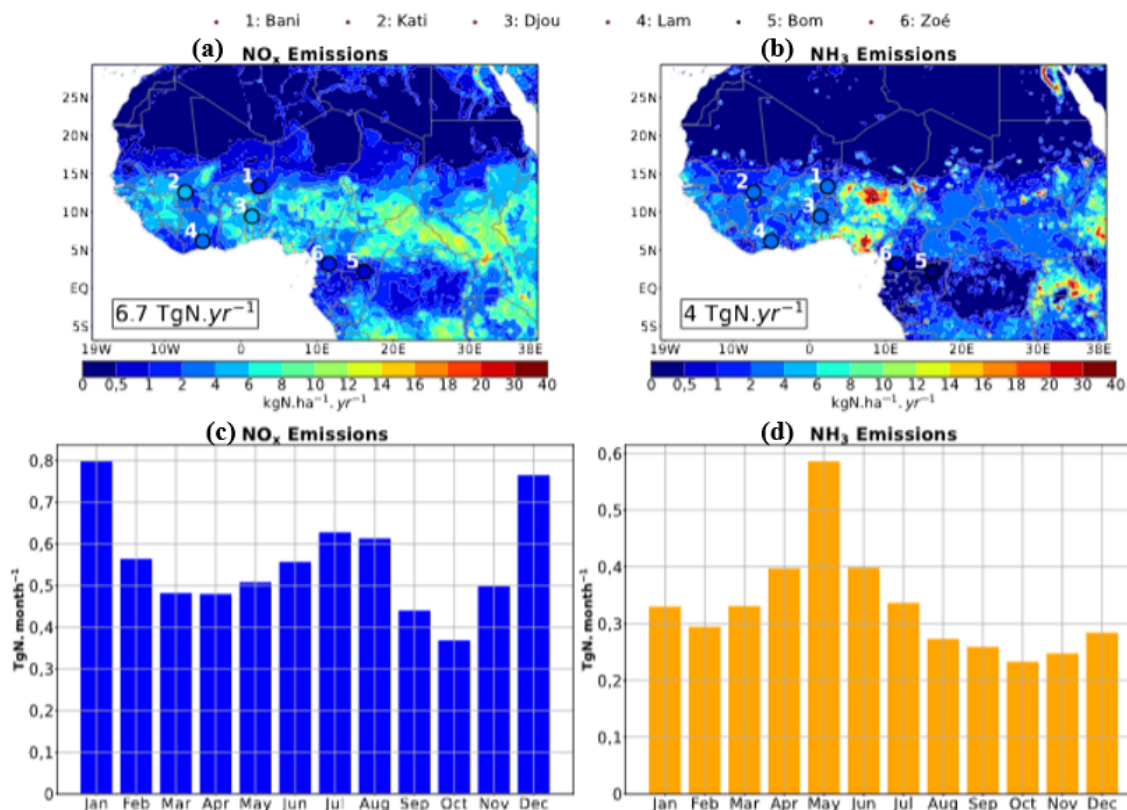


Figure 34 : Émissions de NO_x et de NH₃ entre 2011 et 2019.

La ligne supérieure présente les émissions annuelles totales simulées par RegCM5. Les totaux annuels sur l'ensemble du domaine ($2,65 \times 10^9$ hectares) sont indiqués en encadré, et les valeurs simulées aux stations INDAAF sont superposées sous forme de petits cercles sur les cartes. La ligne inférieure montre les variations saisonnières des émissions annuelles de NO_x et de NH₃ simulées sur l'ensemble du domaine.

Le tableau VI présente les émissions simulées de NO_x et de NH₃ moyennées sur la période 2011–2019 pour les différentes régions. Sur l'ensemble du domaine ($2,65 \times 10^9$ hectares), les émissions moyennes sont estimées à $6,69 \text{ TgN}\cdot\text{an}^{-1}$ pour le NO_x et à $3,97 \text{ TgN}\cdot\text{an}^{-1}$ pour le NH₃. Les émissions de NO_x atteignent leur maximum pendant la saison de décembre-janvier-février (DJF) (Figure 34c), avec une moyenne de $3,208 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$, soit bien au-dessus de la moyenne annuelle de $2,527 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ (tableau VII). Ce pic correspond à la saison sèche en Afrique, caractérisée par une activité intense de feux de biomasse. Les émissions les plus faibles de NO_x sont observées entre septembre et novembre (SON), avec une moyenne de $1,972 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$, inférieure à la moyenne annuelle.

Tableau VI : Émissions annuelles simulées de NO_x et NH₃.

Espèces	Domaine (TgN an ⁻¹)	Sahel	Côte de Gui- née	Afrique de l'Est	Afrique de Centrale
NO _x	6,69	3,806	4,005	6,301	4,111
NH ₃	3,97	3,425	4,303	4,821	1,562

Elles sont moyennées sur la période 2011-2019 pour les quatre différentes régions (kgN ha⁻¹ an⁻¹) et pour l'ensemble du domaine (TgN an⁻¹).

De manière similaire, les émissions de NH₃ sont les plus élevées pendant les périodes mars-avril-mai (MAM) et juin-juillet-août (JJA), avec des moyennes respectives de 1,983 et 1,521 kgN·ha⁻¹·an⁻¹, supérieures à la moyenne annuelle de 1,498 kgN ha⁻¹ an⁻¹. Ces pics traduisent une intensification des activités agricoles, notamment l'application d'engrais, durant ces saisons. Ces variations saisonnières soulignent l'influence dominante des feux de biomasse sur les émissions de NO_x et des pratiques agricoles sur celles de NH₃. Elles se reflètent également, en partie, dans le cycle saisonnier des concentrations simulées, comme il sera discuté dans la section suivante.

Tableau VII : Émissions saisonnières simulées de NO_x et NH₃.

Espèces	Saisons	Moyenne
NO _x	MAM	2,216
	JJA	2,711
	SON	1,972
	DJF	3,208
NH ₃	MAM	1,983
	JJA	1,521
	SON	1,115
	DJF	1,370

Elles sont moyennées sur la période 2011-2019 pour l'ensemble du domaine (kgN ha⁻¹ an⁻¹).

4-2- Validation des concentrations simulées sur la période d'étude

Les concentrations atmosphériques jouant un rôle déterminant dans les processus de dépôt, il est essentiel de valider celles provenant de nos simulations en les confrontant à des données de mesure. Dans cette partie, nous nous intéressons aux concentrations simulées de NO₂, NH₃ et HNO₃ en les comparant aux mesures du réseau INDAAF sur la période 2011–2019, pour les six

stations représentatives des grands écosystèmes africains.

La performance de la simulation de ces espèces est illustrée à la Figure 35. Une bonne concordance est observée pour l'ensemble des espèces dans les savanes sèches et humides, avec des coefficients de corrélation (R) dépassant souvent 0,4 et des erreurs quadratiques moyennes (RMSE) inférieures à 3 ppb (Tableau VIII). Ces coefficients traduisent la capacité du modèle à reproduire la variabilité temporelle des concentrations observées. Toutefois, ils ne permettent pas à eux seuls d'évaluer la qualité absolue des simulations, comme en témoignent les biais parfois importants observés pour certaines stations. Compte tenu de la longueur des séries temporelles utilisées (moyennes mensuelles sur 9 ans), ces corrélations peuvent néanmoins être considérées comme représentatives des relations entre simulations et observations..

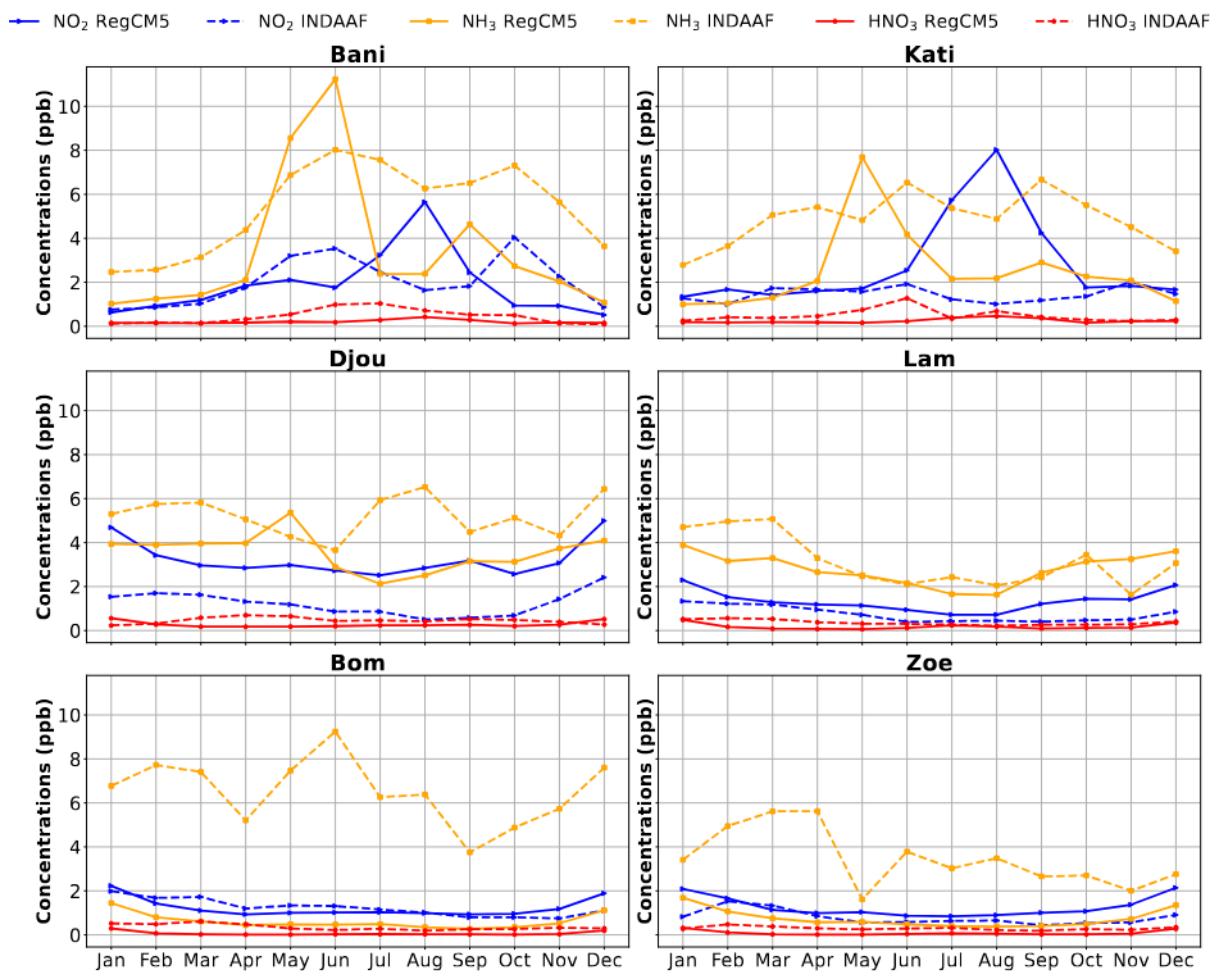


Figure 35 : Comparaison des concentrations mensuelles des espèces entre RegCM5 et INDAAF, moyennées sur la période 2011-2019.

L'analyse des biais met en évidence une surestimation marquée du NO₂, avec des biais atteignant 92,57 % à Katibougou, 79,28 % à Lamto et 163,59 % à Djougou. Cette surestimation pourrait être

attribuée à un excès de BioNO, particulièrement en saison humide, conséquence de l'intégration de l'algorithme ANN dans le modèle, comme cela a été souligné dans le chapitre 3.

Tableau VIII : Biais moyen normalisé (Bias), erreur quadratique moyenne (RMSE) et coefficient de corrélation (R).

Espèces	Métriques	Bani	Kati	Lam	Djou	Bom	Zoe
NO ₂	Biais	-8,52	92,57	79,28	163,59	-1,06	60,73
	RMSE	1,66	2,58	0,69	2,07	0,37	0,64
	R	0,11	-0,51	0,64	0,73	0,56	0,42
NH ₃	Biais	-36,54	-48,81	-10,79	-31,80	-90,63	-78,63
	RMSE	3,04	2,92	0,97	2,12	6,07	3,02
	R	0,66	0,40	0,60	-0,22	0,39	0,08
HNO ₃	Biais	-53,58	-48,66	-50,58	-39,69	-81,78	-71,23
	RMSE	0,37	0,37	0,23	0,31	0,32	0,24
	R	0,56	0,09	0,36	-0,80	0,26	0,26

R représente le coefficient de la corrélation entre les concentrations simulées et observées des espèces Nr (NO₂, NH₃ et HNO₃) sur la période 2011-2019.

Par ailleurs, l'une des observations les plus frappantes de cette évaluation est la sous-estimation systématique des concentrations de NH₃, un biais particulièrement marqué dans les écosystèmes forestiers. Cette sous-estimation résulte probablement d'incertitudes dans les inventaires d'émissions de NH₃, mais également d'un facteur intrinsèque propre à ce composé : sa nature semi-volatile. En effet, contrairement à la plupart des gaz atmosphériques, NH₃ ne suit pas un cycle unidirectionnel strictement limité à l'émission ou au dépôt, mais s'engage dans un échange bidirectionnel avec la surface terrestre. Ce phénomène, est cependant souvent négligé dans les modèles atmosphériques, y compris dans le nôtre, ce qui pourrait limiter leur capacité à reproduire de manière réaliste les concentrations et dépôts de NH₃. Dans de nombreux modèles, les processus d'émission et de dépôt sec du NH₃ sont encore traités de manière indépendante, ignorant leur interdépendance (Simpson *et al.*, 2012). Cette approche simpliste conduit à une représentation inadéquate des flux de NH₃ et, dans la plupart des cas, à une sous-estimation de ses concentrations ambiantes. Une approche plus réaliste consiste à adopter une modélisation bidirectionnelle basée sur un gradient de concentration, intégrant à la fois les processus d'émis-

sion et de dépôt, afin de mieux représenter leur interaction. Ces modèles permettent de capturer de manière plus précise les flux de surface de NH_3 en répondant simultanément aux variations des émissions et des conditions de dépôt, contribuant ainsi à une meilleure compréhension du comportement atmosphérique de cette espèce et d'améliorer la précision des simulations. Outre l'absence de représentation bidirectionnelle dans les modèles, la sous-estimation des concentrations ambiantes de NH_3 reste également liée à la sous-évaluation des émissions issues des sources primaires, ce qui introduit un biais structurel dans les simulations (par exemple Zhu *et al.*, 2015).

4-3- Estimation du dépôt d'azote réactif

Dans le modèle, plusieurs espèces de l'azote réactif sont prises en compte pour le dépôt. Il s'agit notamment de NO_2 , NH_3 , HNO_3 , pNH_4^+ , pNO_3^- et PAN (PeroxyAcetyl Nitrate) pour le dépôt sec et de NH_4^+ , NO_3^- , pNH_4^+ , pNO_3^- , ONIT (Organic NITrates) et HNO_4 pour le dépôt humide. Ces espèces, sous forme gazeuse ou particulaire, interagissent avec les surfaces terrestres et sont déposées via des processus physico-chimiques d'absorption et d'impaction (dépôt sec) ainsi que par le lessivage atmosphérique induit par les précipitations (dépôt humide). Cette section présente l'estimation spatiale du dépôt de ces différentes espèces, en s'appuyant sur une simulation couvrant la période 2011-2019. L'analyse met en évidence les principales zones d'accumulation, les variations régionales et les processus qui contrôlent les dépôts sec et humide à l'échelle du domaine d'étude.

4-3-1- A l'échelle régionale

Nous analysons à présent les estimations et les contributions des différents processus responsables du dépôt d'azote réactif (Nr) à l'échelle du domaine d'étude ($2,65 \times 10^9$ hectares). Plus précisément, nous quantifions le dépôt total ainsi que la part relative des dépôts humide et sec, des formes réduites (NH_x) et oxydées (NO_y), et des espèces individuelles de l'azote. La figure 36 illustre les flux annuels de dépôt humide et sec pour les formes oxydées (NO_y) et réduites (NH_x), tandis que le tableau IX présente un résumé des dépôts annuels totaux associés à chaque processus et à chaque espèce sur l'ensemble du domaine. La distribution spatiale des dépôts secs suit celle des émissions (Figure 34), alors que le dépôt humide dépend à la fois des précipitations et des émissions, ce qui est cohérent avec les processus de lessivage atmosphérique. Cette relation est également suggérée par la distribution spatiale des précipitations simulées (Figure 18), bien que cette dernière soit présentée sur un domaine et une période légèrement différents, mais

représentatifs des structures climatiques régionales. À l'échelle régionale, les espèces oxydées (NO_y) sont majoritairement éliminées par dépôt humide plutôt que par dépôt sec ($2,32 \text{ TgN}\cdot\text{an}^{-1}$ contre $1,38 \text{ TgN}\cdot\text{an}^{-1}$), tandis que les espèces réduites (NH_x) sont principalement éliminées par dépôt sec ($1,5 \text{ TgN}\cdot\text{an}^{-1}$ contre $0,39 \text{ TgN}\cdot\text{an}^{-1}$) (figure 36, tableau IX). L'efficacité plus élevée du dépôt humide pour les NO_y s'explique principalement par la forte contribution de l'acide nitrique (HNO_3) éliminé par voie humide (c'est-à-dire Wet NO_3^-), comme indiqué dans le tableau IX. Sur une base annuelle, le NO_3^- représente 86,2 % du dépôt humide de NO_y , suivi par pNO_3^- (9,9 %) et ONIT (3,9 %).

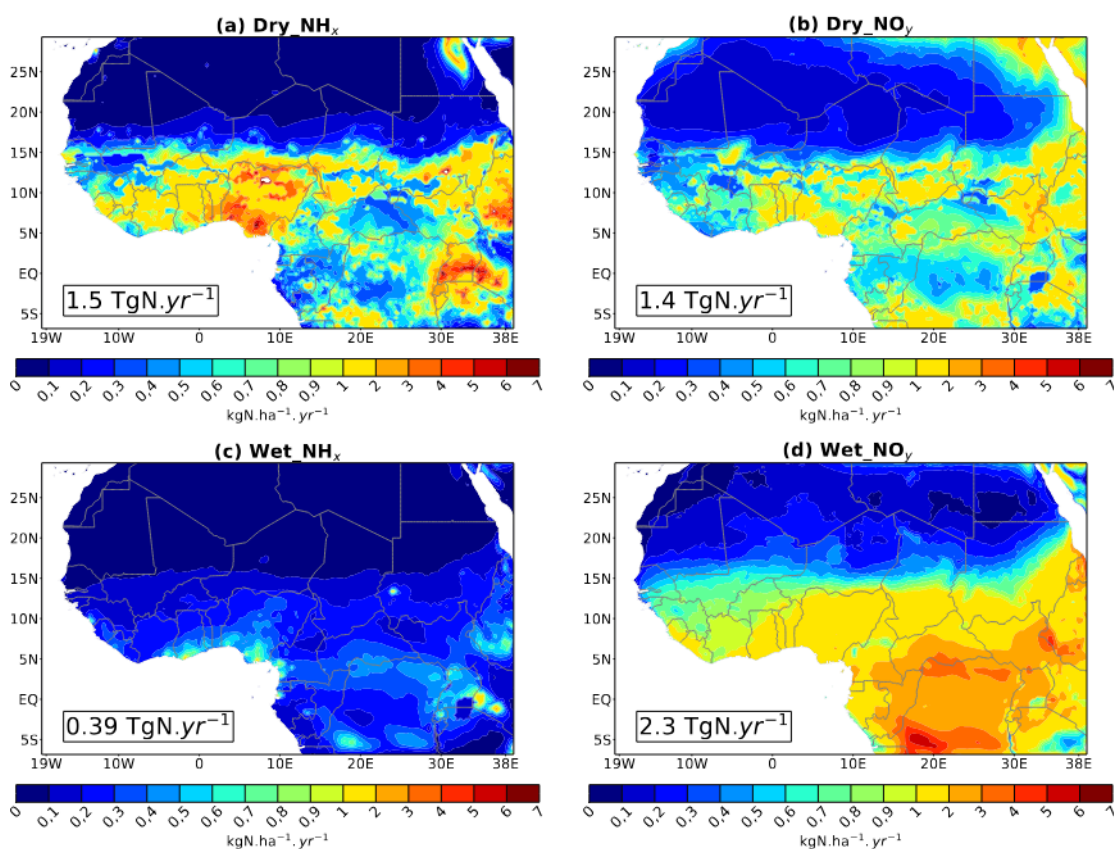


Figure 36 : Distribution spatiale des flux annuels de dépôt d'azote.

Les cartes (a,b) représentent les dépôts secs des formes réduite (NH_x) et oxydée (NO_y), et les cartes (c,d) les dépôts humides correspondants. Ces flux sont moyennés sur la période 2011-2019 et exprimés en $\text{kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$.

Concernant le dépôt sec du NO_y , NO_2 et HNO_3 sont les principaux contributeurs avec des parts respectives de 53,62 % et 46,37 %, tandis que PAN et pNO_3^- ne jouent qu'un rôle marginal (0,52 % et 0,1 %). Pour les formes réduites (NH_x), le dépôt sec est largement dominé par NH_3 (98,9 % du dépôt sec de NH_x), ce qui s'explique par sa forte concentration atmosphérique (et possiblement par une vitesse de dépôt plus élevée) comparée à l'aérosol ammonium (pNH_4^+). En revanche, pNH_4^+ est le principal contributeur au dépôt humide de NH_x , NH_4^+ dissous y jouant

un rôle négligeable.

Tableau IX : Dépôt simulé d'azote (TgN an^{-1}) pour le domaine^a

Formes	Processus de dépôt	Dépôt
NO_y	Total	3,7
	Dry NO_2	0,74
	Dry HNO_3	0,64
	Dry PAN	0,0072
	Dry pNO_3^-	0,0016
	Wet NO_3^-	2,00
	Wet pNO_3^-	0,23
	Wet ONIT	0,09
	Wet HNO_4	$1,9 \times 10^{-8}$
NH_x	Total	1,9
	Dry NH_3	1,5
	Dry pNH_4^+	0,076
	Wet NH_4^+	$2,3 \times 10^{-6}$
	Wet pNH_4^+	0,30
Dry	Total	2,9
Wet	Total	2,7

^aDépôts totaux annuels d'azote pour 2011-2019 calculés avec le modèle RegCM5.

Ce résultat pourrait s'expliquer par une faible représentation du NH_3 dans les processus de lessivage par les précipitations dans notre configuration de modèle. Selon nos simulations, environ 3,7 TgN de NO_y et 1,9 TgN de NH_x sont déposés chaque année sur le domaine. La comparaison avec les émissions (tableau VI) indique que 2,98 TgN sous forme de NO et 2,07 TgN sous forme de NH_x ne sont pas déposés localement. Cette fraction correspond à une part du budget d'azote non déposée à l'intérieur du domaine de simulation, pouvant résulter de processus d'export atmosphérique vers les régions adjacentes et/ou de temps de résidence atmosphérique plus long. Cela représente respectivement 44,5 % des émissions de NOx et 51,9 % des émissions de NH_3 .

En ce qui concerne les types de dépôt, le dépôt sec est principalement dominé par le NH_3 (Tableau IX, figure 37b), qui représente 51,72 % du flux total de dépôt sec, suivi par le NO_2 (25,51 %) et le HNO_3 (22,06 %), tandis que les autres espèces contribuent de manière négligeable ($< 0,5$ %). La prédominance du NH_3 dans le dépôt sec peut être attribuée à sa concentration atmosphérique élevée (figure 35). Pour le dépôt humide, NO_3^- est l'espèce majoritairement déposée (figure 38b), représentant 74,4 % du total, suivi par pNH_4^+ (14,4 %), pNO_3^- (8,5 %) et ONIT (3,3 %). La forte contribution du NO_3^- au dépôt humide est attendue en raison de sa grande solubilité et de son efficacité à être éliminé par les précipitations. pNH_4^+ joue également un rôle significatif, reflétant la transformation des particules contenant du NH_4^+ en particules d'ammonium, qui sont ensuite éliminées par les précipitations. En revanche, les contributions plus faibles de pNO_3^- et de ONIT suggèrent que les voies d'oxydation secondaires responsables de leur formation, suivies de leur élimination par lessivage humide, jouent un rôle moins dominant par rapport à la formation directe et au dépôt de HNO_3 . Ces résultats mettent en évidence les rôles contrastés des différentes espèces azotées dans les processus de dépôt sec et humide, soulignant l'importance des interactions avec les surfaces et du lessivage par les précipitations dans la dynamique du dépôt d'azote sur l'ensemble du domaine.

En termes de différences régionales, la figure 36 illustre la distribution spatiale des dépôts d'azote selon les formes et les espèces. Le flux annuel moyen de dépôt d'azote oxydé (NO_y), calculé sur 9 ans pour les quatre grandes régions, varie de 1,83 à 3,01 $\text{kgN ha}^{-1} \text{an}^{-1}$, avec un maximum observé en Afrique centrale (Tableau X). Cette valeur élevée est principalement attribuée aux fortes émissions de NO dans cette région (figure 34). Concernant l'azote réduit (NH_x), les flux annuels moyens s'étendent de 0,98 $\text{kgN ha}^{-1} \text{an}^{-1}$ en Afrique centrale à 1,93 $\text{kgN ha}^{-1} \text{an}^{-1}$ sur la côte guinéenne (Tableau X), ce qui reflète des émissions élevées de NH_3 , principalement issues d'activités anthropiques, notamment agricoles.

Ces résultats sont comparables à ceux d'autres études, telles que celle de Dentener *et al.* (2006), qui rapportent des plages de 1,13 à 2,36 $\text{kgN ha}^{-1} \text{an}^{-1}$ pour le NO_y et de 0,74 à 2,89 $\text{kgN ha}^{-1} \text{an}^{-1}$ pour le NH_x sur les régions nord, ouest, est et sud de l'Afrique. Cependant, une sous-estimation est toujours observée, plus marquée pour le NH_x . Le NH_3 gazeux, principal contributeur au dépôt de NH_x (Wen *et al.*, 2020), a tendance à se déposer à proximité des sources d'émission en raison de sa courte durée de vie atmosphérique, généralement de quelques heures (Hertel *et al.*, 2006). Cela suggère que les incertitudes dans les inventaires d'émission de NH_3 pourraient jouer un rôle significatif dans les sous-estimations observées. Cela souligne

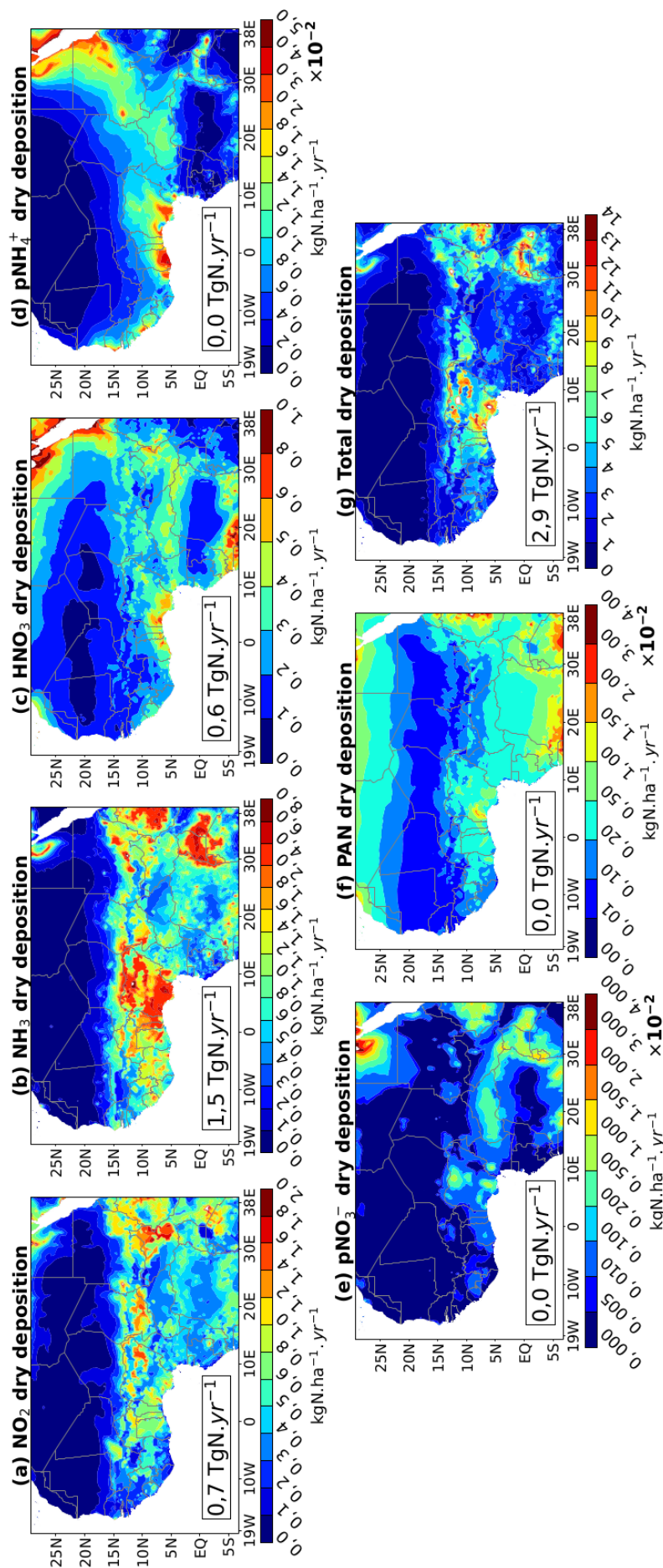


Figure 37 : Dépôt sec spatial par espèce. Dépôt exprimé en $\text{kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ et moyenné sur la période 2011-2019. La moyenne des valeurs pour le domaine de chaque espèce est indiquée en encadré (TgN an^{-1}).

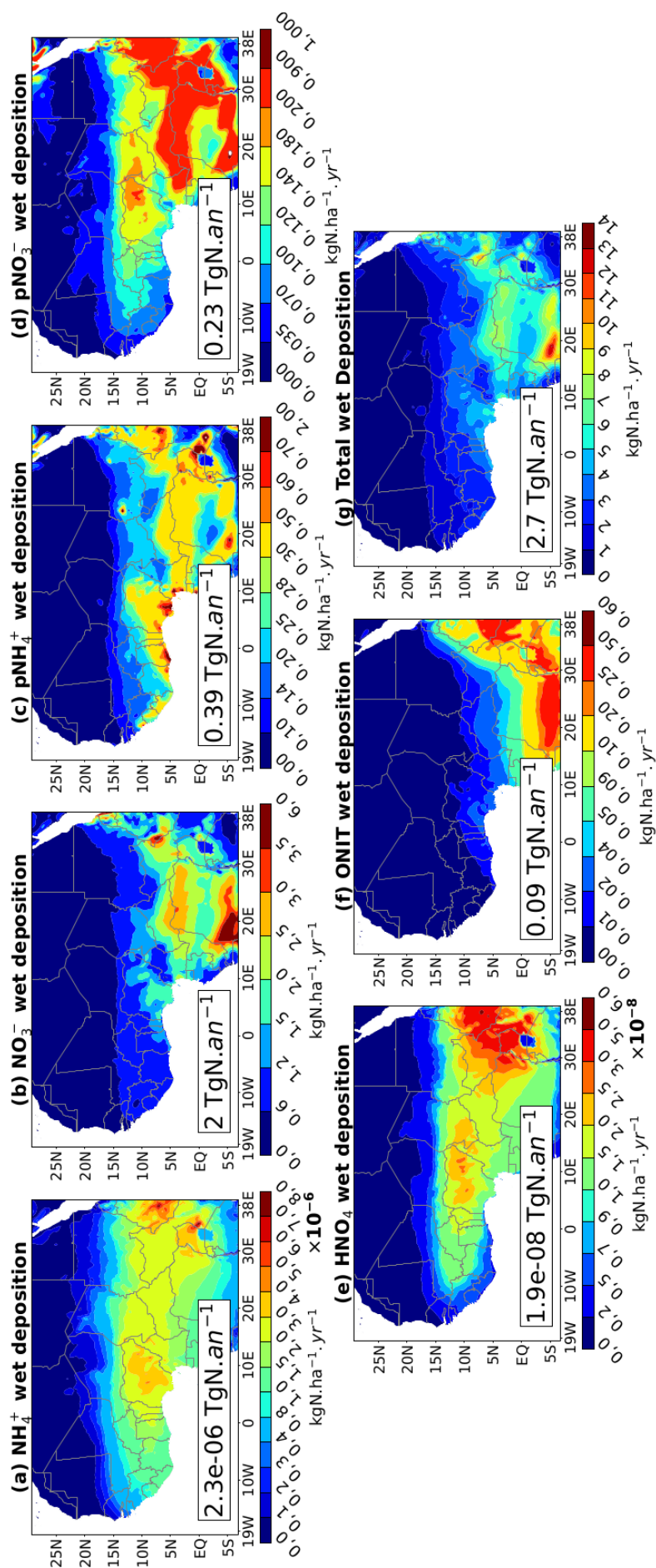


Figure 38 : Dépôt humide spatial par espèce.

Dépôt exprimé en $\text{kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ et moyenné sur la période 2011-2019. La moyenne des valeurs pour le domaine de chaque espèce est indiquée en encadré (TgN an^{-1}).

l'importance d'une amélioration des inventaires d'émissions de NH_3 pour réduire l'écart entre observations et modélisations.

Le tableau X présente également une synthèse des dépôts atmosphériques simulés d'azote réactif (Nr), catégorisés par formes (oxydée et réduite) et par espèces, moyennés sur la période 2011–2019 à l'aide du modèle RegCM5. Le dépôt total annuel moyen de Nr sur l'ensemble du domaine est estimé à $2,11 \text{ kgN ha}^{-1}\text{an}^{-1}$ sur 9 ans. Il ressort de cette analyse que la majorité de l'azote est éliminée par dépôt sec, représentant 51,6 % du total (soit $1,09 \text{ kgN ha}^{-1}\text{an}^{-1}$ sur les $2,11 \text{ kgN ha}^{-1}\text{an}^{-1}$), à l'exception de l'Afrique centrale où le dépôt humide de NO_3^- est particulièrement élevé et prédomine (figure 38b). En ce qui concerne les différences entre espèces, le dépôt d'azote oxydé est plus important que celui de l'azote réduit (figure 39d). Ce résultat s'explique par l'abondance des émissions de NO_x sur le domaine, mais également par la forte contribution du NO_3^- au dépôt humide. Il peut aussi refléter, en partie, la sous-estimation du NH_3 simulé, comme discuté dans la section précédente.

Tableau X : Estimation des dépôts atmosphériques sec, humide et total d'azote pour l'ensemble du domaine.

Régions	Espèces	Dry	Wet	Nr Total
Sahel	NH _x	1,22	0,19	1,41
	NO _y	0,81	1,02	1,83
	NH _x + NO _y	2,03	1,21	3,24
Côte de Guinée	NH _x	1,59	0,34	1,93
	NO _y	0,76	1,15	1,91
	NH _x + NO _y	2,35	1,49	3,84
Afrique de l'Est	NH _x	1,51	0,33	1,84
	NO _y	0,99	1,96	2,95
	NH _x + NO _y	2,50	2,29	4,79
Afrique Centrale	NH _x	0,69	0,29	0,98
	NO _y	0,74	2,27	3,01
	NH _x + NO _y	1,43	2,56	3,99
Domaine entier	NH _x	0,57	0,15	0,72
	NO _y	0,52	0,88	1,40
	NH _x + NO _y	1,09	1,03	2,12

Dépôts exprimés en kgN ha⁻¹ an⁻¹ et moyenné sur la période 2011-2019. Sahel (10°W-38°E; 10°N-16°N), Côte de Guinée (13°W-10°E; 5°N-10°N), Afrique de l'Est (29°E-40°E; 6°S-10°N) et Afrique Centrale (10°E-29°E; 6°S-10°N).

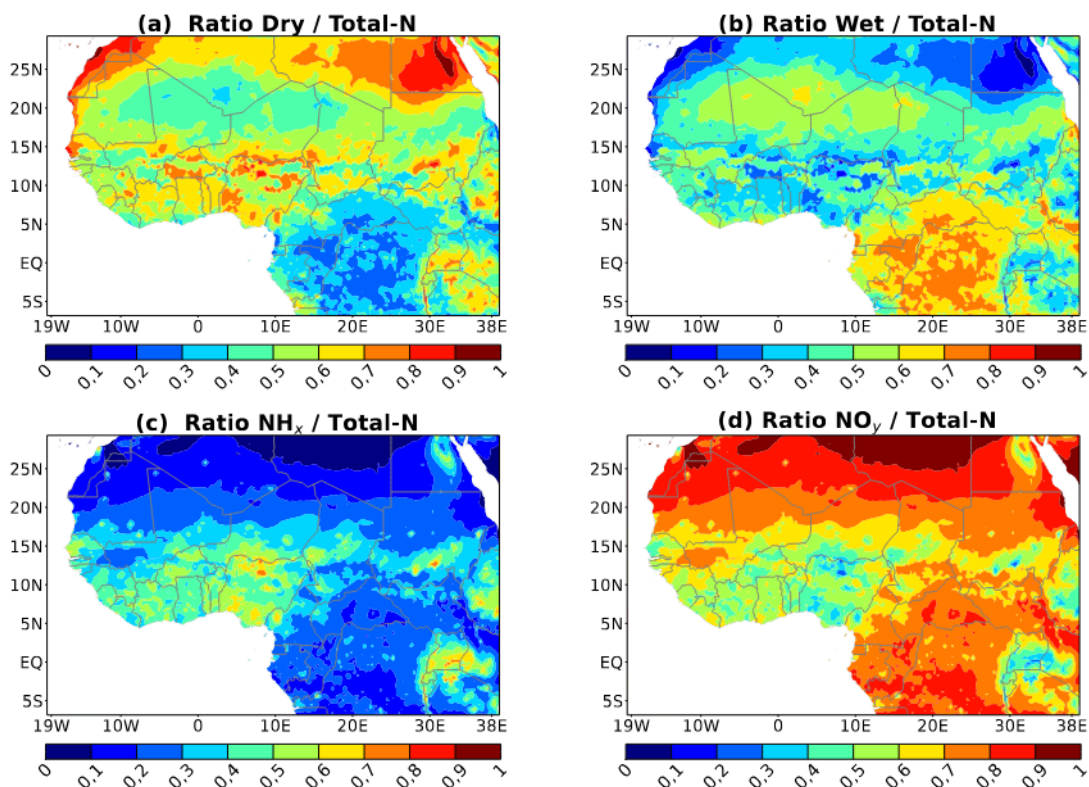


Figure 39 : Contribution annuelle des dépôts d'azote au dépôt total d'azote.

Contributions du dépôt sec (a), du dépôt humide (b), de la forme réduite (c) et de la forme oxydée (d).

Sur le plan saisonnier, le dépôt d'azote réactif (Nr) est maximal durant la saison JJA (juin-juillet-août), avec une valeur supérieure à la moyenne annuelle, estimée à $2,47 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ (tableau XI). Le minimum est observé pendant SON (septembre-octobre-novembre), avec une valeur de $1,62 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$. Ces deux saisons contribuent respectivement à 29,23 % et 19,17 % du dépôt total réparti sur les quatre saisons. Le dépôt sec de NH_x est plus élevé durant les saisons MAM (mars-avril-mai) et JJA que durant SON et DJF (décembre-janvier-février), avec un maximum atteint en MAM. Cette période coïncide avec une intensification des activités agricoles, notamment l'utilisation massive d'engrais à base de NH₃ sur les terres cultivées (Hickman *et al.*, 2021). De plus, Pan *et al.* (2018) ont montré que les températures élevées telles qu'observées durant MAM en Afrique accentuent la volatilisation des engrais chimiques, des déjections animales, des déchets urbains ainsi que les émissions de NH₃ issues du transport routier. Concernant NO_y, les flux de dépôt sec les plus élevés sont enregistrés pendant les saisons JJA et DJF. Cela s'explique probablement par l'augmentation des émissions de NO_x d'origine biogénique dans la région sahélienne durant JJA, et par les feux de biomasse en Afrique centrale durant DJF. Enfin, les dépôts humides maximaux de NO_y et NH_x pendant les saisons JJA et DJF sont en partie dus aux précipitations plus abondantes caractéristiques de ces périodes dans les régions du Sahel et d'Afrique centrale, respectivement.

Tableau XI : Dépôt simulé d'azote moyen saisonnier et annuel pour différentes formes et espèces.

Saisons	Dry_NO _y	Dry_NH _x	Wet_NO _y	Wet_NH _x	Nr Total
MAM	0,43	0,69	0,66	0,13	1,91
JJA	0,63	0,58	1,09	0,17	2,47
SON	0,42	0,47	0,61	0,12	1,62
DJF	0,62	0,52	1,14	0,17	2,45
Moyenne annuelle	0,52	0,56	0,87	0,14	2,11

Dépôt exprimé en kgN ha⁻¹ an⁻¹ et moyenné sur la période 2011-2019.

4-3-2- A l'échelle locale

Cette étude nous a également permis d'étudier les variations mensuelles, saisonnières, annuelles et interannuelles des flux de dépôts sec et humide, nous permettant par la suite de quantifier les flux de dépôts des espèces azotées sus-mentionnées, sur le transect d'écosystème savanes sèches-savanes humides-forêts. Rappelons que les cycles saisonniers varient selon les écosystèmes : dans les savanes sèches, la saison humide s'étend de mai ou juin jusqu'à septembre, avec mai servant de mois de transition ; dans les savanes humides, elle couvre la période d'avril à octobre ; tandis que dans les forêts, elle s'étale de mars à novembre. Le reste de l'année correspond à la saison sèche.

4-3-2-1- Dépôt sec

Les Figures 40 et 41 illustrent respectivement les évolutions mensuelle et annuelle moyennes des flux de dépôt sec pour l'ensemble des espèces azotées déposées par voie sèche. Le Tableau XII résume les valeurs des flux annuels moyens. Les trois courbes de couleur sur la Figure 40 représentent les concentrations atmosphériques de surface de NO₂, NH₃ et HNO₃, ces espèces étant les principales responsables du dépôt sec d'azote, tandis que les autres présentent des flux de dépôt négligeables. Une similitude dans l'évolution saisonnière est observée entre les concentrations de ces gaz et les flux de dépôt sec, suggérant un lien étroit entre ces deux variables. Ce lien s'explique par le fait que le dépôt sec dépend directement des concentrations atmosphériques proches de la surface, qui contrôlent le gradient de concentration entre l'atmosphère et la surface, ainsi que les flux de dépôt associés. Ainsi, des concentrations élevées de NO₂, NH₃ et HNO₃ dans la couche limite favorisent une intensification des flux de dépôt sec.

Les sites de savanes sèches (Banizoumbou et Katibougou)

Les flux moyens mensuels de dépôt sec de NO₂ sur la période 2011-2019 varient de 0,1 à 1,09 kgN ha⁻¹ an⁻¹. Les valeurs maximales sont enregistrées en août, en pleine saison humide, en cohérence avec les concentrations atmosphériques maximales de NO₂ (Figure 40). Le dépôt sec de NO₂ est plus prononcé durant la saison humide, avec des valeurs moyennes de 0,64 kgN ha⁻¹ an⁻¹ à Banizoumbou et 0,69 kgN ha⁻¹ an⁻¹ à Katibougou, contre 0,31 kgN ha⁻¹ an⁻¹ et 0,18 kgN ha⁻¹ an⁻¹ respectivement en saison sèche. L'amplitude saisonnière est plus marquée à Katibougou, où le flux moyen de dépôt sec est environ quatre fois plus élevé en saison humide qu'en saison sèche, contre un facteur de deux à Banizoumbou. Cette différence saisonnière s'explique par les concentrations maximales de NO₂ pendant la saison des pluies, mais également par des vitesses de dépôt sec plus élevées à cette période. Comme discuté dans le chapitre 3, les BioNO sont particulièrement importantes en saison humide dans les savanes sèches, en raison de l'effet « pulse » (augmentation soudaine et intense des émissions de NO après un épisode de pluie sur un sol sec) (Johansson *et al.*, 1988 ; Yienger & Levy, 1995).

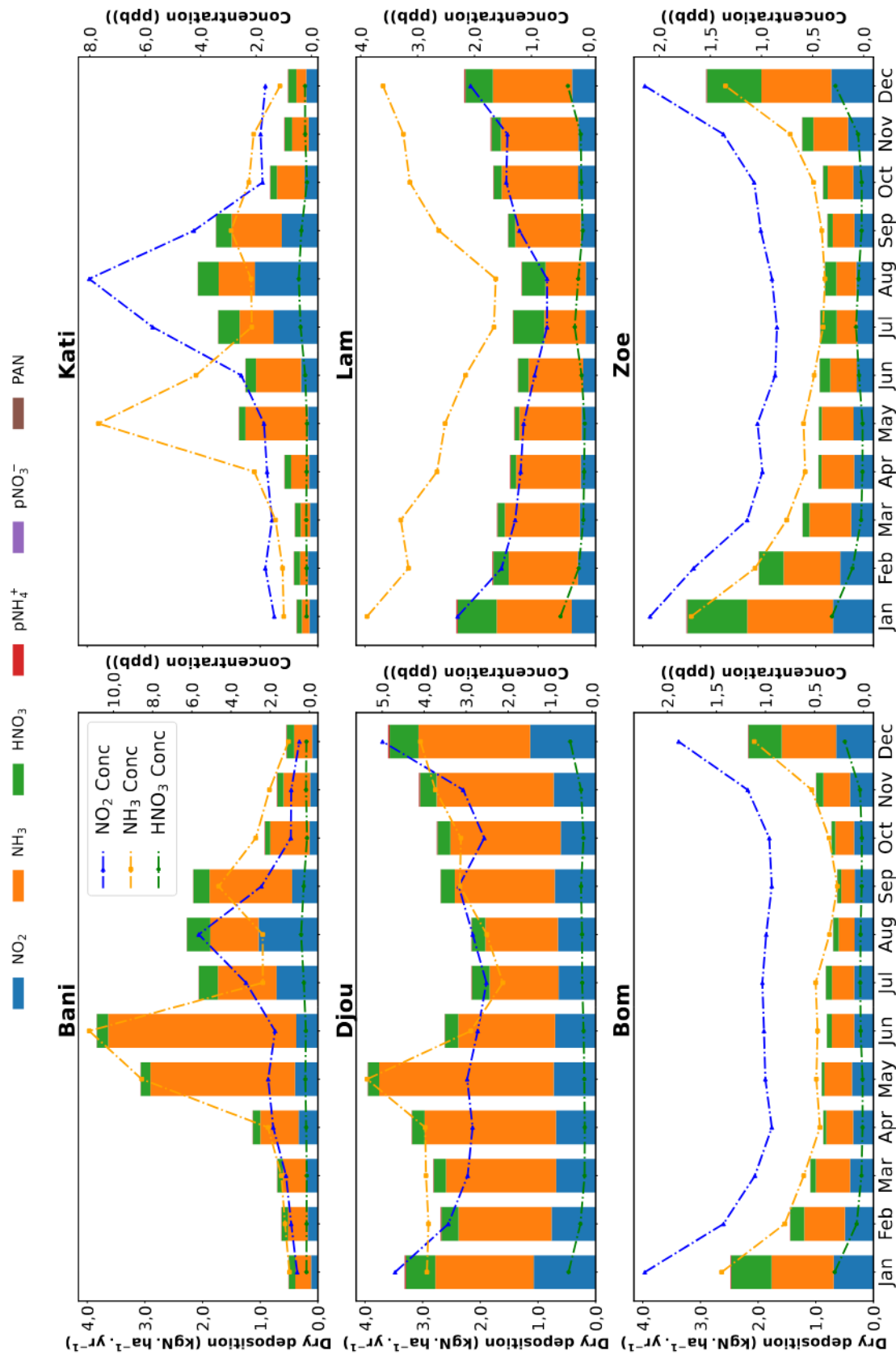


Figure 40 : Dépôt sec mensuel des espèces, moyenné sur la période 2011–2019, et concentrations de NO₂, NH₃ et HNO₃ pour chaque station. Bani : Banizoumbou, Kati : Katibougou, Djou : Djougou, Lam : Lamto, Bom : Bomassa, Zoe : Zoétéle.

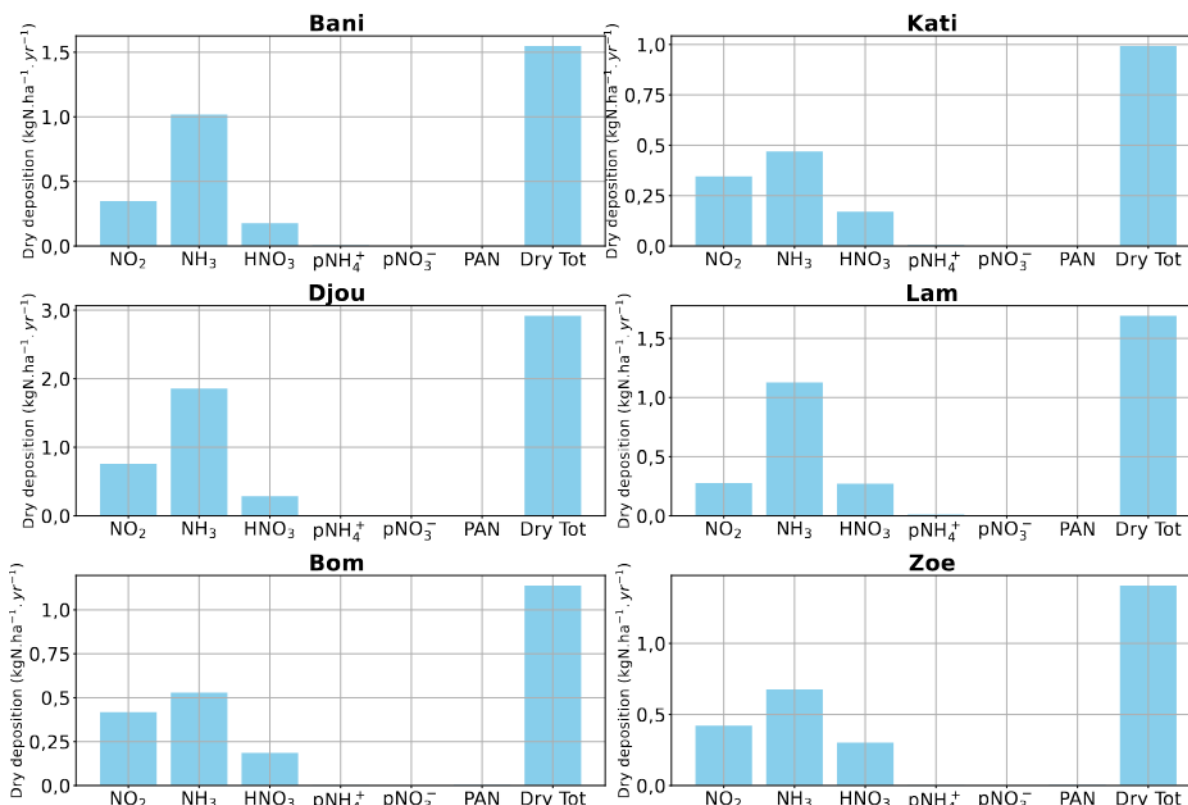


Figure 41 : Dépôt sec des espèces et dépôt sec total annuel, moyennés sur la période 2011–2019, pour chaque station.

Bani : Banizoumbou, Kati : Katibougou, Djou : Djougou, Lam : Lamto, Bom : Bomassa, Zoe : Zoétélé.

Tableau XII : Estimation des dépôts atmosphériques secs d’azote pour l’ensemble des sites INDAAF.

Espèces	Bani	Kati	Djou	Lam	Bom	Zoe
NO ₂	0,35	0,35	0,76	0,28	0,42	0,42
NH ₃	1,02	0,47	1,86	1,13	0,53	0,68
HNO ₃	0,18	0,17	0,29	0,27	0,19	0,30
NH ₄ ⁺	0,01	0,01	0,01	0,01	0,01	0,00
NO ₃ ⁻	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
PAN	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00	0,00
Total sec	1,56	1,00	2,92	1,69	1,14	1,41

Dépôts exprimés en kgN ha⁻¹ an⁻¹ et moyennés sur la période 2011-2019.

Selon la figure représentant les émissions de BioNO (Figure 20), ces émissions sont nettement plus élevées à Katibougou durant la saison humide (voir chapitre 3), ce qui explique pourquoi le flux de dépôt sec de NO₂ y atteint 0,69 kgN ha⁻¹ an⁻¹ en moyenne, sur le transect. Sur l’ensemble de la période 2011-2019, les flux annuels moyens de dépôt sec de NO₂ sont estimés

à environ $0,35 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ pour les sites de savane sèche (Tableau XII). En utilisant une méthode inférentielle basée sur les concentrations mesurées par le réseau INDAAF, Adon *et al.* (2013) ont estimé, pour les mêmes sites et sur la période 1998–2007, des dépôts secs annuels de NO_2 compris entre $0,6$ et $0,7 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$. Nos valeurs simulées se situent également dans la fourchette basse des dépôts rapportés pour un site de pâturage tropical à Rondonia (Brésil), où les dépôts annuels de NO_2 varient entre $0,76$ et $2,4 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$. Ces valeurs plus élevées en Amazonie sont principalement attribuées à des teneurs en NO_2 nettement plus importantes (Trebs *et al.*, 2006). Elles sont également cohérentes avec les estimations de Delon *et al.* (2010), qui rapportaient des dépôts de l'ordre de $0,8$ à $0,9 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ pour ces mêmes sites.

Les flux mensuels de dépôt sec de NH_3 en savanes sèches varient entre $0,13$ et $3,3 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$. En moyenne, les flux saisonniers sont plus élevés en saison humide ($0,59 - 3,3 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$) qu'en saison sèche ($0,13 - 2,5 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$). Cette différence s'explique en grande partie par l'augmentation simultanée des concentrations atmosphériques de NH_3 et des vitesses de dépôt sec en saison humide. Ainsi, la forte intensité du dépôt sec d'ammoniac durant cette période pourrait être influencée par ces deux facteurs. Les flux de dépôt sec sont particulièrement marqués à Banizoumbou, où les concentrations de NH_3 sont plus élevées. Les savanes sèches, étant majoritairement des zones agro-pastorales, elles possèdent plusieurs sources naturelles et anthropiques de NH_3 , notamment la décomposition bactérienne des excréments d'animaux, un processus intensifié en saison humide par l'hydrolyse de l'urée, ainsi que les émissions provenant des sols naturels et fertilisés (Schlesinger & Hartley, 1992; Bouwman *et al.*, 1997, 2002; Adon *et al.*, 2010; Adon, 2011). En moyenne annuelle, les flux de dépôt sec de NH_3 sont estimés à $1,02 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Banizoumbou et $0,47 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Katibougou. Ces valeurs sont néanmoins plus faibles que celles estimées par Adon *et al.* (2013) sur ces mêmes sites du réseau INDAAF ($2,7 \pm 0,9 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Banizoumbou et $3,9 \pm 0,6 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Katibougou). De manière générale, la majorité du NH_3 émis retourne à la surface par dépôt, que ce soit sous forme humide ou via le dépôt sec particulaire (Bouwman *et al.*, 2002). Ainsi, les flux de dépôt sec estimés en savanes sèches par le modèle sont effectivement sous-estimés, tout comme les concentrations de NH_3 estimées. Cette sous-estimation est cohérente avec les biais négatifs observés sur les concentrations de NH_3 , et peut être attribuée principalement à une sous-estimation des émissions dans les inventaires utilisés, comme discuté précédemment.

Quant à l'acide nitrique (HNO_3), les flux mensuels de dépôt sec varient entre $0,08$ et $0,4 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$. Le dépôt sec de HNO_3 est particulièrement faible en saison sèche (entre $0,08$

et $0,16 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$), tandis qu'il devient nettement plus important en saison humide (entre $0,18$ et $0,4 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$) sur l'ensemble des deux stations. Les flux moyens saisonniers de dépôt sec sont de $0,25$ et $0,11 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$, respectivement à Banizoumbou et Katibougou en saison sèche, et de $0,3$ et de $0,29 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ en saison humide, illustrant une forte influence des conditions météorologiques et de la disponibilité des précurseurs sur le dépôt de cet oxydant azoté. Les flux moyens annuels de dépôt sec de HNO_3 sont estimés à $0,18 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Banizoumbou et $0,17 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Katibougou. Ces valeurs sont comparables à celles rapportées par Delon *et al.* (2010) ($0,3$ à Banizoumbou et $0,5$ à Katibougou), mais restent inférieures à celles obtenues par Adon (2011), qui ont estimé respectivement $0,7$ et $0,8 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ pour ces mêmes sites. Cet écart peut s'expliquer par des différences dans les concentrations simulées de HNO_3 , elles-mêmes dépendantes des émissions de NO_x , des processus chimiques de formation et des conditions météorologiques. En particulier, une sous-estimation des précurseurs (NO_x) ou des processus d'oxydation atmosphérique peut conduire à des concentrations plus faibles de HNO_3 et, par conséquent, à des flux de dépôt réduits. Des différences méthodologiques entre études (mesures vs modélisation) peuvent également contribuer à ces écarts.

Les sites de savanes humides (Djougou et Lamto)

Dans les savanes humides, les flux mensuels moyens de dépôt sec de NO_2 varient entre $0,17$ et $1,13 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$. Les valeurs maximales sont observées en saison sèche, avec des pics en janvier à Lamto et en décembre à Djougou, en accord avec les concentrations maximales de NO_2 (Figure 40). Cette tendance s'explique par l'importance des émissions de NO_x issues de la combustion de biomasse en saison sèche, un phénomène particulièrement actif en janvier à Lamto et en décembre à Djougou (Adon *et al.*, 2013). Les flux saisonniers moyens de dépôt sec de NO_2 varient entre $0,34$ et $0,88 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ respectivement à Lamto et Djougou en saison sèche, contre $0,23$ et $0,68 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ en saison humide. Le dépôt sec est environ 1,5 fois plus élevé à Lamto et 1,3 fois plus élevé à Djougou en saison sèche qu'en saison humide, confirmant l'impact des feux de biomasse. En moyenne annuelle, les flux de dépôt sec de NO_2 sont estimés à $0,76 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Djougou et à $0,28 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Lamto. Ces résultats sont comparables aux estimations d' Adon *et al.* (2013), qui rapportaient des valeurs de l'ordre de $0,4 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ pour les deux stations (Tableau XII).

Les flux saisonniers moyens de dépôt sec de NH_3 sont de $1,3 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ en saison sèche et $1 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ en saison humide à Lamto, tandis qu'à Djougou, ils atteignent $1,84 \text{ kgN}$

$\text{ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ en saison sèche et $1,86 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ en saison humide. Contrairement au NO_2 , les flux de dépôt sec de NH_3 restent du même ordre de grandeur en saison sèche et humide. Pourtant, les concentrations atmosphériques de NH_3 sont environ 1,4 fois plus élevées en saison sèche (par exemple 3,4 en saison sèche contre 2,4 ppb en saison humide à Lamto), en lien avec les émissions liées aux feux de savane, une source importante d'ammoniac durant cette période (Delmas *et al.*, 1995). Ainsi, les vitesses de dépôt, plutôt que les concentrations, pourraient jouer un rôle déterminant dans le fait que les flux de dépôt sec restent comparables entre les deux saisons. En moyenne annuelle, les flux de dépôt sec de NH_3 sont estimés à $1,13 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Lamto et $1,86 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Djougou. Ces valeurs se situent dans la fourchette basse des estimations de Adon *et al.* (2013), qui rapportaient des valeurs comprises entre 2,2 et $3,5 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ pour ces mêmes stations.

Les flux saisonniers moyens de dépôt sec de HNO_3 sont estimés à 0,34 et $0,22 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Lamto, et à 0,36 et $0,23 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Djougou, respectivement en saison sèche et en saison humide. Le rapport des flux entre les deux saisons est relativement faible (environ 1,5 à Lamto et à Djougou), avec des valeurs plus élevées en saison sèche. Cette tendance peut s'expliquer par des concentrations plus importantes de HNO_3 pendant la saison sèche (Figure 40). Ces observations soulignent l'influence des processus atmosphériques locaux sur la variabilité spatiale et saisonnière du dépôt sec dans les savanes humides. Ces processus incluent notamment les variations saisonnières des concentrations de HNO_3 , liées aux émissions de NO_x (feux de biomasse en saison sèche), ainsi que les conditions météorologiques telles que la stabilité de la couche limite et la turbulence, qui modulent la vitesse de dépôt. Adon *et al.* (2013) ont rapporté une valeur moyenne annuelle de dépôt sec de HNO_3 de $0,7 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ pour les deux stations. Nos résultats vont dans le même sens, bien qu'ils soient légèrement inférieurs, avec des moyennes annuelles de $0,29 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Djougou et de $0,27 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Lamto.

Les sites de forêts (Bomassa et Zoétéélé)

Dans les forêts équatoriales, les flux mensuels moyens de dépôt sec de NO_2 varient entre 0,28 et $0,73 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$. Les valeurs maximales sont enregistrées en décembre et janvier, correspondant à la saison sèche en zone forestière. Les flux saisonniers moyens sont relativement similaires entre les deux saisons, avec des valeurs comprises entre 0,38 et $0,73 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ en saison sèche, et entre 0,28 et $0,44 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ en saison humide. De manière générale, les émissions biogéniques et celles issues de la combustion de biomasse sont toutes deux

significatives en zone forestière et contribuent de façon proportionnelle aux flux de NO_2 (Adon *et al.*, 2013). Toutefois, les feux de biomasse sont plus actifs en saison sèche, entraînant des concentrations plus élevées de NO_2 . Comme dans les savanes humides, la différence de dépôt sec entre les saisons pourrait être atténuée par des vitesses de dépôt plus élevées en saison humide. En moyenne annuelle, les flux de dépôt sec de NO_2 sont estimés à $0,42 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Zoétéélé et à $0,42 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Bomassa. Ces valeurs se situent dans la plage de mesures rapportées par Hanson *et al.* (1989), qui indiquent que le dépôt de NO_2 dans les forêts naturelles varie entre $0,08$ et $1,9 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$, pouvant atteindre jusqu'à $12 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ dans les forêts urbaines (Zhang *et al.*, 2005). Elles sont également comparables à celles rapportées par (Zhang *et al.*, 2005) pour sept sites ruraux au Canada, où les flux de dépôt sec de NO_2 varient de $0,1$ à $1,5 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ sur une année. Enfin, Adon *et al.* (2013) ont estimé des flux annuels moyens de $0,5 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Zoétéélé et $0,8 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Bomassa.

Les flux saisonniers moyens de dépôt sec de NH_3 sont plus élevés en saison sèche qu'en saison humide. À Zoétéélé, ils atteignent $1,22 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ en saison sèche contre $0,49 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ en saison humide, tandis qu'à Bomassa, ils sont respectivement de $0,91$ et $0,4 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$. En moyenne annuelle, les flux de dépôt sec de NH_3 sont estimés à $0,68 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Zoétéélé et à $0,53 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Bomassa. Ces valeurs sont très faibles comparées à celles rapportées dans la littérature. Par exemple, Adon *et al.* (2013) ont estimé des flux de dépôt sec de NH_3 de $9,7 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Zoétéélé et de $10 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Bomassa. Ce contraste met en évidence une forte sous-estimation des concentrations de NH_3 dans notre simulation, sous-estimation particulièrement marquée en zone forestière, comme discuté en section précédente. Cette sous-estimation est probablement liée à une sous-représentation des émissions de NH_3 dans les régions forestières, où les sources biogéniques, les sols humides et la décomposition de la matière organique peuvent jouer un rôle important.

Les flux saisonniers moyens de dépôt sec de HNO_3 sont estimés à $0,79 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ en saison sèche et à $0,14 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ en saison humide à Zoétéélé, et respectivement à $0,5$ et $0,07 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Bomassa. L'écart entre les deux saisons reste significatif en zone forestière, avec un facteur de 6 à Zoétéélé et de 7 à Bomassa. Cette différence peut s'expliquer par les variations de concentrations simulées de HNO_3 selon les saisons, plus élevées en saison sèche. Les mesures de flux de dépôt sec de HNO_3 dans les écosystèmes tropicaux restent encore rares. Huebert & Robert (1985) ont estimé des flux de dépôt d'acide nitrique dans une prairie aux États-Unis (Champaign, Illinois) en juin 1982, avec des valeurs mensuelles comprises entre 1,1

et $1,4 \text{ kg ha}^{-1} \text{ mois}^{-1}$, soit environ $2,93 \text{ à } 3,75 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$. Nos estimations sont inférieures à ces valeurs. Les moyennes annuelles simulées de dépôt sec de HNO_3 sont de $0,19 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Zoétéélé et $0,30 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ à Bomassa. Ces valeurs restent également inférieures à celles rapportées par Adon *et al.* (2013), qui ont estimé environ $1 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ pour les deux sites. Cette sous-estimation pourrait probablement s'expliquer par des concentrations simulées plus faibles que celles mesurées par le réseau INDAAF et aux vitesses de dépôt modélisées.

La figure 42 montre la répartition relative (en pourcentage) des différentes espèces azotées contribuant au dépôt sec total d'azote sur les six stations du réseau INDAAF. Dans l'ensemble, le dépôt sec est largement dominé par le NH_3 gazeux, dont la contribution varie entre 46,4 % (à Bomassa) et 66,7 % (à Lamto). Cette forte contribution est cohérente avec les concentrations élevées de NH_3 et sa vitesse de dépôt importante. Les espèces oxydées telles que le NO_2 et le HNO_3 jouent également un rôle significatif. NO_2 représente entre 16,4 % (à Lamto) et 36,7 % (à Bomassa), tandis que HNO_3 contribue de 9,9 % à 21,5 % selon les sites, avec des valeurs plus marquées en forêt. Les autres composés, comme pNH_4^+ , pNO_3^- ou PAN, affichent des contributions très marginales, n'excédant pas 0,3 % du total. Ce profil de répartition souligne l'importance du NH_3 dans le processus de dépôt sec en Afrique, notamment dans les régions de savane, tandis que le rôle du NO_2 s'intensifie dans les zones plus forestières. Ces résultats soulignent la prédominance des formes gazeuses réduites dans le dépôt sec.

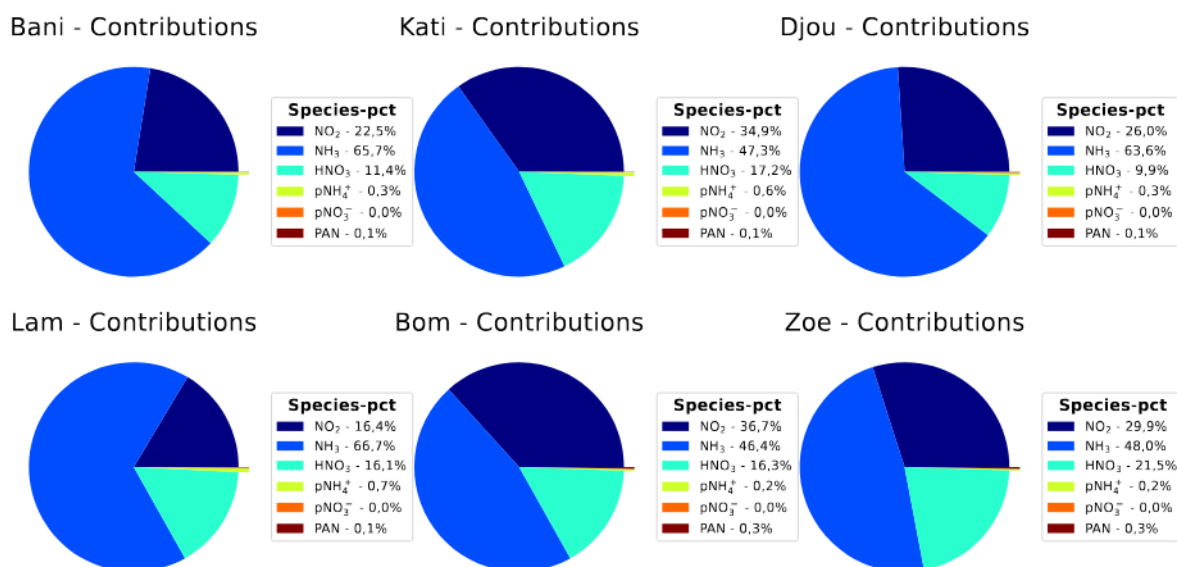


Figure 42 : Contribution des espèces au dépôt sec total, pour chaque station.

Bani : Banizoumbou, Kati : Katibougou, Djou : Djougou, Lam : Lamto, Bom : Bomassa, Zoe : Zoétéélé.

4-3-2-2- Dépôt humide

La figure 43 présente l'évolution mensuelle moyenne du flux de dépôt humide total d'azote réactif (Nr) sous forme d'ions NO_3^- , pNO_3^- et pNH_4^+ pour les sites INDAAF situés le long du transect savane sèche – savane humide – forêt. Les flux moyens annuels simulés de dépôt humide total sont présentés dans le tableau XIII. La contribution de NH_4^+ a été jugée négligeable pour les raisons exposées plus haut (au niveau régional) et n'a donc pas été prise en compte dans le calcul du dépôt humide total, tout comme HNO_4 .

Les principaux contributeurs au dépôt humide total sont NO_3^- , pNH_4^+ et pNO_3^- . Le contenu en ammonium dans les précipitations résulte de la capture de l'ammoniac gazeux et des particules contenant de l'ammonium (NH_4^+) par l'eau nuageuse et précipitante. Seinfeld (1986) a indiqué que, généralement, dans l'atmosphère, l'ammoniac particulaire se présente sous forme de sulfate d'ammonium ($(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$), mais il peut également se retrouver sous forme de nitrate d'ammonium (NH_4NO_3) (Parmar *et al.*, 2000). Les principales sources d'ammoniac gazeux sont la décomposition de l'urée contenue dans les excréments d'animaux, les sols fertilisés ou naturels (Schlesinger & Hartley, 1992), les feux de savane et les combustions domestiques (Delmas *et al.*, 1991).

Quant aux concentrations de nitrate dans les précipitations, elles résultent des processus hétérogènes et homogènes d'inclusion dans l'eau nuageuse de composés azotés gazeux (HNO_3) et particulaires (pNO_3^-).

Dans les savanes sèches, le dépôt humide est plus élevé en juillet/août, atteignant son maximum en août, pendant la saison des pluies, période où les précipitations sont les plus abondantes. Dans la savane humide de Djougou, le dépôt humide est également plus élevé durant la saison des pluies que durant la saison sèche. En revanche, dans la savane humide de Lamto ainsi que dans les zones forestières, le dépôt humide d'azote est relativement élevé au début de la saison sèche (de novembre à mars). Cette observation s'explique par des concentrations très élevées en ions nitrate et ammonium, en lien avec l'intensité des feux de savane à cette période. Ce résultat est cohérent avec celui de Ossohou *et al.* (2021), qui ont observé des flux humides de NO_3^- et NH_4^+ maximaux en février, mars, avril et mai pour le site de Lamto. Adon (2011) a également obtenu des flux de dépôt humide d'azote plus importants pour la période de janvier à mars. De manière générale, l'évolution mensuelle des flux de dépôt humide d'azote est fortement contrôlée par les précipitations dans les écosystèmes de savane, tandis que dans les forêts, elle est davantage influencée par les concentrations atmosphériques.

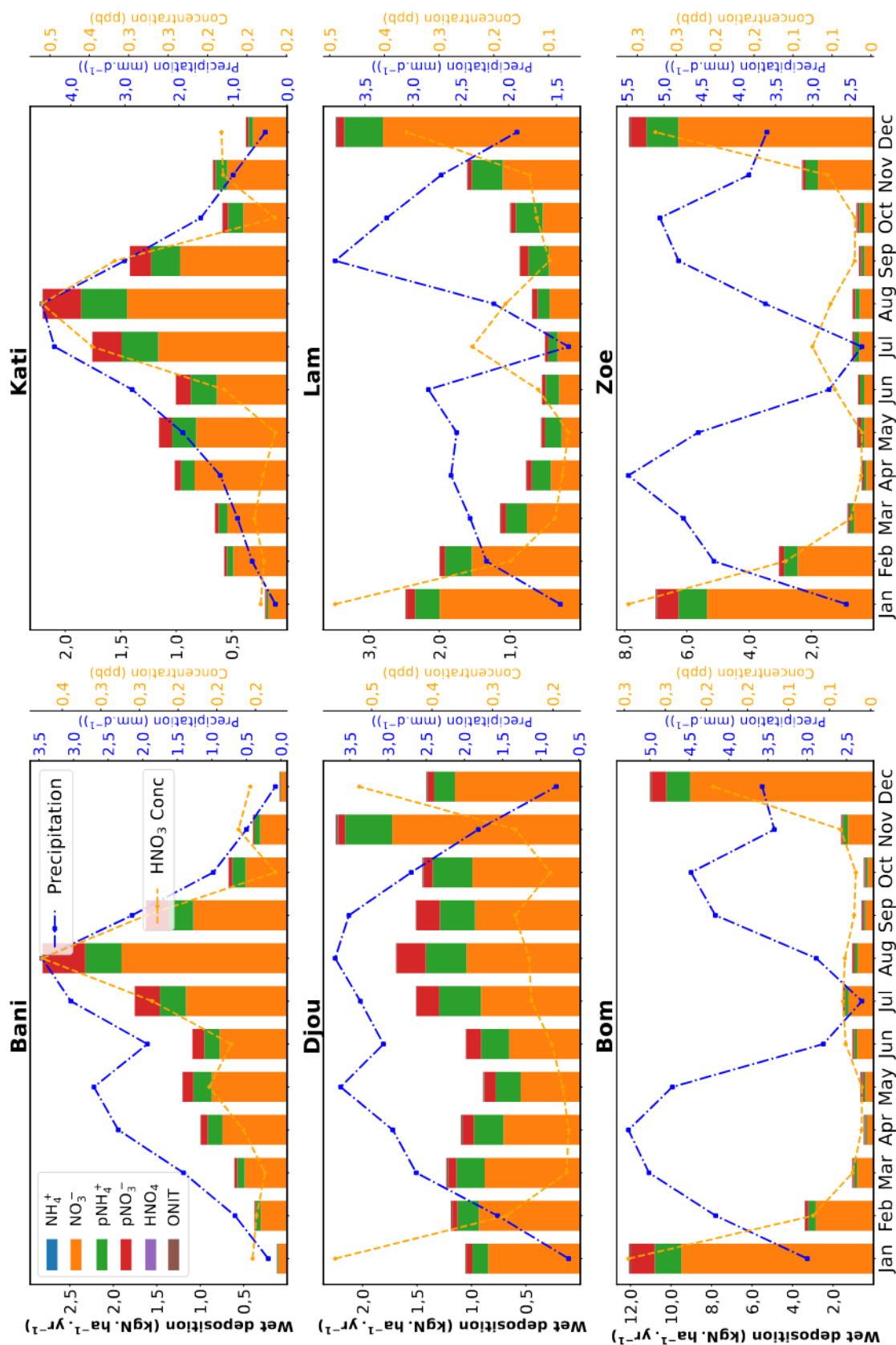


Figure 43 : Dépôt humide mensuel des espèces, précipitation et concentration de HNO₃ simulées pour chaque station.

Bani : Banizoumbou, Kati : Katibougou, Djou : Djougou, Lam : Lamto, Bom : Bomassa, Zoe : Zoétéle.

Tableau XIII : Estimation des dépôts atmosphériques humides d'azote pour l'ensemble des sites INDAAF.

Espèces	Bani	Kati	Djou	Lam	Bom	Zoe
NH ₃	1,35×10 ⁻⁶	9,37×10 ⁻⁷	2,13×10 ⁻⁶	1,36×10 ⁻⁶	1,48×10 ⁻⁶	1,43×10 ⁻⁶
HNO ₃	0,69	0,69	0,95	0,91	2,31	1,57
NH ₄ ⁺	0,16	0,17	0,28	0,31	0,33	0,31
NO ₃ ⁻	0,12	0,11	0,12	0,07	0,23	0,16
HNO ₄	1,29×10 ⁻⁸	1,09×10 ⁻⁸	1,50×10 ⁻⁸	6,42×10 ⁻⁹	1,36×10 ⁻⁸	1,31×10 ⁻⁸
ONIT	0,00	0,00	0,01	0,01	0,06	0,03
Total Hu- mide	0,98	0,97	1,36	1,30	2,92	2,07

Dépôts exprimés en kgN ha⁻¹ an⁻¹ et moyennés sur la période 2011-2019. Bani : Banizoumbou, Kati : Katibougou, Djou : Djougou, Lam : Lamto, Bom : Bomassa, Zoe : Zoétéélé.

Le dépôt humide total d'azote correspond à la somme des formes oxydées (NO₃⁻ et pNO₃⁻) et réduites (pNH₄⁺), les apports de NH₄⁺, ONIT et HNO₄ étant négligeables. Le long du transect, le dépôt annuel simulé d'azote humide total s'élève à environ 0,98 kgN ha⁻¹ an⁻¹ dans les savanes sèches, entre 1,3 et 1,35 kgN ha⁻¹ an⁻¹ dans les savanes humides, et entre 2,07 et 2,92 kgN ha⁻¹ an⁻¹ dans les forêts (Figure 44, Tableau XIII). Ainsi, malgré un gradient décroissant des concentrations d'azote de la savane sèche vers la forêt, un gradient positif des flux de déposition humide d'azote est observé, soulignant l'influence majeure des précipitations sur les flux, au-delà des seules concentrations atmosphériques. Ces valeurs sont inférieures aux flux annuels d'azote inorganique dissous rapportés par Laouali *et al.* (2012) et Galy-Lacaux & Delon (2014), qui variaient entre 1,8 et 3,3 kgN ha⁻¹ an⁻¹ dans les savanes sèches, autour de 4,4 kgN ha⁻¹ an⁻¹ dans les savanes humides, et atteignaient 5,0 kgN ha⁻¹ an⁻¹ en zone forestière. La valeur annuelle moyenne estimée à Lamto (1,3 kgN ha⁻¹ an⁻¹), est comparable à l'estimation de 2,0 kgN ha⁻¹ an⁻¹ rapportée par Ossouhou *et al.* (2021) pour la même station (moyenne sur 22 ans).

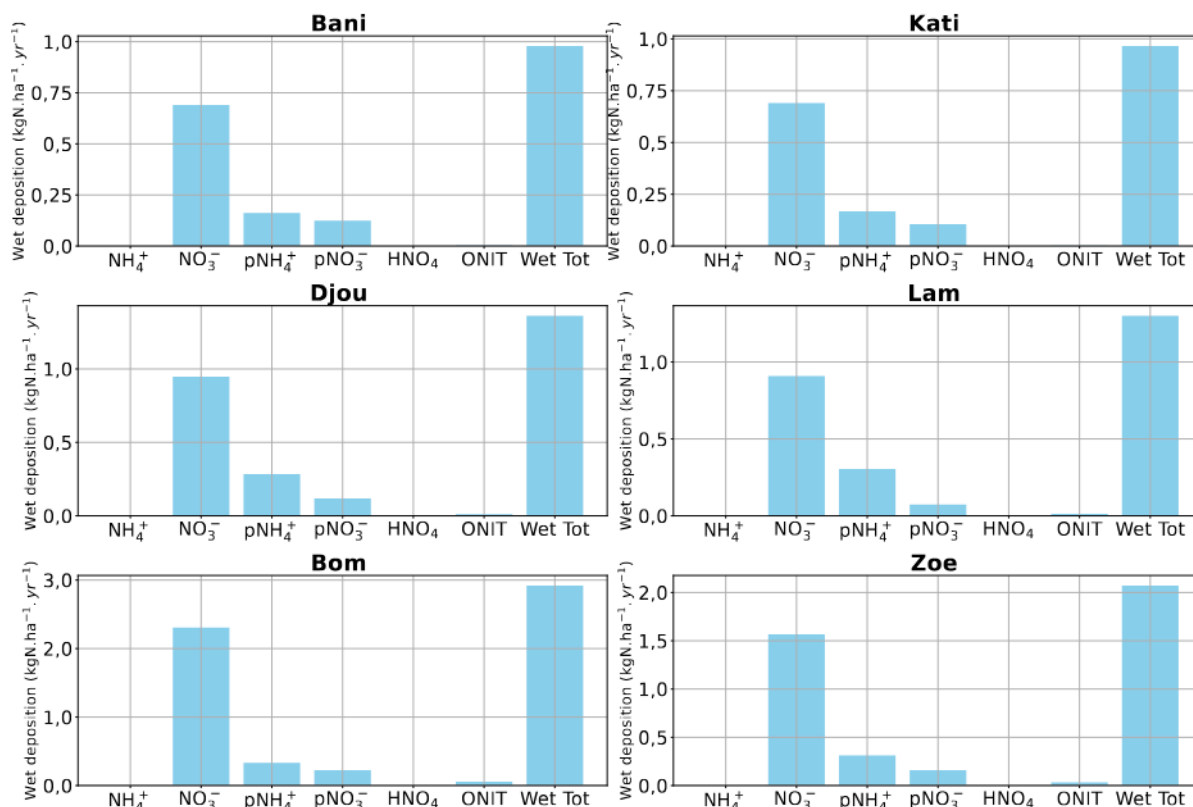


Figure 44 : Dépôt humide des espèces et dépôt humide total annuel pour chaque station. Dépôts exprimés en kgN ha⁻¹ an⁻¹ et moyennés sur la période 2011-2019. Bani : Banizoumbou, Kati : Katibougou, Djou : Djougou, Lam : Lamto, Bom : Bomassa, Zoe : Zoétéélé.

La figure 45 présente la contribution relative (en pourcentage) de chaque espèce chimique au dépôt humide total d'azote pour les stations INDAAF, représentatives des principaux écosystèmes africains : savane sèche (Banizoumbou, Katibougou), savane humide (Djougou, Lamto) et forêt (Bomassa, Zoétéélé).

La contribution de la forme oxydée de l'azote (pNO₃⁻ + NO₃⁻) constitue une part majoritaire du dépôt humide total, variant de 75,6 % à 86,7 % selon les stations, avec une prédominance des espèces gazeuses (par rapport à l'azote particulaire). Ce résultat contraste avec les observations rapportées dans des études antérieures (Ossouhou *et al.*, 2021; Adon, 2011), où la forme réduite (NH₄⁺ + pNH₄⁺) dominait le dépôt humide. Cette divergence pourrait s'expliquer par une sous-estimation des émissions d'ammoniac (NH₃) dans notre configuration, comme discuté précédemment, entraînant de faibles flux simulés de dépôt humide de NH₄⁺. Par ailleurs, la contribution des composés azotés organiques (ONIT) reste très marginale (entre 0,2 % et 1,9 %), bien que légèrement plus marquée dans les sites forestiers.

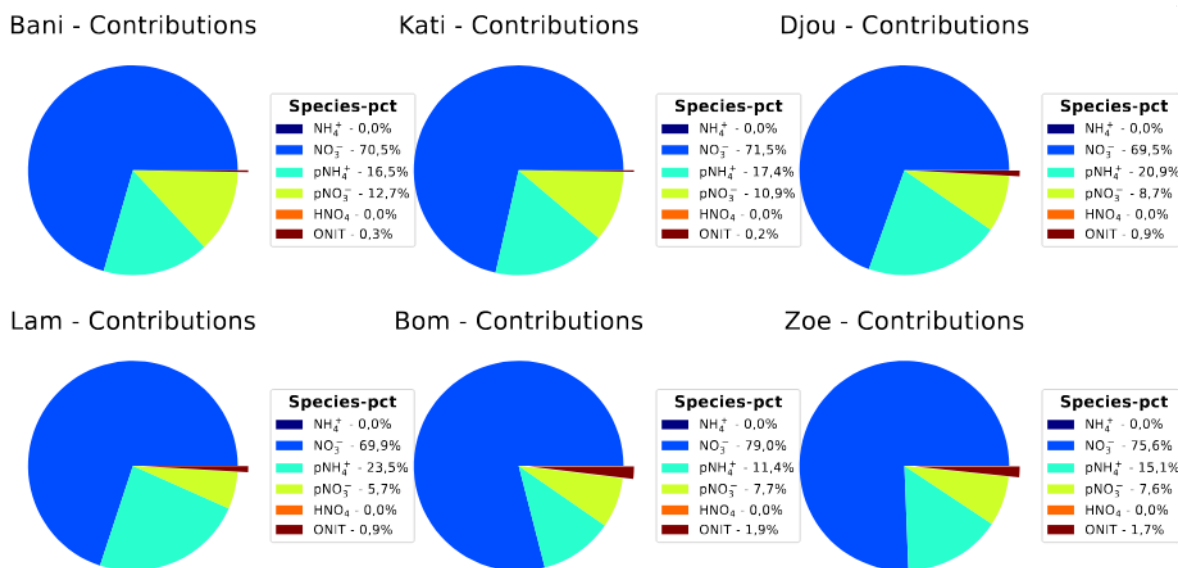


Figure 45 : Contribution des espèces au dépôt humide total, pour chaque station.

Bani : Banizoumbou, Kati : Katibougou, Djou : Djougou, Lam : Lamto, Bom : Bomassa, Zoe : Zoétélé.

4-3-3- Dépôt total

La figure 46 illustre l'évolution mensuelle du dépôt total d'azote (sec et humide) pour les six stations INDAAF situées le long du transect savane sèche – savane humide – forêt, sur la période 2011–2019.

Dans les savanes sèches, le dépôt total d'azote est plus élevé durant la saison des pluies, avec des pics mensuels atteignant environ 4 à 5 kgN ha⁻¹ an⁻¹ entre juin et août, tandis que les valeurs restent inférieures à 2 kgN ha⁻¹ an⁻¹ en saison sèche (novembre à avril). En savanes humides, le dépôt d'azote est légèrement plus important de novembre à janvier, avec des flux mensuels variant de 3,7 à 5,5 kgN ha⁻¹ an⁻¹. À Lamto, les flux les plus élevés sont également enregistrés en saison sèche, notamment de novembre à février, avec un maximum estimé à près de 5,8 kgN ha⁻¹ an⁻¹ en décembre, traduisant une influence marquée des émissions liées aux feux de végétation. Dans les sites forestiers (Bomassa et Zoétélé), les flux mensuels de dépôt total d'azote sont nettement plus élevés que dans les autres écosystèmes. Les valeurs culminent en janvier et décembre, avec des dépôts supérieurs à 9 kgN ha⁻¹ an⁻¹, tandis qu'en saison humide, les flux sont plus modérés, oscillant entre 1 et 3 kgN ha⁻¹ an⁻¹. Cette dynamique suggère un rôle prépondérant des sources de combustion en saison sèche, amplifiée par des conditions météorologiques favorables à l'accumulation et au dépôt des espèces azotées.

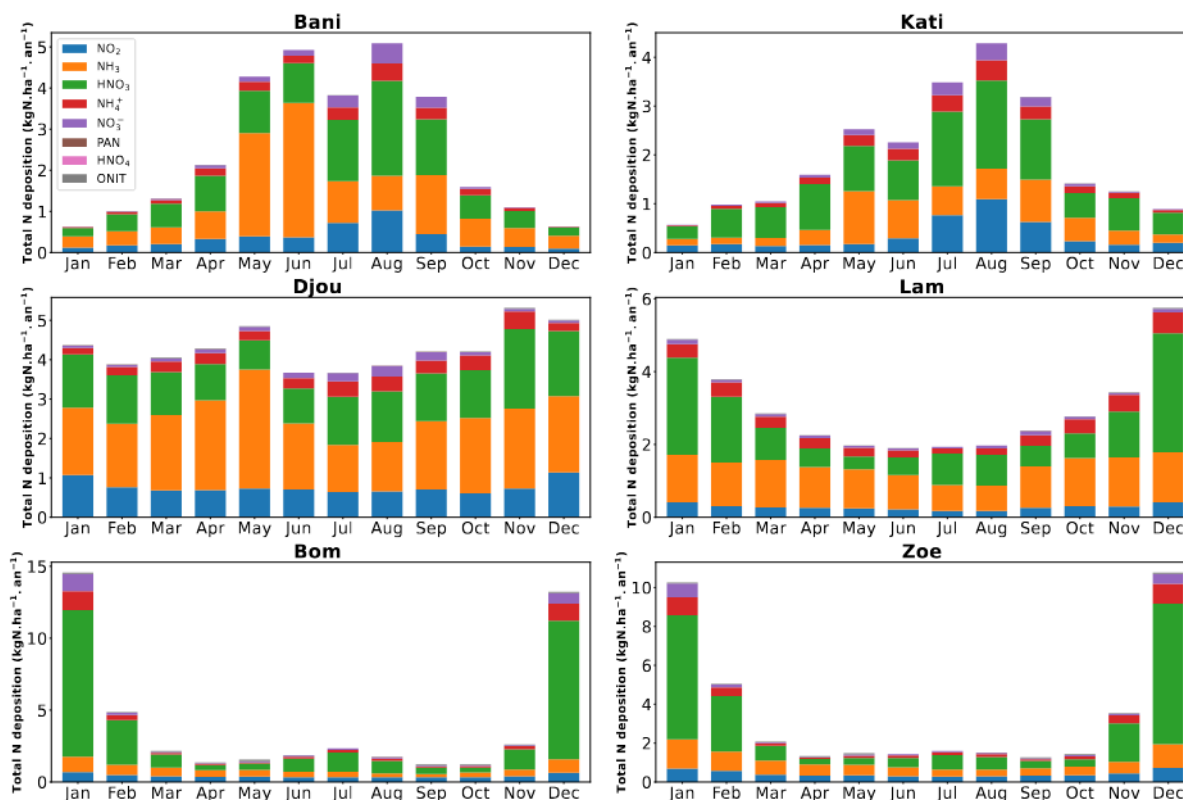


Figure 46 : Moyenne mensuelle (moyennée sur 2011–2019) du dépôt total d’azote par espèce, sur les six stations.

La figure 47 illustre les flux annuels simulés de dépôt d’azote (moyennés sur la période 2011–2019) pour chaque espèce et chaque station.

Les résultats indiquent que le dépôt total d’azote varie entre 1,96 et 2,53 $\text{kgN ha}^{-1} \text{an}^{-1}$ dans les savanes sèches, entre 3,25 et 4,2 $\text{kgN ha}^{-1} \text{an}^{-1}$ dans les savanes humides, et entre 3,48 et 4,12 $\text{kgN ha}^{-1} \text{an}^{-1}$ dans les forêts d’Afrique de l’Ouest et Centrale. On observe ainsi un gradient croissant du dépôt total d’azote le long du transect savane sèche - savane humide - forêt. Par ailleurs, le dépôt d’azote sous forme particulaire est très faible, de l’ordre de 0,1 à 0,4 $\text{kgN ha}^{-1} \text{an}^{-1}$. Notons que le modèle ne prend pas en compte la chimie hétérogène entre la poussière minérale et HNO_3 , susceptible d’accroître significativement la formation d’azote particulaire dans certaines régions.

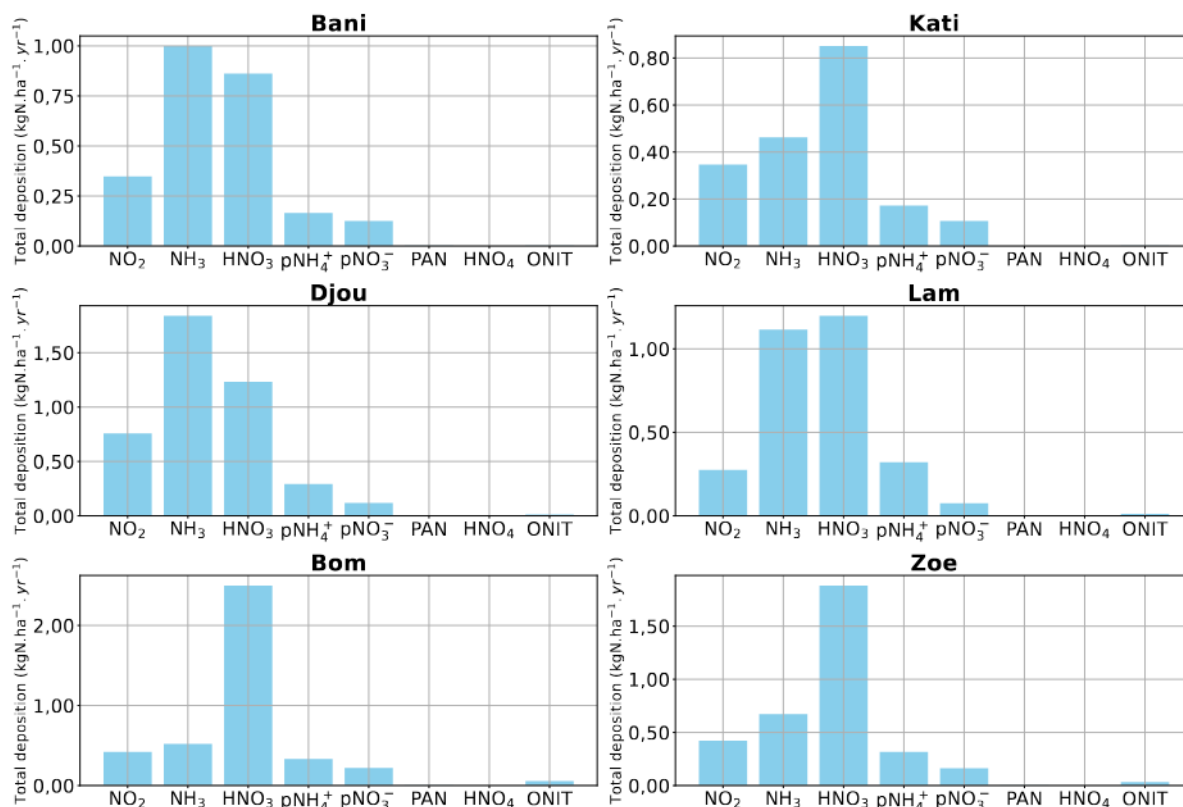


Figure 47 : Dépôt total annuel d'azote par espèce pour chaque station.

Bani : Banizoumbou, Kati : Katibougou, Djou : Djougou, Lam : Lamto, Bom : Bomassa, Zoe : Zoétélé.

La figure 48 présente la contribution relative de chaque espèce azotée au dépôt total d'azote pour les six stations INDAAF.

En savanes sèches, la contribution du dépôt sec au dépôt total est prépondérante, représentant entre 50,71 % et 61,26 %. En savanes humides, cette part est comprise entre 56,52 % et 68,22 %, tandis qu'elle est plus faible en zone forestière (entre 28,07 % et 40,51%). Ce constat souligne l'importance des processus de dépôt sec pour les espèces azotées en savanes et celle des précipitations pour les forêts. De façon générale, les dépôts d'ammoniac gazeux (NH₃) et d'acide nitrique (HNO₃) constituent les principales voies de dépôt en savanes sèches (entre 23,8 à 43,8 %) et en savanes humides (37,2 à 43,2 %). En revanche, en forêts, les contributions du dépôt de HNO₃ (53,9 à 61,7 %) sont plus importantes (figure 48).

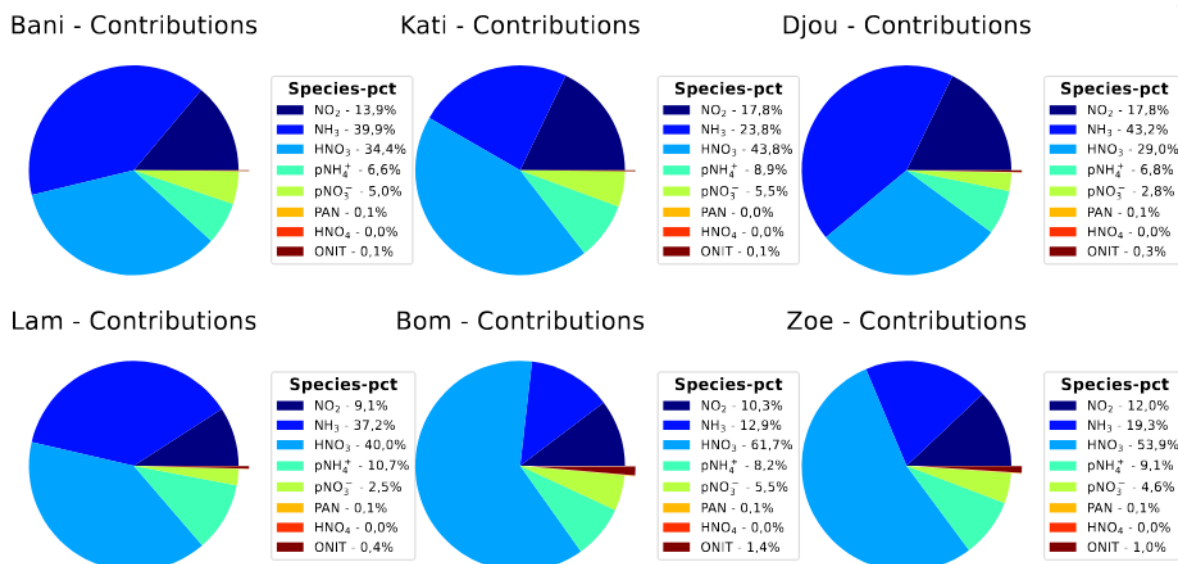


Figure 48 : Contribution des espèces au dépôt total d'azote pour chaque station.

Bani : Banizoumbou, Kati : Katibougou, Djou : Djougou, Lam : Lamto, Bom : Bomassa, Zoe : Zoétélé.

L'analyse globale des formes azotées montre une nette domination de la forme oxydée (NO₂, HNO₃, NO₃⁻, pNO₃⁻, PAN, HNO₄ et ONIT), qui représentent entre 50 % et 78 % du dépôt total d'azote (figure 49), tous écosystèmes confondus.

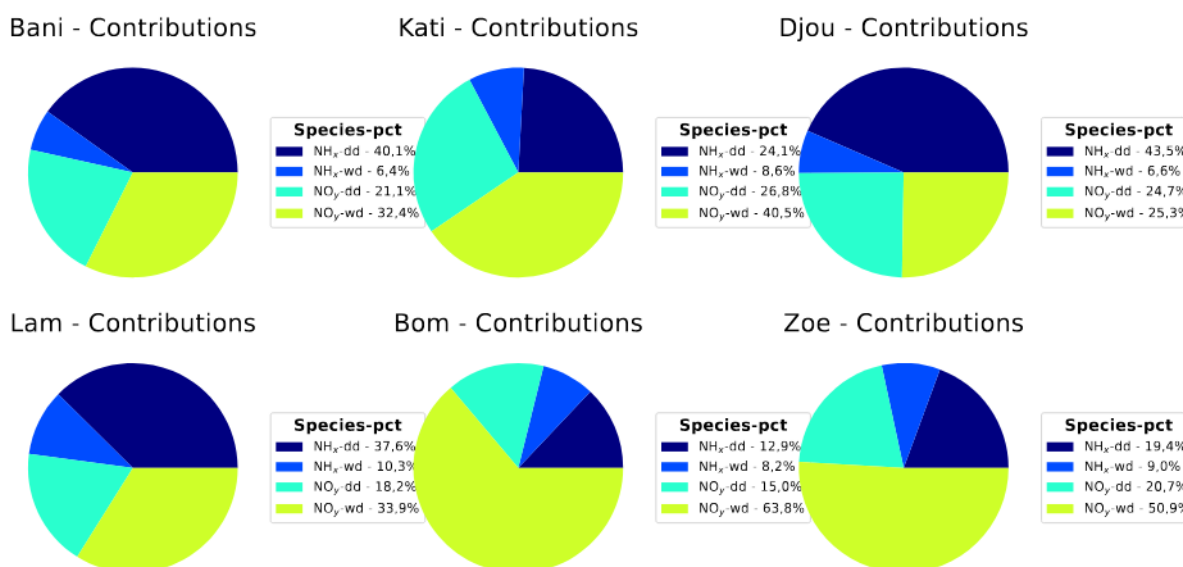


Figure 49 : Contributions de NO_x et NO_y, par formes sèche et humide, au dépôt total d'azote pour chaque station.

Bani : Banizoumbou, Kati : Katibougou, Djou : Djougou, Lam : Lamto, Bom : Bomassa, Zoe : Zoétélé.

Par ailleurs, la figure 50 met en évidence la très forte prédominance de l'azote inorganique dans le bilan total des dépôts. Sur l'ensemble des stations INDAAF, les formes inorganiques (Inorg-N) représentent entre 98,6 % et 99,9 % du dépôt total d'azote, tandis que la contribution des formes organiques (Org-N) reste marginale, inférieure à 1,5 %, même dans les zones forestières

où elle est la plus élevée par rapport aux autres sites. Ce constat confirme que, dans le contexte africain, l'azote déposé est quasi exclusivement d'origine inorganique, en cohérence avec les principales sources identifiées, telles que les émissions agricoles, les feux de biomasse et les processus d'oxydation atmosphérique. Il est toutefois important de noter que cette prédominance des formes inorganiques devrait être interprétée avec précaution. En effet, les formes organiques de l'azote (Org-N) sont encore mal quantifiées dans les modèles et les mesures, en raison d'incertitudes sur leurs sources, leurs mécanismes de formation, et leur représentativité dans les inventaires. Le fait donc que leur contribution réelle soit sous-estimée est à considérer, surtout dans les zones forestières riches en composés organiques volatils.

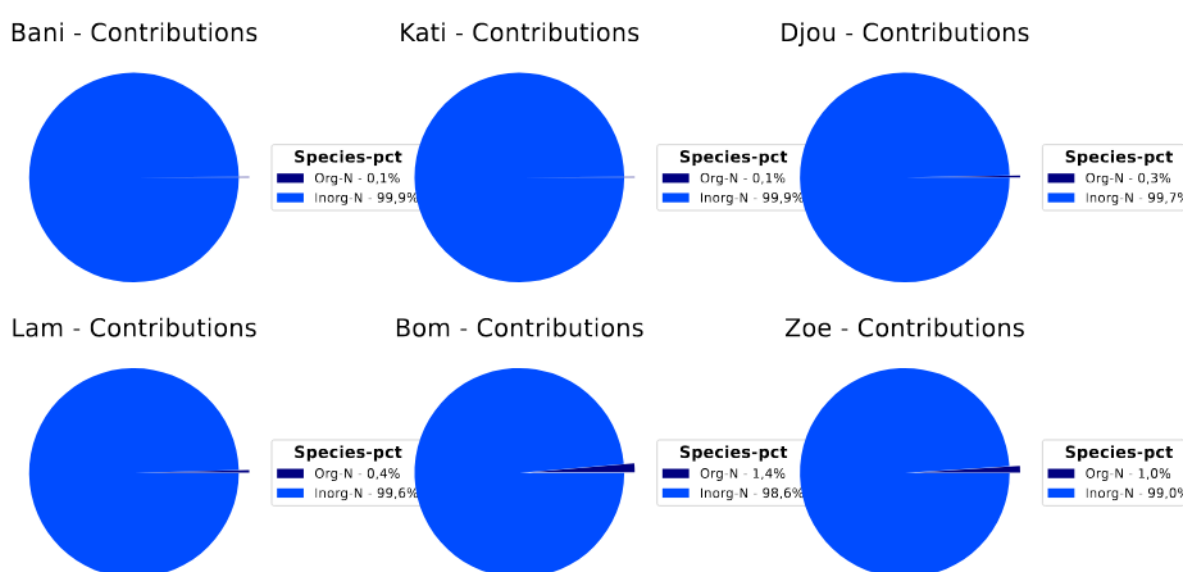


Figure 50 : Contributions des formes organiques et inorganiques au dépôt total d'azote pour chaque station.

Bani : Banizoumbou, Kati : Katibougou, Djou : Djougou, Lam : Lamto, Bom : Bomassa, Zoe : Zoétély.

L'incertitude globale associée à ce bilan est principalement liée au dépôt sec, en raison de la difficulté à estimer précisément les vitesses de dépôt (Adon, 2011), mais également aux incertitudes sur les émissions de d'azote prescrites au modèle.

Conclusion partielle

Ce chapitre a permis d'estimer et de caractériser les dépôts de Nr, notamment leur répartition entre dépôt sec et humide, la contribution des formes réduites et oxydées, ainsi que leur variabilité spatiale en Afrique intertropicale sur la période 2011–2019, à l'aide du modèle RegCM5. Les résultats indiquent un dépôt annuel moyen de $2,11 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$, soit environ $5,6 \text{ TgN.an}^{-1}$ à l'échelle du domaine d'étude, correspondant à $16,7 \text{ TgN.an}^{-1}$ pour le domaine régional utilisé

dans les simulations du Chapitre 3. La répartition des dépôts met en évidence une légère prédominance du dépôt sec (51,6 %), principalement porté par le NH_3 . Toutefois, cette différence entre dépôts sec et humide reste limitée et doit être interprétée avec prudence en raison des incertitudes importantes associées à l'estimation des vitesses de dépôt sec et aux émissions. A l'inverse, le dépôt humide est dominé par les formes oxydées, en particulier le NO_3^- . Ceci s'explique par l'importance des émissions de NO_x , mais aussi, possiblement, par une sous-estimation des concentrations de NH_3 dans la simulation. L'analyse régionale et locale met en évidence une forte hétérogénéité spatiale, marquée par des contrastes entre savanes sèches, savanes humides et forêts, ainsi que des différences saisonnières notables. Ces résultats offrent un cadre de référence essentiel pour mieux comprendre la dynamique des dépôts azotés en Afrique intertropicale.

Après avoir caractérisé les niveaux moyens de dépôt d'azote et identifié les principales espèces et processus impliqués, nous nous intéressons à présent à la variabilité temporelle et aux tendances de ces dépôts. Cette variabilité est cruciale pour comprendre la dynamique des apports azotés sur les écosystèmes, leurs effets saisonniers, ainsi que leur sensibilité aux évolutions anthropiques ou climatiques. Le chapitre suivant explore ainsi les fluctuations interannuelles et saisonnières du dépôt d'azote, en lien avec les émissions et les facteurs climatiques susceptibles de moduler leur intensité et leur distribution.

CHAPITRE 5 : VARIABILITE ET TENDANCE DES DEPOTS D'AZOTE : ROLE DES FACTEURS CLIMATIQUES ET DES EMIS- SIONS

5-1- Variabilité et tendances des émissions et dépôts d'azote

5-1-1- Émissions régionale de NO_x et NH₃ : tendances et variabilité interannuelle

Afin d'évaluer la distribution spatiale et saisonnière des tendances interannuelles des émissions de NO_x et de NH₃ sur la période 2011–2019, le test de Mann-Kendall (MK) a été appliqué pour détecter les tendances monotones, avec une évaluation de leur significativité au seuil de 95 % ($p < 0.05$). La pente associée à cette tendance, estimée selon la méthode de Theil-Sen (ICR, pour Interannual Change Rate), permet de quantifier l'ampleur du changement. Les Figures 51 et 52 présentent la distribution spatiale saisonnière des tendances significatives des émissions de NO_x et NH₃, respectivement. La localisation des stations INDAAF est indiquée sur les cartes afin de fournir un cadre d'analyse pour évaluer l'influence des tendances régionales d'émissions sur les processus locaux.

À l'échelle du domaine, les émissions de NO_x ne montrent pas de tendances systématiques et généralisées. Les tendances significatives sont principalement limitées à certaines zones spécifiques. En MAM, des hausses significatives sont observées sur la côte guinéenne et certaines parties de l'Afrique centrale, probablement liées à l'intensification des émissions urbaines et aux feux de biomasse de fin de saison sèche. Le Sahel et l'Afrique de l'Est ne présentent, en revanche, que très peu de tendances significatives. En JJA, une augmentation notable est enregistrée sur la côte guinéenne, traduisant une hausse des émissions anthropiques en saison des pluies. Des tendances positives dispersées sont aussi identifiées sur l'Afrique de l'Est, probablement d'origine biogénique. Les saisons SON et DJF présentent des comportements similaires : des diminutions sur le Sahel et la côte guinéenne, contrastant avec des augmentations significatives sur l'Afrique centrale et l'Afrique de l'Est. Ces tendances reflètent la dynamique saisonnière des feux de biomasse, dont l'intensité varie fortement entre le début (SON) et le cœur (DJF) de la saison sèche.

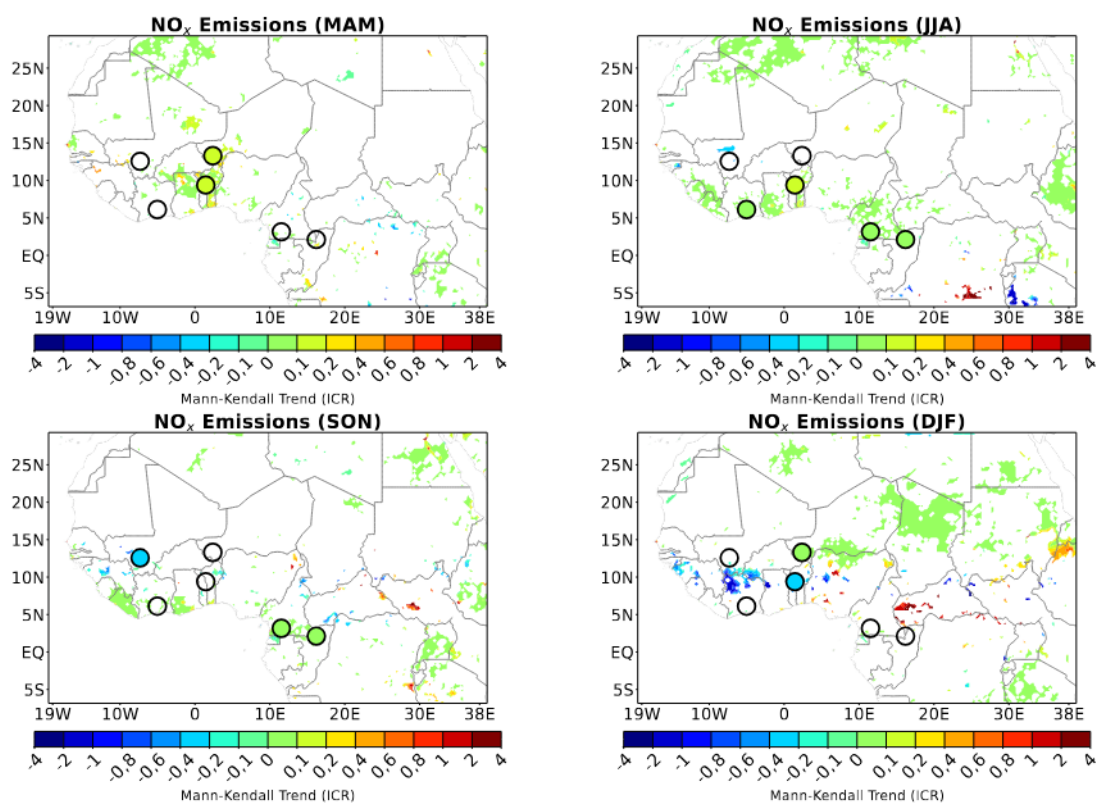


Figure 51 : Distribution spatiale saisonnière de la pente de tendance (ICR) pour les émissions de NO_x.

Les tendances sont calculées à partir du test de Mann-Kendall sur la période 2011–2019. Seules les tendances statistiquement significatives au seuil de 95 % ($p < 0,05$) sont représentées. Les valeurs simulées aux stations INDAAF sont superposées et indiquées par des cercles sur les cartes.

Les émissions de NH₃ présentent, quant à elles, des tendances plus marquées et spatialement étendues. En MAM, des hausses significatives sont détectées notamment sur la côte guinéenne et l’Afrique de l’Est, en lien avec les pratiques agricoles telles que la fertilisation et la gestion des déjections animales, qui précèdent l’installation de la saison des pluies. En JJA, cette tendance se maintient, voire s’intensifie, en particulier sur le Sahel, la côte guinéenne et l’Afrique de l’Est, correspondant au pic d’activité agricole. En SON, les tendances sont plus hétérogènes, avec des points chauds sur l’Afrique centrale et orientale, vraisemblablement liés aux résidus de culture post-récolte et aux émissions d’origine animale. En DJF, les tendances sont plus localisées, avec quelques augmentations significatives, surtout en Afrique de l’Est et sur la côte guinéenne, probablement dues aux activités agricoles en saison sèche et à une volatilisation plus forte sous climat chaud et sec (Delon *et al.*, 2010).

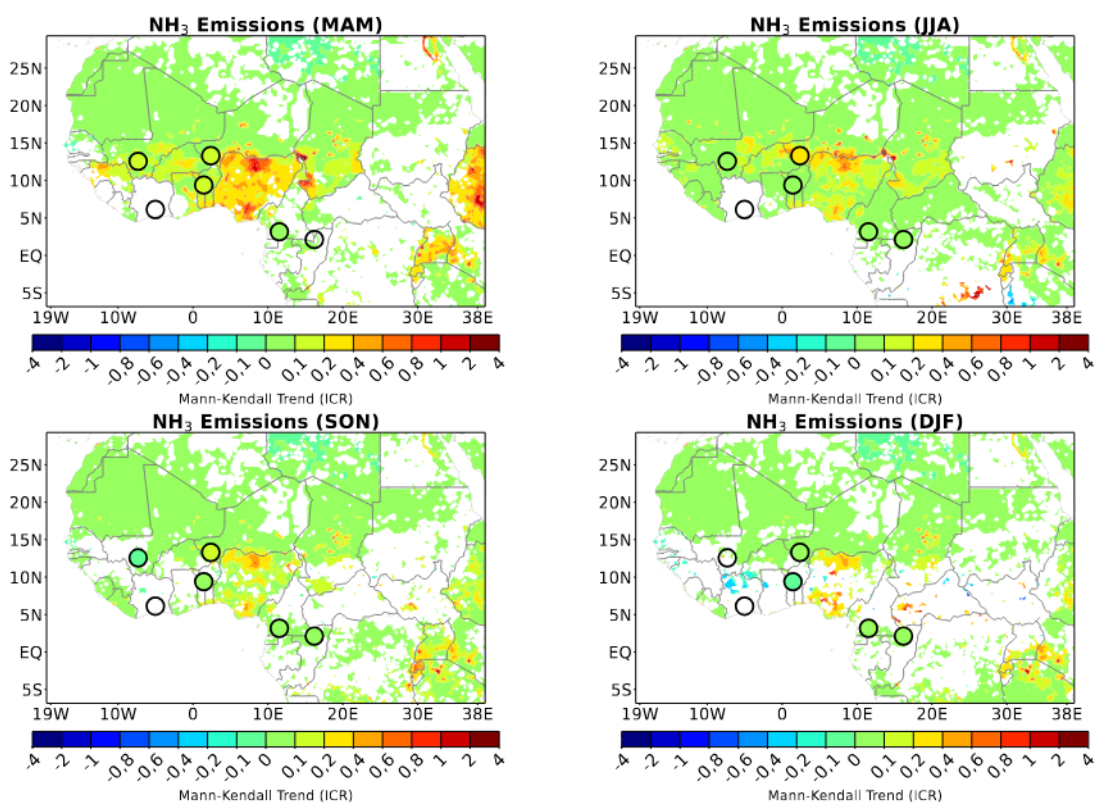


Figure 52 : Distribution spatiale saisonnière de la pente de tendance (ICR) pour les émissions de NH_3 .

Les tendances sont calculées à partir du test de Mann-Kendall sur la période 2011–2019. Seules les tendances statistiquement significatives au seuil de 95 % ($p < 0,05$) sont représentées. Les valeurs simulées aux stations INDAAF sont superposées et indiquées par des cercles sur les cartes.

Le Tableau XIV synthétise les valeurs saisonnières des pentes de tendance (ICR), les p-valeurs associées, ainsi que les déviations absolues moyennes (MAD), indicateurs de variabilité interannuelle, pour les émissions de NO_x et NH_3 sur les quatre grandes régions africaines. Globalement, les émissions de NO_x montrent peu de tendances significatives ($p > 0,05$), à l'exception de la JJA sur la côte guinéenne et de SON en Afrique de l'Est. En revanche, les émissions de NH_3 présentent des tendances significatives plus marquées, notamment sur le Sahel et l'Afrique de l'Est, avec des ICR maximales atteignant $0,14$ et $0,17 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ en MAM.

Tableau XIV : Tendances saisonnières de Mann-Kendall (ICR), valeurs de p et déviation absolue moyenne (MAD).

Régions	Saisons	NO _x			NH ₃		
		ICR	p-value	MAD	ICR	p-value	MAD
Sahel	MAM	0,05	0,251	0,31	0,14	0,001	0,32
	JJA	0,04	0,754	0,47	0,11	0,000	0,25
	SON	0,01	1,000	0,28	0,05	0,005	0,15
	DJF	0,03	0,466	0,12	0,04	0,000	0,09
Côte de Guinée	MAM	0,02	0,917	0,20	0,13	0,029	0,30
	JJA	0,02	0,029	0,05	0,06	0,000	0,14
	SON	0,00	1,000	0,07	0,06	0,002	0,12
	DJF	-0,10	0,348	0,57	0,02	0,466	0,20
Afrique de l'Est	MAM	0,01	0,754	0,07	0,17	0,000	0,37
	JJA	-0,02	0,466	0,10	0,06	0,002	0,13
	SON	0,12	0,029	0,31	0,11	0,001	0,25
	DJF	0,02	0,754	0,19	0,07	0,009	0,21
Afrique Central	MAM	-0,03	0,348	0,15	0,03	0,029	0,08
	JJA	0,08	0,348	0,32	0,05	0,048	0,15
	SON	0,03	0,251	0,12	0,03	0,001	0,07
	DJF	0,11	0,118	0,46	0,05	0,076	0,18

Ces valeurs sont données pour les émissions de NO_x et NH₃ sur la période 2011–2019.

En termes de variabilité interannuelle, indiquée par les valeurs MAD, les émissions de NO_x présentent une plus grande fluctuation d'année en année sur le Sahel et l'Afrique centrale, probablement influencées par la variabilité interannuelle des feux de biomasse. Pour NH₃, la variabilité est maximale sur la côte guinéenne et en Afrique de l'Est, reflétant l'intensité saisonnière et les évolutions des pratiques agricoles. Ces résultats confirment le comportement contrasté des deux espèces : une plus grande stabilité interannuelle des émissions de NO_x, mais

des contributions plus marquées à la variabilité de NH_3 .

5-1-2- Dépôts d'azote : tendances et variabilité interannuelle

5-1-2-1- Analyse régionale

La Figure 53 illustre les tendances annuelles du dépôt atmosphérique d'azote sur la période 2011–2019 à l'échelle du domaine de simulation. Les changements interannuels (ICR) et la variabilité interannuelle (MAD) des dépôts moyens, toutes formes et espèces confondues, sont évalués par saison et résumés dans le Tableau XV.

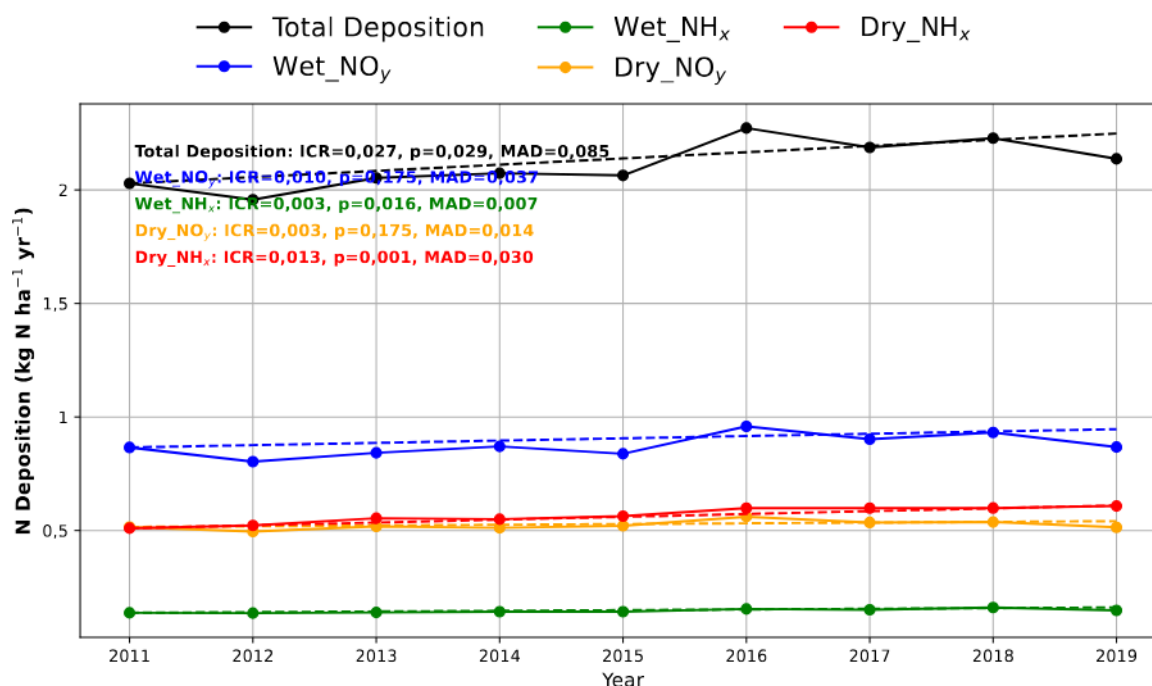


Figure 53 : Tendances annuelles moyennes des variations des formes réduites et oxydées du dépôt total, humide et sec d'azote.

De manière générale, une tendance à la hausse est observée pour l'ensemble des espèces de Nr sur la période d'étude. Par rapport à l'année 2011, les dépôts moyens annuels simulés en 2019 augmentent de 19,1 % pour Dry_NH_x, 7,6 % pour Wet_NH_x et 0,2 % pour Wet_NO_y, tandis que Dry_NO_y enregistre une légère baisse de -0,3 %. Ainsi, le dépôt total annuel de Nr passe de 2,03 kgN ha⁻¹ an⁻¹ en 2011 à 2,14 kgN ha⁻¹ an⁻¹ en 2019, soit une hausse de 5,3 %. En termes de tendance simulée, les pentes interannuelles (ICR) simulées sont de 0,013 kgN ha⁻¹ an⁻¹ pour Dry_NH_x, 0,003 pour Dry_NO_y, 0,003 pour Wet_NH_x, 0,010 pour Wet_NO_y, et 0,027 pour le dépôt total de Nr. Cela montre que les formes réduites (NH_x) dominent la tendance temporelle du dépôt total, bien que les valeurs absolues de NO_y soient plus élevées (voir Figure 53 et Tableau XV).

Tableau XV : Dépôt d'azote simulé par saison, pour différentes formes et espèces et pour les années 2011 et 2019.

Formes	Saisons	Moyennes	2011	2019 (Variations)	ICR	p-value	MAD
Dry_NH _x	MAM	0,69	0,623	0,756 (21,3%)	0,017	0,001	0,04
	JJA	0,58	0,520	0,654 (25,8%)	0,014	0,005	0,03
	SON	0,47	0,419	0,497 (18,7%)	0,012	0,009	0,03
	DJF	0,52	0,479	0,524 (9,5%)	0,009	0,029	0,03
Dry_NO _y	MAM	0,43	0,428	0,454 (6,1%)	0,004	0,251	0,01
	JJA	0,63	0,628	0,612 (-2,4%)	0,003	0,466	0,02
	SON	0,42	0,410	0,405 (-1,4%)	0,005	0,251	0,02
	DJF	0,62	0,596	0,585 (-1,9%)	0,004	0,466	0,02
Wet_NH _x	MAM	0,13	0,129	0,129 (0,1%)	0,001	0,348	0,00
	JJA	0,17	0,163	0,168 (2,9%)	0,003	0,076	0,01
	SON	0,12	0,104	0,125 (20,1%)	0,004	0,009	0,01
	DJF	0,17	0,153	0,169 (10,5%)	0,003	0,118	0,01
Wet_NO _y	MAM	0,66	0,690	0,679 (-1,6%)	0,000	1,000	0,05
	JJA	1,09	1,068	0,991 (-7,2%)	0,013	0,348	0,07
	SON	0,61	0,580	0,603 (10,2%)	0,018	0,048	0,06
	DJF	1,14	1,125	1,161 (3,1%)	0,010	0,348	0,05
Total_N	MAM	1,91	1,870	2,019 (7,9%)	0,019	0,118	0,08
	JJA	2,46	2,378	2,425 (2,0%)	0,029	0,251	0,11
	SON	1,62	1,513	1,666 (10,1%)	0,043	0,016	0,11
	DJF	2,45	2,353	2,438 (3,6%)	0,019	0,048	0,09

Les dépôts sont moyennés sur l'ensemble du domaine. Les variations en pourcentage entre les années 2011 et 2019 sont indiquées entre parenthèses. Les tendances temporelles et la variabilité interannuelle (IAV), représentées respectivement par l'ICR et le MAD (en kgN ha⁻¹ an⁻¹), sont également calculées sur l'ensemble de la période.

Cette dominance des NH_x s'explique par une variation plus importante des émissions de NH₃ comparée à celle de NO_x (voir Tableau XIV).

Bien que la saison JJA enregistre les valeurs de dépôt les plus élevées ($2,46 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$), sa contribution à la tendance interannuelle du dépôt total reste comparable à celle des autres saisons : 25,2 % pour JJA, contre 17,3 % pour MAM et DJF, et 30,1 % pour SON. Ces résultats s'expliquent notamment par les tendances importantes des émissions de NH_3 et NO_x durant ces saisons : ICR plus élevé obtenu en MAM pour NH_3 et en SON et DJF pour NO_x (Tableau XIV).

Les figures 54a et 54g présentent la distribution spatiale de la variabilité interannuelle (MAD) des dépôts d'azote durant la période 2011–2019. Sur l'ensemble du domaine, les MAD issus de notre simulation varient de 0,007 à $3,12 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ pour DJF et de 0,01 à $3,5 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ pour JJA, avec des moyennes annuelles sur le domaine de 0,42 et $0,26 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ respectivement. Pour ces deux saisons, les MAD sont généralement inférieurs à $0,2 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ dans le nord du domaine, tandis que des valeurs plus élevées sont observées dans le sud. En particulier, les plus fortes variabilités interannuelles sont obtenues dans la zone forestière (région soumise à la combustion de biomasse), avec des MAD dépassant $3 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$, ainsi que dans la région sahélienne (notamment pour JJA), où les MAD atteignent environ $0,6 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$.

Afin d'approfondir l'analyse de la variabilité interannuelle des dépôts d'azote selon les formes et les espèces dans certaines régions, les MAD saisonniers moyennés sur le domaine sont présentés par région (Sahel, Côte de Guinée, Afrique de l'Est et Afrique Centrale) dans le tableau XVI.

Concernant les espèces, la variabilité des dépôts de NO_y est plus importante que celle de NO_x (contribution de 60 %, soit 0,051 sur $0,085 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$) (Figure 53, Tableau XVI), ce qui suggère un rôle majeur de la variabilité des émissions de NO_x dans celle des dépôts d'azote. En effet, le tableau XIV a montré que les MAD des émissions de NO_x sont généralement supérieurs à ceux de NH_3 .

S'agissant des formes de dépôt, les MAD des dépôts humides sont plus élevés que ceux des dépôts secs (contribution de 51,8 %) (Tableau XVI), ce qui indique que la variabilité interannuelle des précipitations pourrait être un facteur déterminant des fluctuations du dépôt d'azote. Les valeurs saisonnières du MAD varient entre 0,026 et $0,038 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ pour Dry_NH_x , 0,014 à 0,024 pour Dry_NO_y , 0,004 à 0,011 pour Wet_NH_x , 0,045 à 0,066 pour Wet_NO_y , et 0,080 à 0,106 pour le dépôt total. Globalement, les plus fortes valeurs de MAD sont observées en JJA, sauf pour Dry_NH_x où elles culminent en MAM, ce qui est cohérent avec la forte variabilité des émissions de NH_3 durant cette saison (Tableau XIV).

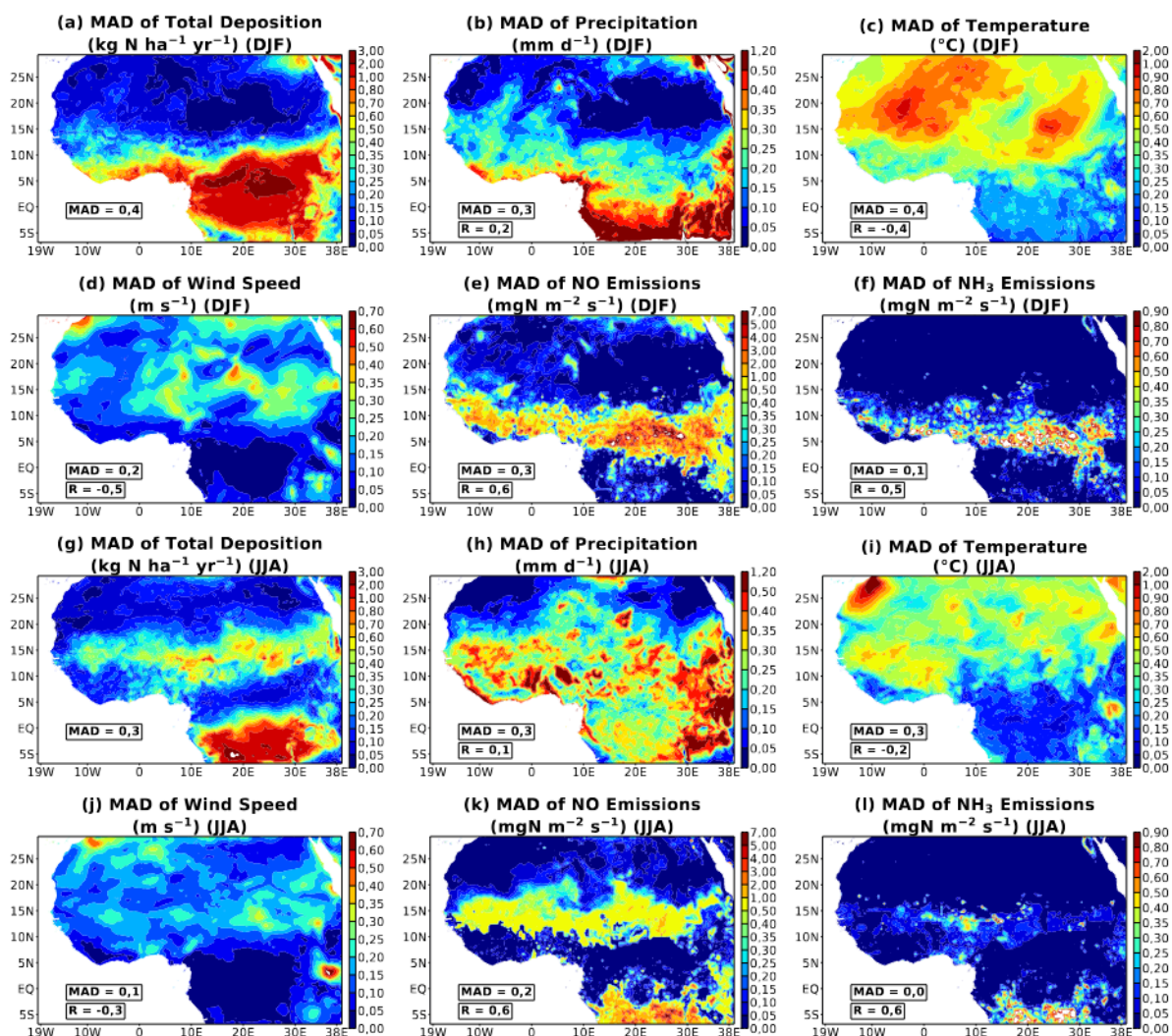


Figure 54 : MAD simulés des dépôts totaux d’azote et des facteurs climatiques/émissions sur la période 2011–2019 pour les saisons DJF et JJA.

Les MAD moyennés sur le domaine sont indiqués dans chaque panneau, ainsi que la corrélation spatiale (R) entre le dépôt et les facteurs météorologiques ou d’émissions.

Globalement, les MAD des dépôts humides de NO_y sont beaucoup plus élevés que ceux des autres formes ou espèces, en particulier en JJA. Ce résultat confirme que la variabilité des précipitations et des émissions de NO_x influence fortement celle des dépôts d’azote. Comme illustré à la figure 55, la variabilité interannuelle des précipitations est significativement corrélée (au seuil de 95 %) à celle des espèces en dépôt humide dans toutes les régions.

Tableau XVI : Variabilité interannuelle (MAD) du dépôt d'azote.

Saisons	Régions	Dry_NO _y	Dry_NH _x	Wet_NO _y	Wet_NH _x	Nr Total
MAM	Sahel	0.098	0.141	0.197	0.028	0.381
	Côte de Guinée	0.065	0.179	0.137	0.013	0.394
	Afrique de l'Est	0.051	0.160	0.155	0.036	0.403
	Afrique Centrale	0.054	0.070	0.166	0.014	0.304
JJA	Sahel	0.121	0.123	0.208	0.038	0.359
	Côte de Guinée	0.056	0.084	0.411	0.036	0.191
	Afrique de l'Est	0.076	0.087	0.287	0.041	0.407
	Afrique Centrale	0.089	0.082	0.454	0.033	0.658
SON	Sahel	0.095	0.075	0.197	0.039	0.343
	Côte de Guinée	0.043	0.110	0.135	0.032	0.251
	Afrique de l'Est	0.073	0.090	0.221	0.033	0.417
	Afrique Centrale	0.047	0.051	0.221	0.032	0.350
DJF	Sahel	0.069	0.047	0.148	0.021	0.284
	Côte de Guinée	0.129	0.118	0.433	0.077	0.617
	Afrique de l'Est	0.166	0.098	0.929	0.123	1.316
	Afrique Centrale	0.166	0.098	0.929	0.123	1.226

Les MAD sont exprimées en kgN ha⁻¹ an⁻¹, moyennées par saison et par région (Sahel, Côte de Guinée, Afrique de l'Est et Afrique Central), sur la période 2011–2019.

De plus, les figures 54b et 54e montrent que les plus fortes corrélations entre les MADs spatiales des dépôts totaux de Nr (moyenne du domaine : 0,26 kgN ha⁻¹ an⁻¹) et celles des précipitations (moyenne du domaine : 0,27 kgN ha⁻¹ an⁻¹, R = 0,13) ainsi que des émissions de NO_x (moyenne du domaine : 0,22 kgN ha⁻¹ an⁻¹, R = 0,66) sont également obtenues en JJA.

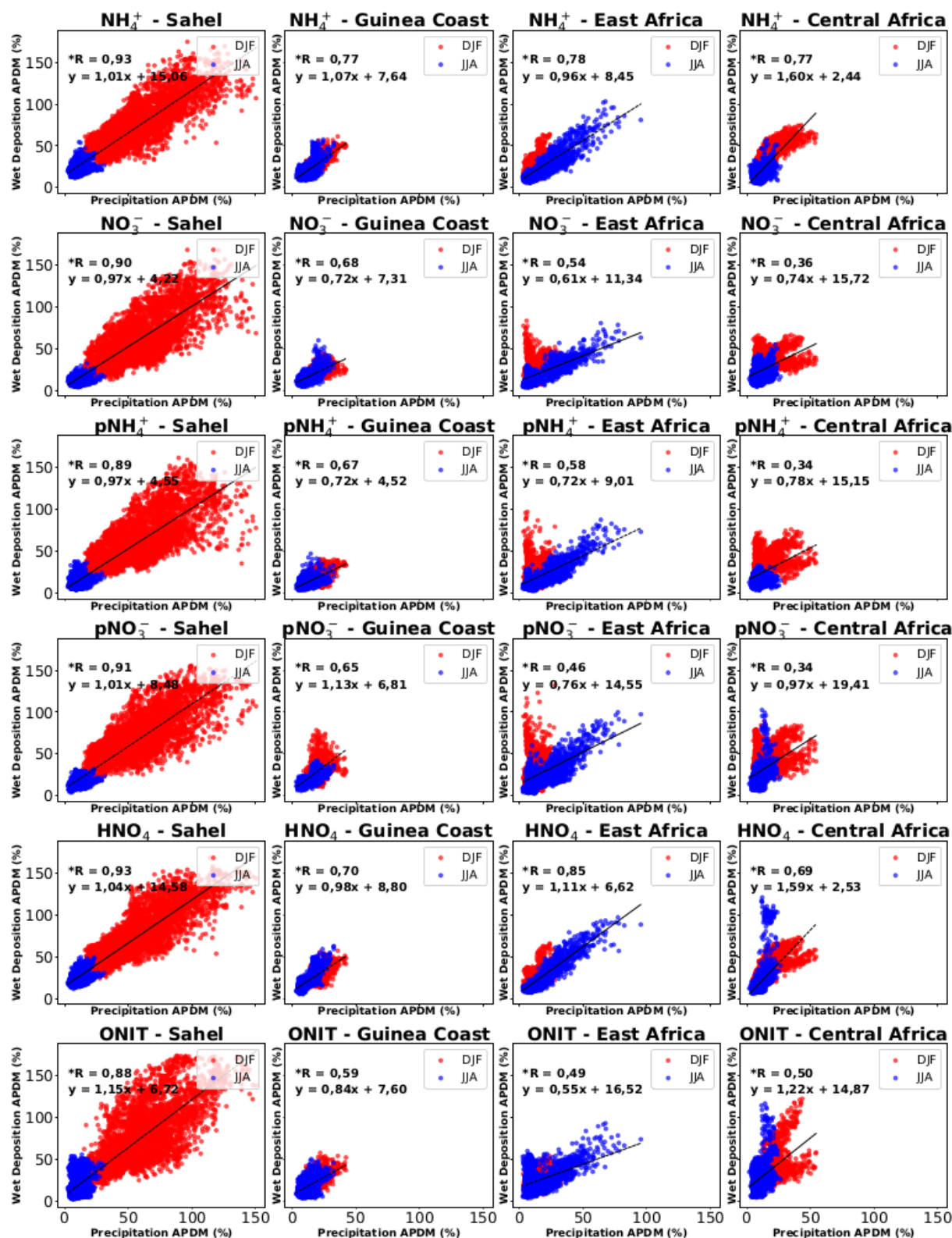


Figure 55 : Comparaison entre la variabilité des dépôts humides des différentes espèces et celle des précipitations.

La comparaison est faite sur les quatre régions et pour les saisons DJF (points rouges) et JJA (points bleus) sur la période 2011–2019. L'étoile précédant le "R" indique une corrélation statistiquement significative au seuil de 95 %.

À l'échelle régionale, les différences de MAD sont également notables. En MAM, le Sahel

enregistre la plus forte variabilité des dépôts, probablement en lien avec les fortes fluctuations saisonnières des émissions de NH_3 et NO_x . En JJA, c'est l'Afrique centrale qui montre la plus forte MAD, tandis que la Côte de Guinée enregistre ses plus fortes variabilités en DJF. Aucune différence régionale marquée n'est observée pour la saison SON (Tableau XVI).

5-1-2-2- Analyse locale aux stations INDAAF

À l'échelle locale, une tendance significative à la hausse du dépôt total d'azote n'est observée qu'à la station de Banizoumbou (Figure 56). Les dépôts de NH_x présentent également des tendances significatives à toutes les stations, à l'exception de Lamto, ce qui est en accord avec la Figure 52, où l'on observe l'absence de tendance marquée dans les émissions de NH_3 à cette station, traduisant une influence régionale limitée. En revanche, aucune tendance significative n'est détectée pour les dépôts de NO_y , ce qui confirme la prédominance de NH_x dans la tendance annuelle du dépôt de N.

La croissance du dépôt de NH_x est plus rapide que celle du dépôt de NO_y à Banizoumbou, Katibougou et Djougou, ce qui peut être attribué à l'augmentation documentée de l'utilisation des engrais azotés sur le continent (voir par exemple : <https://au.int>). Selon l'International Fertilizer Association, la consommation d'engrais en Afrique a augmenté de 70 % entre 2009 et 2019 (<https://africafertilizer.org>). En revanche, à Zoétéélé et Bomassa, la croissance du dépôt de NO_y est supérieure à celle de NH_x , ce qui s'explique principalement par des pentes de tendance (ICR) plus élevées des émissions de NO_x en Afrique centrale (Tableau XIV), suggérant une influence régionale différente.

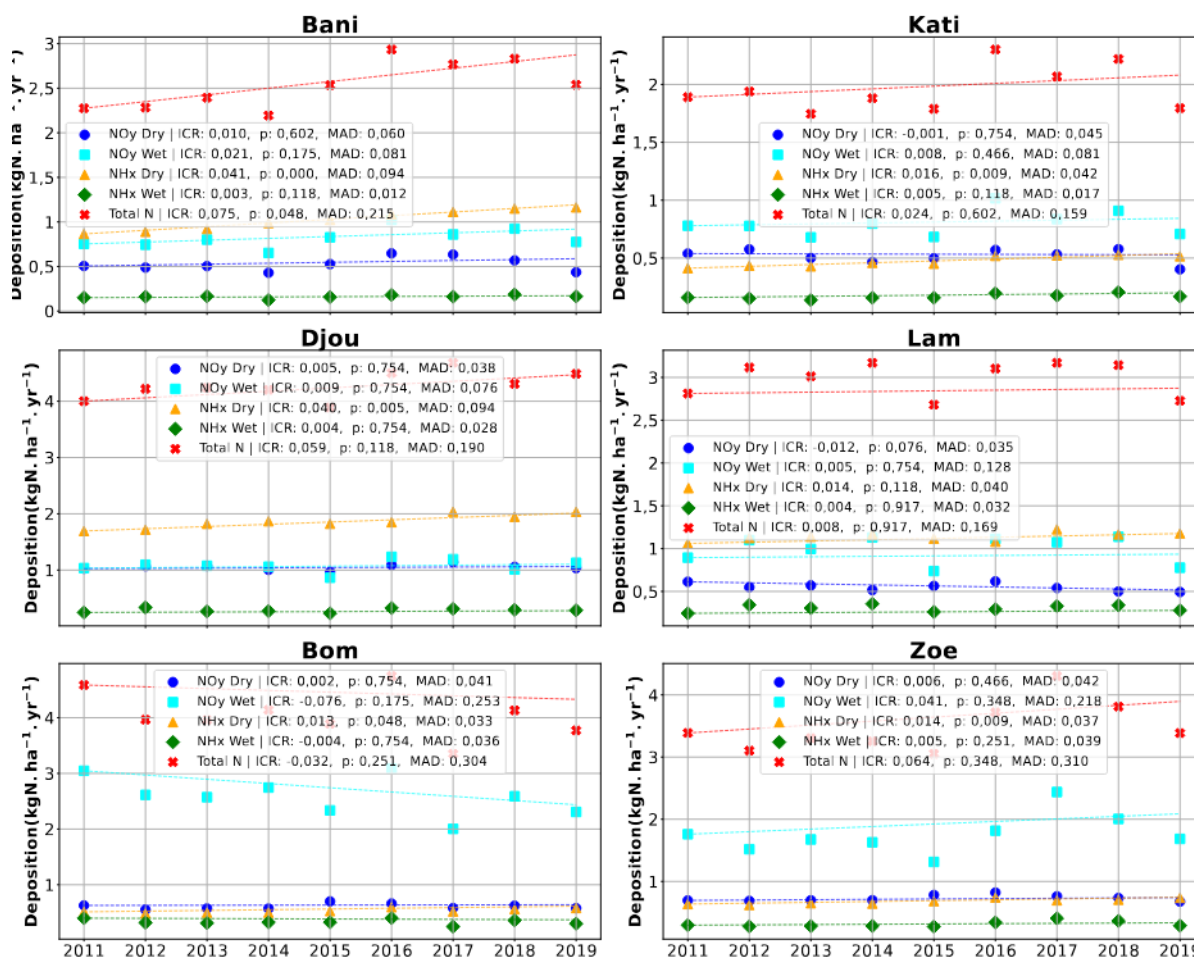


Figure 56 : Tendances annuelles d’évolution des formes réduite et oxydée du dépôt total d’azote. Elles sont données pour chaque station INDAAF. L’étoile précédant le “R” indique une corrélation statistiquement significative au seuil de 95 %.

5-2- Rôle des émissions et des facteurs climatiques dans la variabilité des dépôts atmosphériques d’azote

Pour identifier les principaux facteurs expliquant la variabilité interannuelle (IAV) des dépôts secs d’azote sur le domaine d’étude, une approche statistique a été mise en œuvre, combinant l’analyse des écarts absolus moyens (APDM), des corrélations temporelles et une régression linéaire multiple. Cette méthode, déjà utilisée pour des diagnostics de variabilité atmosphérique (Vet *et al.*, 2014), permet d’estimer la contribution relative de différentes variables explicatives (émissions, température, précipitations, vent) à la variabilité des dépôts.

Le choix des variables climatiques retenues dans l’analyse statistique (précipitation, température, vitesse du vent) repose sur leur rôle connu dans les processus atmosphériques et de surface affectant le cycle de l’azote. En effet, les précipitations conditionnent le dépôt humide, influencent l’humidité des sols et modulent ainsi les processus microbiens comme la nitrification et la

dénitrification (Galloway *et al.*, 2004; Vitousek & Howarth, 1991). La température agit sur la minéralisation, la volatilisation, et les activités microbiennes impliquées dans la production ou la transformation de l'azote réactif (Lloyd & Taylor, 1994; Smith *et al.*, 2003). Enfin, la vitesse du vent intervient directement dans les processus de dépôt sec en influençant la turbulence atmosphérique (résistance aérodynamique R_a dans le schéma de Zhang), mais aussi dans le transport des composés azotés sur de longues distances (Okin *et al.*, 2001). Le choix de ces variables permet donc de prendre en compte les principaux mécanismes physiques, biologiques et chimiques susceptibles de contribuer à la variabilité des dépôts.

5-2-1- Dépôt sec

Dans les régions sahéliennes, la variabilité du dépôt sec de NH_x est majoritairement expliquée par les émissions de NH_3 , avec des contributions atteignant 49,04 % en DJF et 42,91 % en JJA (Figure 57a-d). Ces résultats sont soutenus par une forte cohérence entre les APDM des dépôts et des émissions (Figure 58) ainsi que par une corrélation significative ($R = +0,72$ en JJA) (Figure 59). Le vent apparaît comme le second facteur contribuant à la variabilité saisonnière, notamment en SON (55,7 %) et en JJA (28,9 %) avec une corrélation modérée en JJA ($R = +0,30$), ce qui s'interprète par le rôle du vent dans les processus de dépôt par turbulence, en particulier à travers la résistance aérodynamique (R_a) dans le schéma de Zhang. En DJF, les précipitations jouent également un rôle non négligeable, avec une contribution de 40,9 %, une corrélation de +0,38 et un APDM cohérent avec celui du dépôt (33,5 %), possiblement en modulant indirectement la volatilisation et le transport, bien que la relation de causalité soit moins directe.

Egalement, sur la zone côtière guinéenne, les émissions de NH_3 dominent nettement la variabilité interannuelle du dépôt sec de NH_x , avec des contributions dépassant 70 % durant JJA (74,9 %) et SON (80,2 %). Cette domination est cohérente avec les valeurs de APDM proches de ceux des dépôts, et s'explique par l'intensité des émissions agricoles et d'élevage dans cette région. Les corrélations restent cependant modérées ($R = +0,30$ en JJA), ce qui peut s'expliquer par une superposition de variabilité locale et régionale : la variabilité des émissions dans le sous-domaine étudié pourrait refléter en partie celle des émissions à plus large échelle, dont l'effet sur le dépôt serait modulé par les conditions de transport atmosphérique. En MAM et DJF, les précipitations, la température et la vitesse du vent apportent des contributions non négligeables à la variabilité du dépôt sec réduit sur la côte guinéenne (respectivement 31,3 % et 27,3 % en DJF). Cela pourrait s'expliquer par des mécanismes combinés : d'une part, la température et l'humidité influencent la volatilisation de NH_3 à partir des surfaces agricoles et des déchets

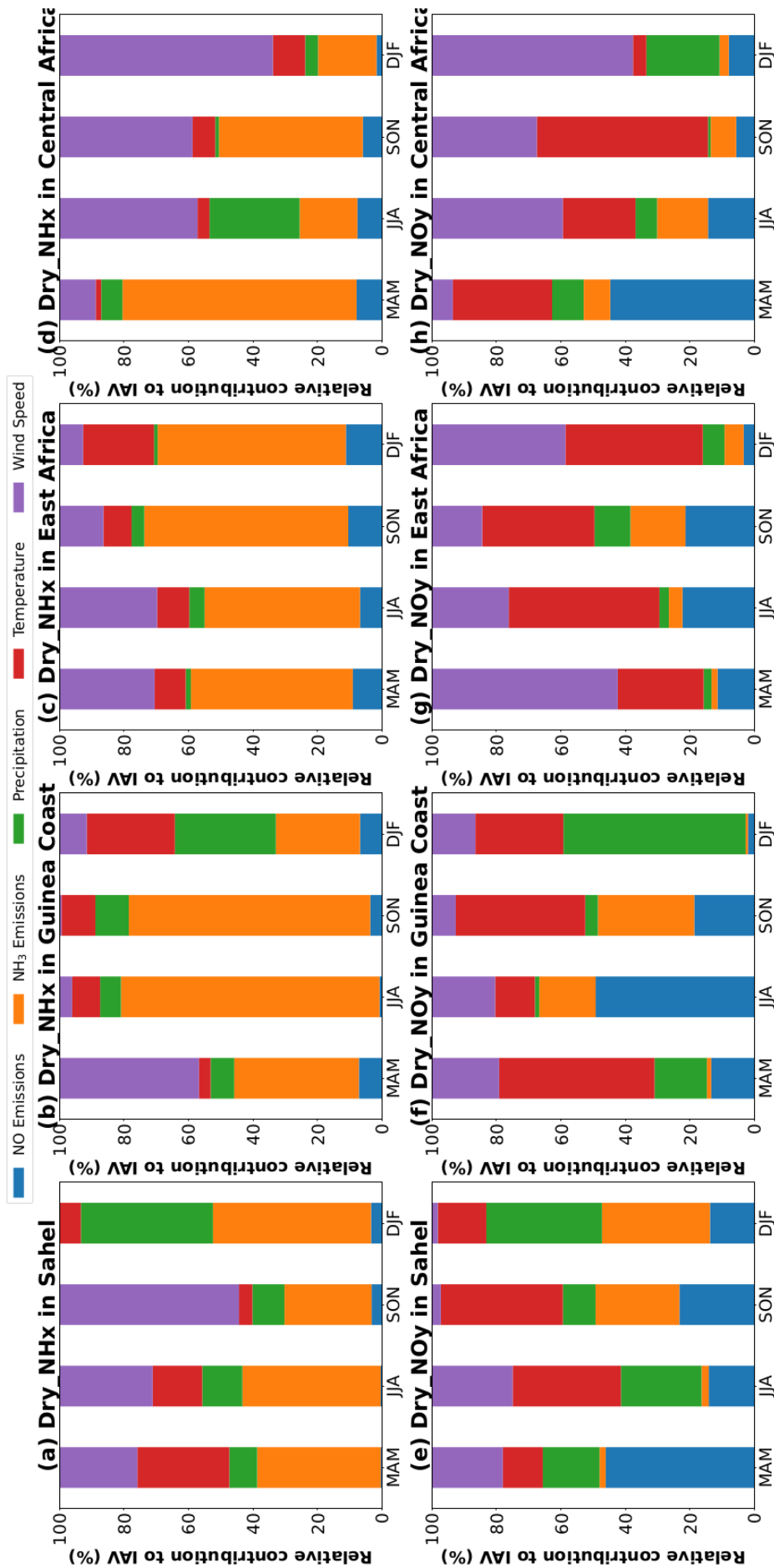


Figure 57 : Contributions régionales des différents facteurs au dépôt sec total sous ses formes réduite et oxydée.

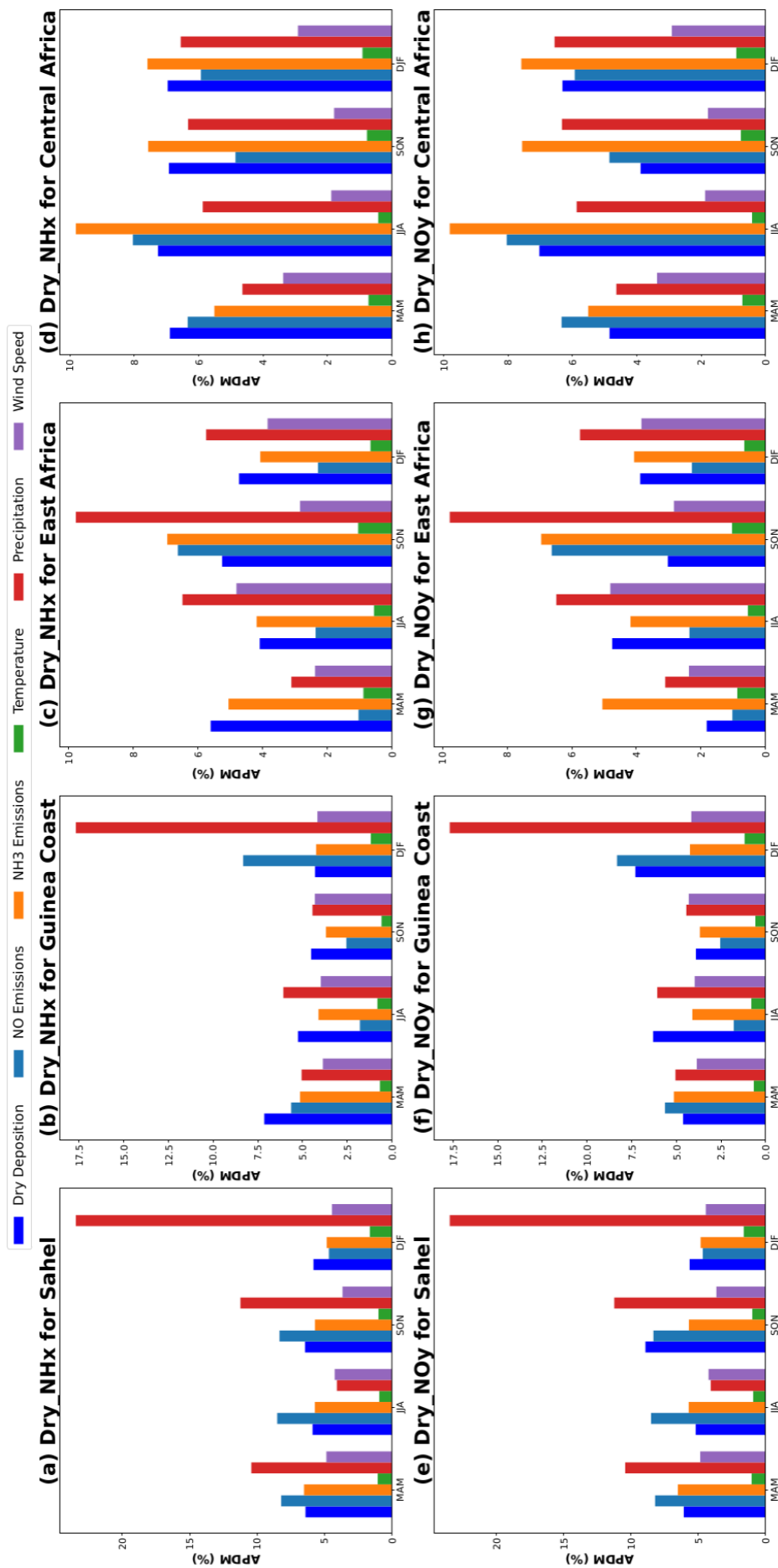


Figure 58 : APDM saisonnier moyen du dépôt sec d'azote réduit (a-d) et oxydé (e-h)
 Les APDM sont exprimés en % et simulés pour le Sahel, la Côte de Guinée, l'Afrique de l'Est et l'Afrique centrale sur la période 2011-2019.

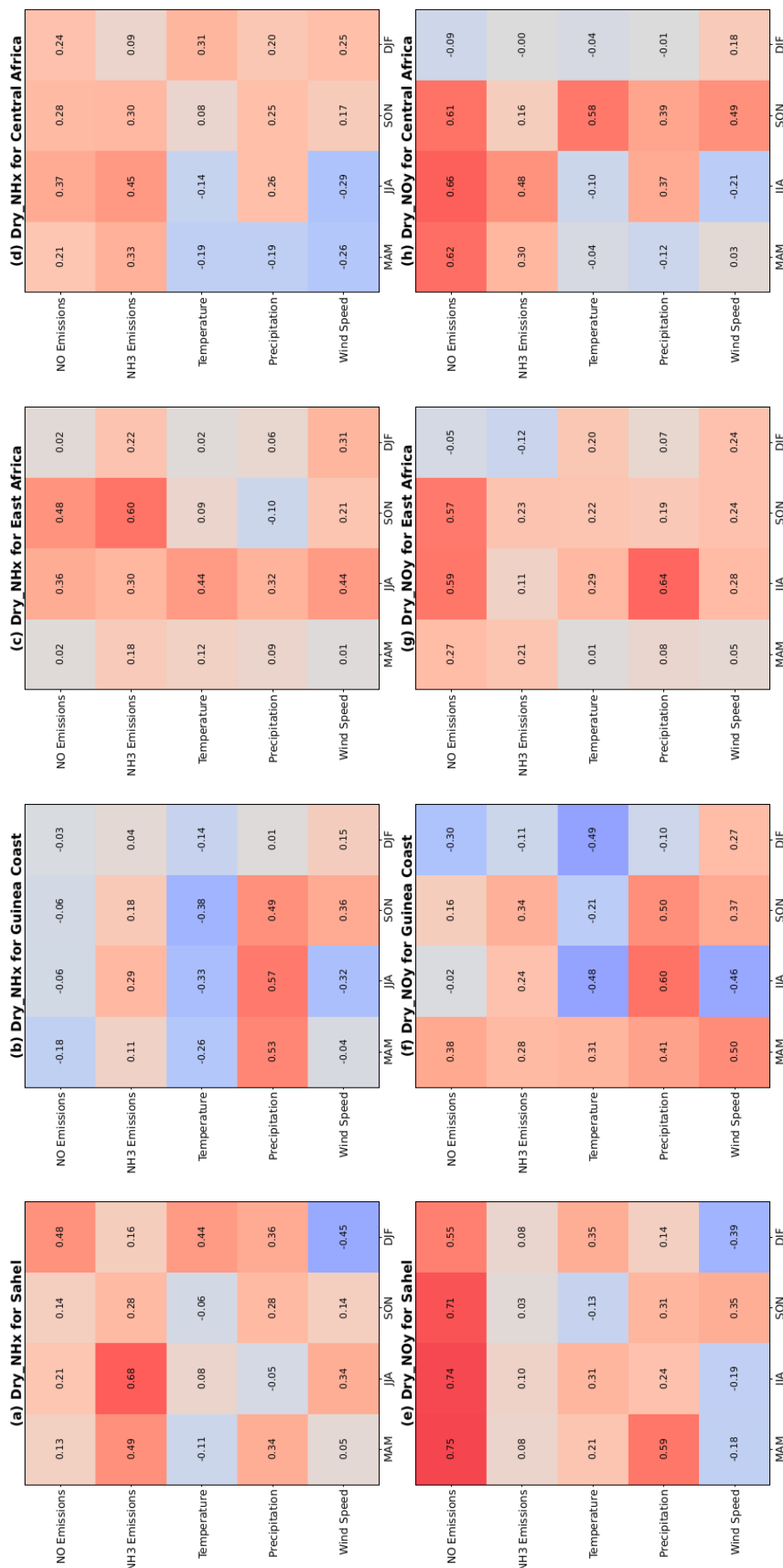


Figure 59 : Correlations entre le dépôt sec et les différents facteurs.

organiques ; d'autre part, le vent pourrait moduler le transport atmosphérique et la turbulence, affectant ainsi la trajectoire et la vitesse de dépôt. Dans ces conditions, le dépôt simulé dans la région pourrait également refléter l'influence d'émissions plus distantes, dont le signal est transmis par des processus de transport à méso-échelle, en lien avec le temps de résidence de NH_3 dans l'atmosphère du sous domaine.

En Afrique de l'Est, les émissions de NH_3 représentent la principale source de variabilité du dépôt sec de NH_x (notamment en DJF : 58,3 % et SON : 63,3 %), mais avec des corrélations modérées (+0,09 et +0,53 respectivement). Ce constat pourrait être expliqué par les raisons soulignées plus haut et pourrait justifier la meilleure corrélation entre dépôts et vent (par exemple +0,54 en JJA). La vitesse du vent joue donc un rôle secondaire significatif avec des contributions en MAM de 29,4 % et de 30,2 % en JJA. Ce résultat renforce l'idée que, même en présence d'émissions relativement stables d'une année à l'autre, le vent peut moduler fortement les flux de dépôt sec par l'intermédiaire des résistances aérodynamique (R_a) et de canopée (R_c).

En Afrique centrale, la variabilité du dépôt sec est essentiellement gouvernée par deux facteurs : les émissions de NH_3 (notamment en MAM) et la vitesse du vent (notamment en DJF), avec des contributions dépassant 50 %. Le rôle dominant du vent dans cette région pourrait être lié à l'importance des forêts denses, qui modifient fortement les résistances de surface et les conditions de dépôt.

Dans l'ensemble, les émissions de NH_3 apparaissent comme le principal facteur contrôlant la variabilité interannuelle du dépôt sec de NH_x sur le domaine, en particulier dans les zones de forte activité agricole comme la Côte guinéenne et l'Afrique de l'Est, où leur contribution dépasse 50 % pendant les saisons clés. Toutefois, les facteurs météorologiques, notamment la vitesse du vent et les précipitations, modulent cette variabilité de façon saisonnière et régionale, à travers leur influence sur les processus de transport, de dispersion et de dépôt. Ces résultats confirment que la dynamique du dépôt sec ne peut être comprise sans prendre en compte l'interaction entre sources locales d'émission, transport à méso-échelle et conditions de surface. Ils soulignent également l'importance stratégique de réduire les émissions de NH_3 , que ce soit via une meilleure gestion des apports azotés agricoles ou par des mesures ciblant les émissions d'origine biogénique, afin de limiter la variabilité interannuelle des dépôts et leurs effets sur les écosystèmes tropicaux sensibles.

Les résultats présentés dans la figure 57e-h montrent que la variabilité interannuelle du dépôt sec d'azote oxydé (NO_y) est majoritairement contrôlée par les émissions de NO , en interaction

avec des facteurs climatiques tels que la température et la vitesse du vent. La répartition des contributions varie selon les régions et les saisons, reflétant à la fois les régimes d'émissions (biogéniques, combustion de biomasse ou anthropiques), les conditions météorologiques et les processus de transport.

Au Sahel, les émissions de NO dominant en saison MAM, avec une contribution atteignant 46,1 % et une corrélation forte ($R = +0,80$), en cohérence avec le rôle prépondérant des émissions de type feu à cette période. En revanche, en saison humide (JJA), l'absence de feux de végétation rend les facteurs climatiques plus influents : la température (33,6 %), les précipitations (25,03 %) et le vent (25,02 %) expliquent ensemble l'essentiel de la variabilité. Ces facteurs pourraient agir en contrôlant à la fois la production biogénique de NO (importante durant cette période au Sahel) et le transport atmosphérique vers les zones de dépôt. En SON et DJF, les contributions sont plus équilibrées entre émissions et climat, suggérant des mécanismes combinés.

Sur la côte guinéenne, la variabilité du dépôt sec d'azote oxydé s'explique principalement par la température, les précipitations et les émissions de NO, avec une influence notable des émissions anthropiques dans cette région densément peuplée et urbanisée. La contribution des émissions de NH_3 ou du vent y reste marginale, ce qui reflète la nature locale et anthropique du signal.

En Afrique de l'Est et en Afrique centrale, la température et la vitesse du vent apparaissent comme les principaux déterminants de la variabilité du dépôt de NO_y , avec des contributions dépassant 40 % selon les saisons. Les précipitations et les émissions jouent un rôle plus limité, sauf en MAM en Afrique centrale, où les émissions de NO atteignent 44,7 %. Cette influence climatique, marquée par la température et la circulation, pourrait refléter un transport interrégional des composés azotés oxydés issus des feux de biomasse dans les savanes vers les zones forestières d'Afrique centrale. Durant certaines saisons, les conditions atmosphériques favorables (vents soutenus, stabilité verticale) peuvent augmenter le temps de résidence des masses d'air chargées en NO_y , contribuant ainsi à la variabilité régionale du dépôt.

Globalement, ces résultats mettent en évidence l'importance des interactions entre émissions locales de NO, conditions climatiques et dynamique atmosphérique régionale pour expliquer la variabilité du dépôt sec oxydé. Ils soulignent la nécessité de prendre en compte à la fois la variabilité des émissions et les facteurs météorologiques, en particulier dans les zones où les dépôts sont sensibles au transport à moyenne échelle.

5-2-2- Dépôt humide

Les résultats présentés dans la Figure 60 indiquent que la variabilité interannuelle du dépôt humide est majoritairement contrôlée par la précipitation sur les régions sahélienne et côtière guinéenne, tandis que la température et la vitesse du vent jouent un rôle plus important en Afrique de l'Est et centrale. Les valeurs d'APDM pour les formes humides de NH_x et NO_y sont plus élevées que celles observées pour le dépôt sec (Figure 61), atteignant entre 3,2 % et 38,5 %, ce qui témoigne d'une plus forte variabilité du dépôt humide d'azote.

Au Sahel et sur la côte guinéenne, les précipitations apparaissent comme le principal facteur de variabilité du dépôt humide, avec des contributions supérieures à 55 % en DJF au Sahel, et à 40 % sur la côte guinéenne. Ce résultat est cohérent avec la forte intermittence des précipitations pendant la saison sèche : dans un contexte de faible fréquence des événements pluvieux, chaque épisode de pluie a un impact disproportionné sur les flux de dépôt humide, ce qui amplifie fortement leur variabilité interannuelle.

En Afrique centrale, les contributions sont plus équitablement réparties entre précipitation, température et vent. Cela peut s'expliquer par le fait que les émissions locales y sont relativement faibles : la variabilité du dépôt humide dépend donc largement du transport de composés azotés issus de régions sources (par exemple les savanes à feux). Ce transport est fortement influencé par les mouvements convectifs, la circulation régionale et la structure verticale de l'atmosphère. Ainsi, les facteurs météorologiques modulent à la fois l'apport en humidité (source de précipitation) et le cheminement des masses d'air enrichies en azote.

En Afrique de l'Est, la température et le vent apparaissent comme des facteurs déterminants, avec des contributions atteignant jusqu'à 80 % en DJF pour certaines formes de dépôt. Cette influence traduit l'importance des processus de convection profonde dans cette région marquée par une forte variabilité atmosphérique, ainsi que le rôle du transport vertical dans le lessivage des composés azotés. En DJF notamment, les mouvements ascendants associés à la convection, combinés aux variations de température, conditionnent la formation des précipitations et donc les flux de dépôt.

Quant aux émissions de NH_3 et NO , elles interviennent ponctuellement dans la variabilité du dépôt humide, notamment en SON sur la côte guinéenne où les émissions agricoles contribuent de manière significative au dépôt de NH_x . Toutefois, leur influence reste globalement plus faible que celle des paramètres météorologiques, en particulier en saison sèche, où les dépôts sont davantage gouvernés par la présence (ou l'absence) d'événements pluvieux. Par exemple, la

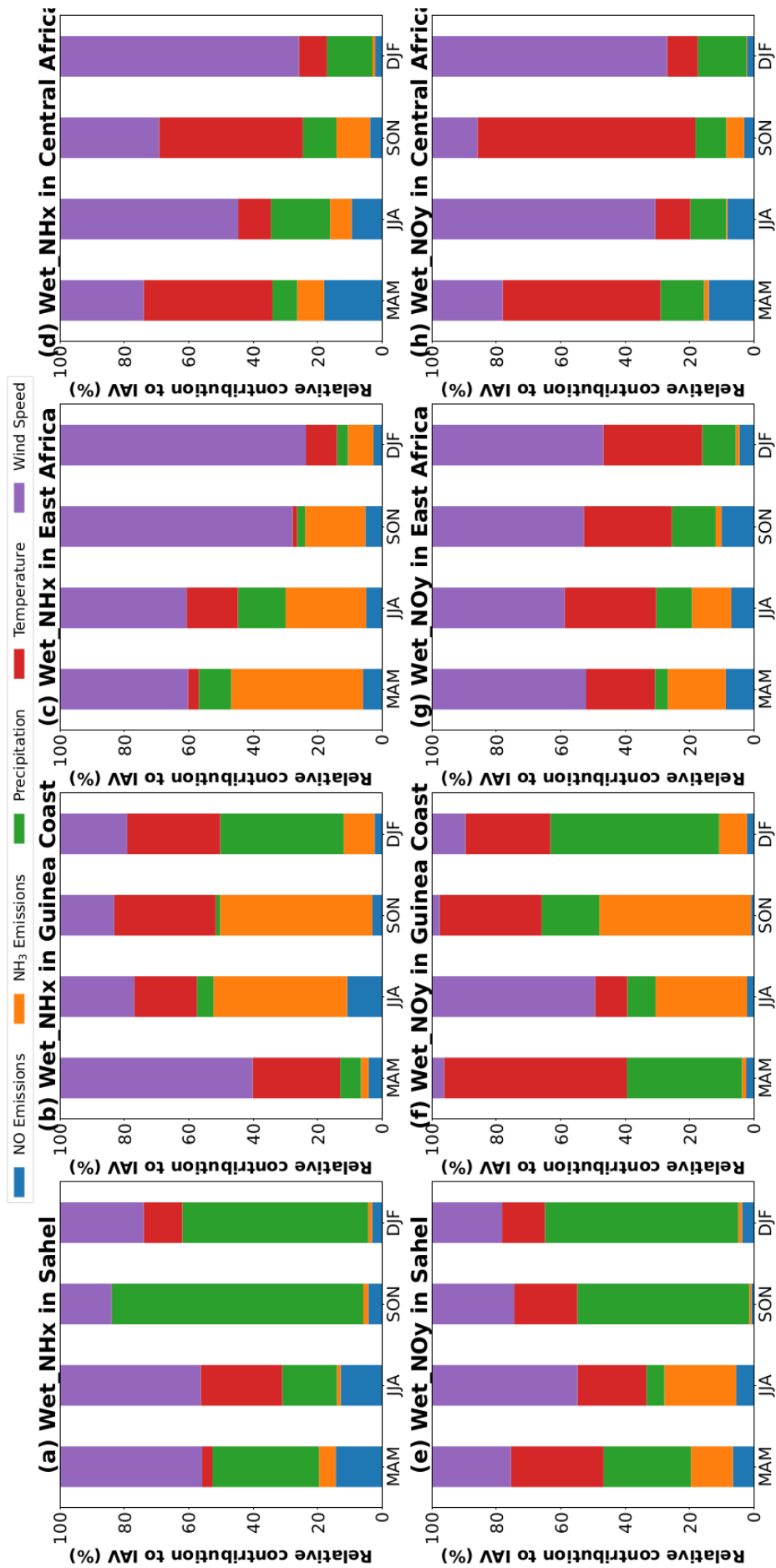


Figure 60 : Contributions régionales des différents facteurs au dépôt humide total sous ses formes réduite et oxydée.

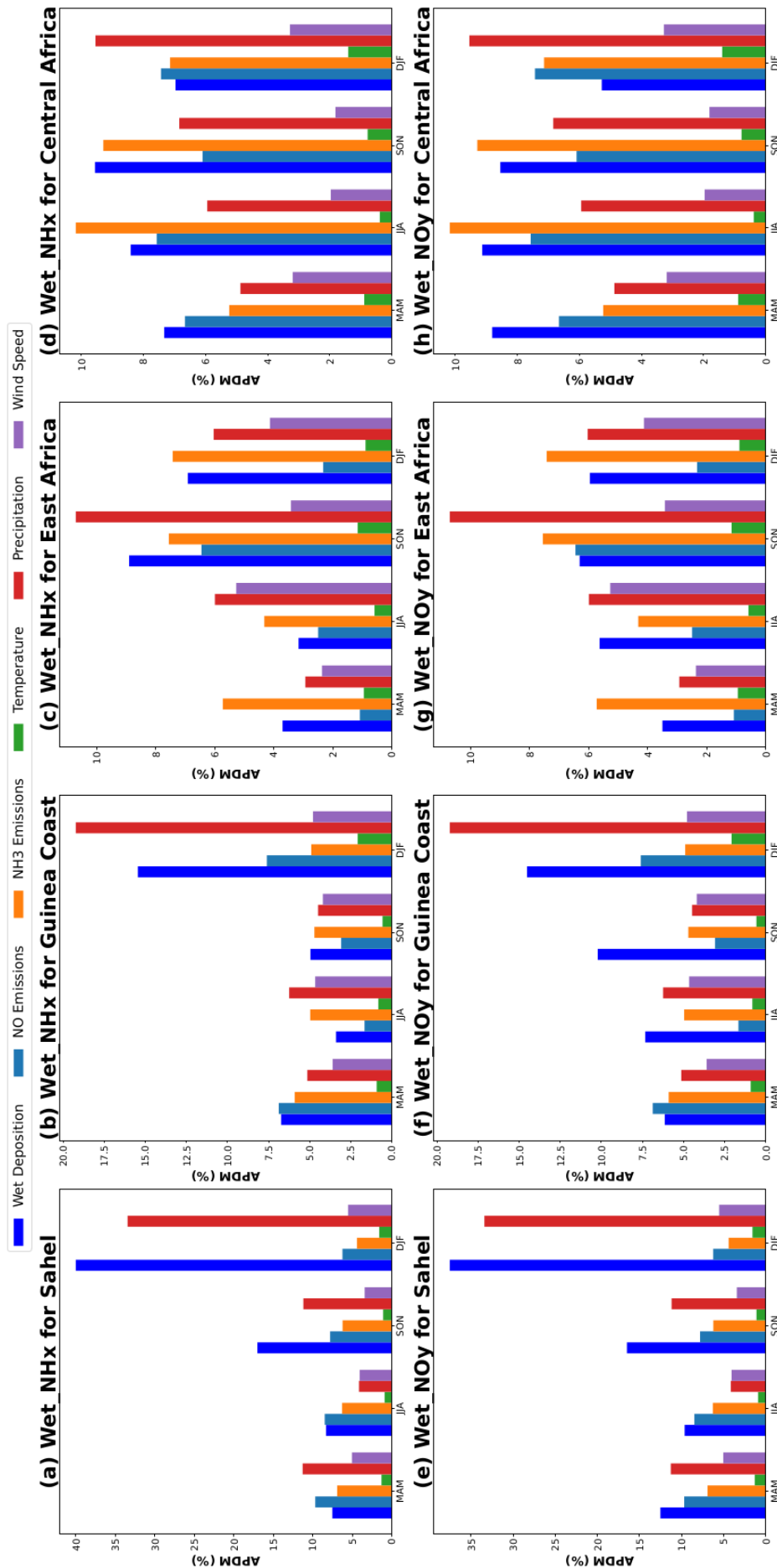


Figure 61 : APDM saisonnier moyen du dépôt humide d'azote réduit (a-d) et oxydé (e-h). Les APDM sont exprimés en % et simulés pour le Sahel, la Côte de Guinée, l'Afrique de l'Est et l'Afrique centrale sur la période 2011-2019.

figure 62 montre que les corrélations avec le dépôt d'azote (pour les deux formes) les plus élevées sont obtenues pour la précipitation au Sahel, sur la Côte de Guinée et en Ariège de l'Est. En résumé, la variabilité du dépôt humide présente une forte dépendance régionale et saisonnière : les précipitations dominent dans les zones de pluies rares ou concentrées (Sahel, DJF), tandis que le transport atmosphérique, la convection et la température deviennent prépondérants dans les régions à forte dynamique verticale (Afrique centrale, Afrique de l'Est). Ces résultats soulignent l'importance de considérer à la fois la disponibilité en eau atmosphérique et la circulation des masses d'air pour comprendre les variations du dépôt humide, en particulier dans les régions tropicales caractérisées par une forte hétérogénéité des régimes climatiques.

Conclusion partielle

Ce chapitre a permis d'analyser en détail la variabilité interannuelle et les tendances des dépôts d'azote atmosphérique en Afrique intertropicale au cours de la période 2011–2019, en mobilisant à la fois des diagnostics statistiques et une évaluation croisée de l'impact des émissions et des facteurs climatiques. Les résultats révèlent une tendance générale significative à l'augmentation des dépôts totaux de Nr, dominée par la composante réduite, en lien avec la hausse des émissions de NH₃. Cette tendance reste limitée (+5,3 % sur la période) à l'échelle du domaine étudié et fortement hétérogène selon les régions et les saisons. L'analyse de la variabilité interannuelle met en évidence une distinction nette entre les formes de dépôt. La variabilité des dépôts secs est principalement contrôlée par les émissions de NH₃ et de NO, modulée par des paramètres météorologiques comme la vitesse du vent ou la température, surtout dans les régions comme l'Afrique de l'Est et l'Afrique Centrale. À l'inverse, la variabilité du dépôt humide est fortement gouvernée par les précipitations, notamment dans les régions sahéliennes et côtières, tandis que la convection, le transport atmosphérique et la dynamique verticale deviennent prédominants dans les zones plus humides (Afrique centrale, Afrique de l'Est). Ces résultats confirment le rôle des précipitations dans les flux humides, mais soulignent aussi l'importance du couplage entre climat et transport à méso-échelle dans la régulation des dépôts. En intégrant simultanément les contributions des émissions et des facteurs météorologiques, cette approche permet de mieux cerner les leviers d'action pour la gestion de l'azote atmosphérique. Le contrôle des émissions de NH₃, en particulier, apparaît comme une priorité dans les zones agricoles du continent, où leur contribution à la variabilité du dépôt est systématiquement dominante. Toutefois, les conditions climatiques jouent un rôle modulateur essentiel, qui devra être pris en compte dans les stratégies d'atténuation à venir, notamment dans un contexte de changement climatique.

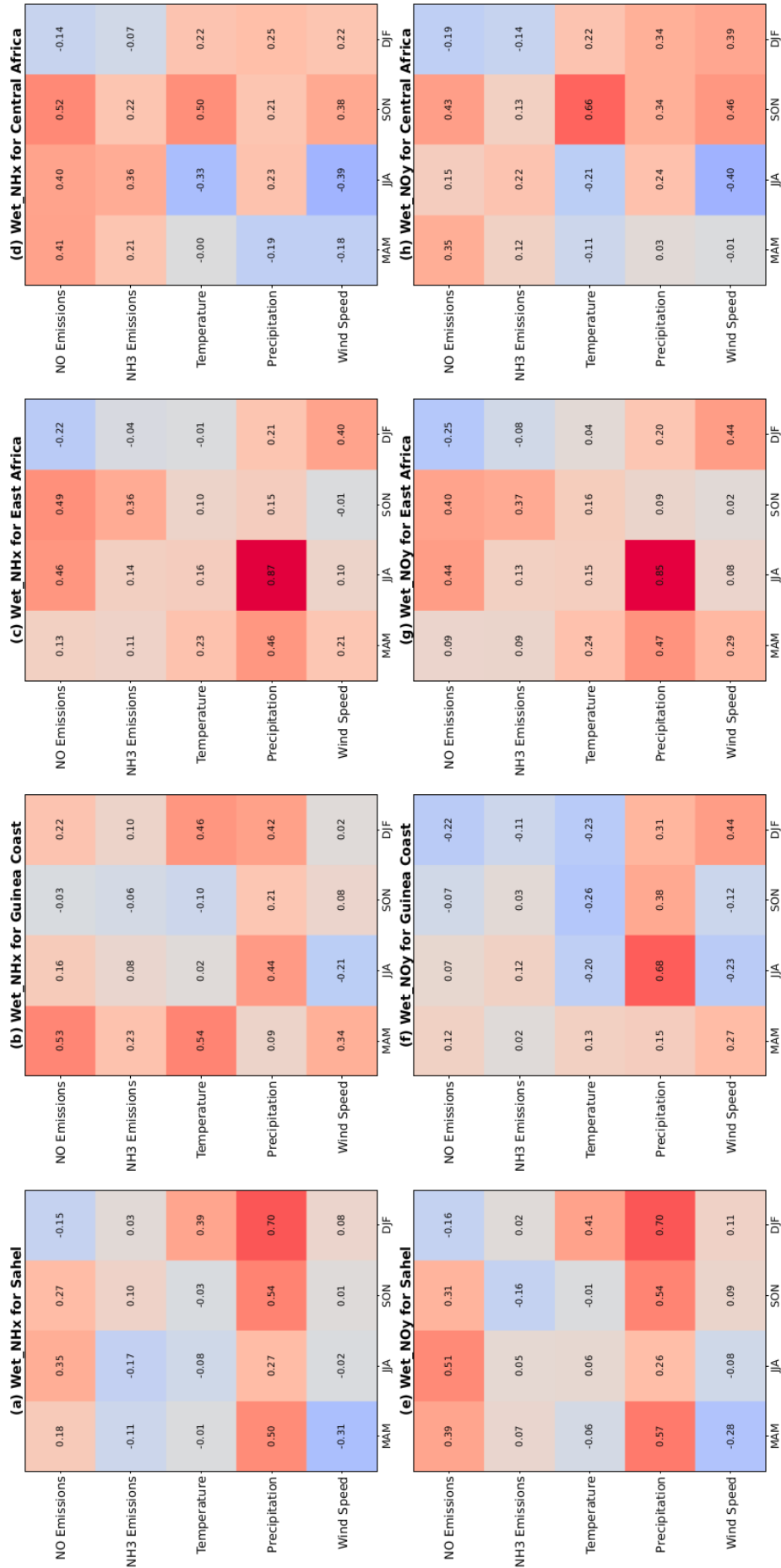


Figure 62 : Corrélations entre le dépôt humide et les différents facteurs.

CONCLUSION

L'Afrique est particulièrement vulnérable aux perturbations du cycle de l'azote, qui joue un rôle crucial dans la fertilité des sols, la qualité de l'air et la santé des écosystèmes. Ce cycle est fortement influencé par des facteurs anthropiques tels que les émissions de gaz à effet de serre, les activités agricoles et les incendies de biomasse, mais aussi par les conditions climatiques, qui modulent la dynamique des dépôts atmosphériques d'azote. Cependant, le manque d'observations directes et de données détaillées sur ces processus à l'échelle régionale et locale rend difficile la compréhension des mécanismes sous-jacents et leur impact sur l'environnement. Dans ce contexte, l'utilisation de modèles climatiques régionaux, tels que le modèle RegCM5, devient essentielle pour combler ces lacunes en fournissant des simulations qui intègrent les interactions entre les émissions, la chimie atmosphérique et le climat. C'est dans ce cadre que cette thèse explore l'impact des émissions de BioNO sur la chimie atmosphérique régionale et la variabilité des dépôts d'azote en Afrique intertropicale, en utilisant le modèle climatique régional RegCM5. L'étude se concentre sur les émissions, la distribution spatio-temporelle des dépôts et les facteurs climatiques influençant ces processus, avec une attention particulière portée à la variabilité interannuelle et aux tendances des dépôts d'azote au cours de la période 2011–2019. La première étude (Chapitre 3) s'inscrit dans le cadre plus large des programmes en cours visant à étudier le cycle régional de l'azote en Afrique. Elle évalue la performance du module de chimie atmosphérique couplé au modèle climatique régional RegCM5, qui a été considérablement mis à jour par rapport aux versions précédentes. Nous avons également mené dans le cadre de ce travail, une étude spécifique sur l'impact des émissions de BioNO sur la chimie régionale en Afrique intertropicale. Cette étude comparative consiste à simuler un modèle couplé climat-chimie, avec et sans les émissions de BioNO. Le modèle est paramétré à l'aide d'une méthode originale basée sur des réseaux de neurones artificiels (ANN) et les simulations ont été réalisées sur une période de trois ans. La performance du modèle a été évaluée en comparant les sorties de simulation à diverses données, y compris les observations satellitaires pour le climat, les observations au sol, les réanalyses, et les sorties d'autres modèles de référence pour les principaux composés atmosphériques. Les résultats obtenus montrent que RegCM5 est capable de capturer les principales caractéristiques du climat régional sur le domaine étudié, telles que la température saisonnière et quotidienne, les précipitations et la circulation des vents, qui sont pertinentes pour la chimie atmosphérique et les processus d'émission. Les valeurs simulées pour NO_2 , HNO_3 et O_3 montrent une cohérence avec les réanalyses CAMS et les simulations GEOS-Chem en termes de distribution spatio-temporelle et de gradients. Les comparaisons

locales avec les concentrations de surface mesurées sur les six stations INDAAF indiquent que le modèle couplé chimie-climat peut reproduire le cycle saisonnier de toutes les espèces sur tous les sites. Cependant, ces comparaisons montrent une surestimation systématique de O_3 simulé et, dans une moindre mesure, une sous-estimation de NO_2 et HNO_3 , en particulier en saison humide sur les stations de savane sèche. Ces grands biais sont présents non seulement dans les simulations de RegCM5 mais aussi dans les réanalyses CAMS et les sorties de GEOS-Chem. Dans la simulation de base, les biais de O_3 varient de -2,64 à 34,2 ppb (savannes sèches), de -2,63 à 28,72 ppb (savannes humides) et de 1,96 à 23,05 ppb (forêts), tandis que pour NO_2 , nous avons obtenu des biais allant de -4,97 à -0,41 ppb (savannes sèches), de -0,84 à 1,59 ppb (savannes humides), de -1,64 à 1,14 ppb (forêts), et pour HNO_3 , les biais allaient de -1,73 à 0,02 ppb (savannes sèches), de -0,8 à 0,26 ppb (savannes humides) et de -0,54 à 0,05 ppb (forêts). Ces différences sont attribuées aux lacunes dans les émissions chimiques, aux incertitudes liées à la vitesse de dépôt sec, à la dynamique de la couche limite et au transport depuis la couche supérieure, qui sont particulièrement difficiles à reproduire dans les régions tropicales. Il est bien connu que les modèles régionaux ont souvent des difficultés à capturer avec précision les émissions et les processus à l'échelle locale en raison de la résolution trop grossière (30 km x 30 km dans ce cas), ce qui peut entraîner des divergences lorsqu'on compare avec des mesures ponctuelles. Néanmoins, malgré les possibilités d'amélioration, nos travaux indiquent, pour ce qui concerne la chimie des photo-oxydants régionaux, que la performance de RegCM5 est cohérente avec celle des réanalyses chimiques de référence et des modèles de transport chimique de dernière génération. Lorsque nous intégrons les émissions de BioNO, nous estimons que les flux moyens saisonniers de BioNO varient de 0,02 à 7 $mg.m^{-2}jour^{-1}$, et que la quantité totale de BioNO émise varie entre 0,01 et 4,4 $TgN.mois^{-1}$ sur le domaine. La distribution régionale des émissions de BioNO est déterminée principalement à partir des prédicteurs environnementaux utilisés dans la paramétrisation basée sur l'ANN, avec une grande importance donnée à la variabilité de l'humidité du sol. L'intégration des émissions de BioNO entraîne une augmentation des niveaux de concentration de NO_2 (allant de 0,05 à 4 ppb) et de HNO_3 (de 0,05 à 0,3 ppb). Une diminution de l'ozone de surface (jusqu'à 2 ppb, spécifiquement dans le Sahel) est également obtenue, probablement à cause des effets de titration du NO dans la couche de surface. Parallèlement, les concentrations d'ozone montrent une relative augmentation en altitude, en aval des sources de BioNO, et à l'échelle régionale (jusqu'à 4 ppb). En comparant la performance du modèle avec les observations des stations INDAAF, l'inclusion des émissions de BioNO

améliore la représentation des cycles saisonniers de O_3 , NO_2 et HNO_3 ainsi que les valeurs de concentration, et réduit les biais dans certains cas. Toutefois, dans certaines conditions, cela peut aussi entraîner une augmentation des biais, soulignant les interactions complexes entre différentes régions et écosystèmes. Globalement, cette première étude met en évidence l'intérêt d'inclure des représentations interactives des émissions de BioNO, en particulier dans les savanes sèches du Sahel du nord, où le cycle de l'azote atmosphérique et le dépôt d'azote sont particulièrement importants pour ces écosystèmes dont la teneur en azote est faible et sensible à de petites variations des taux de dépôt. Cette étude a également souligné une limitation de l'approche basée sur ANN en ce sens qu'elle ne prend pas en compte les limitations du stock d'azote prêt à être émis, ce qui pourrait être un facteur important dans les écosystèmes secs et non fertilisés. Un examen plus approfondi de ces limitations est prévu, par exemple en utilisant des contraintes provenant de modules explicites sur l'azote du sol.

La deuxième étude (Chapitre 4) a permis d'estimer la répartition spatio-temporelle et la validation des dépôts de Nr simulés avec le modèle RegCM5 sur la période 2011–2019. L'analyse s'est appuyée sur les flux simulés d'émissions de NO_x et de NH_3 , les concentrations atmosphériques comparées aux mesures INDAAF, et les dépôts évalués à différentes échelles (régionale et locale). Les résultats montrent une nette dominance des émissions de NO_x en Afrique centrale (liées aux feux de biomasse) et en Afrique de l'Est (biogéniques), ainsi que des émissions de NH_3 sur la côte guinéenne et en Afrique de l'Est (agriculture intensive). Ces émissions influencent fortement les concentrations simulées, bien que des biais persistent, notamment une surestimation marquée du NO_2 et une sous-estimation généralisée du NH_3 , en particulier en zone forestière. Cette sous-estimation s'explique par des incertitudes dans les inventaires d'émissions de NH_3 représentés dans le modèle. L'estimation des dépôts révèle que les formes oxydées (NO_y) sont majoritairement éliminées par dépôt humide, tandis que les formes réduites (NH_x) le sont principalement par dépôt sec, en particulier sous forme gazeuse (NH_3). Les dépôts secs sont les plus importants en MAM pour le NH_x et en DJF-JJA pour le NO_y , reflétant l'influence combinée des émissions, de la température, de la volatilisation et des précipitations. À l'échelle régionale, le dépôt total d'azote est estimé à $2,11 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$, soit $5,6 \text{ TgN an}^{-1}$ pour le domaine d'étude, avec une légère dominance du dépôt sec (51,6 %). Les formes oxydées prédominent dans le bilan global (jusqu'à 78 %), en lien avec les émissions de NO_x , l'efficacité du lessivage du NO_3^- , mais aussi, possiblement, par une sous-estimation des concentrations de NH_3 dans la simulation. À l'échelle locale, les dépôts secs sont majoritaires dans les savanes, tandis que le dépôt humide

devient prépondérant en forêt. Le dépôt de NH_3 constitue la première voie de dépôt sec dans les stations de savanes, tandis que HNO_3 et NO_2 dominent en zone forestière. Concernant le dépôt humide, les concentrations de NO_3^- , pNO_3^- et pNH_4^+ contrôlent la variabilité des flux, avec une influence majeure des précipitations. Les flux annuels simulés sont systématiquement sous-estimés par rapport aux observations, notamment en ce qui concerne les formes réduites. Enfin, l'analyse des contributions relatives, basée sur les simulations, indique une prédominance écrasante des formes inorganiques (98,6 % à 99,9 %) dans le dépôt total d'azote, confirmant que l'azote atmosphérique déposé en Afrique provient essentiellement de sources inorganiques (feux, agriculture, transport). Ces résultats confirment l'utilité des approches multi-échelles pour analyser la dynamique des dépôts, tout en soulignant les limites associées aux incertitudes sur les émissions et les processus de dépôt sec.

La dernière étude (Chapitre 5) explore la variabilité interannuelle et les tendances des dépôts d'azote atmosphérique en Afrique intertropicale sur la période 2011–2019, avec une attention particulière portée aux émissions de NH_3 , NO_x , et aux facteurs climatiques. L'étude a utilisé des diagnostics statistiques approfondis pour analyser les interactions entre les émissions, la chimie atmosphérique et le climat. Les résultats ont montré une tendance générale à l'augmentation des dépôts totaux de Nr , dictée par la composante réduite (NH_x), en lien avec l'augmentation des émissions de NH_3 . Par exemple, le dépôt total annuel d'azote a augmenté de 5,3 % entre 2011 et 2019, passant de $2,03 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ en 2011 à $2,14 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$ en 2019. Cette augmentation des dépôts est principalement due à l'augmentation des dépôts d'azote réduit (NH_x), en lien avec la hausse des émissions de NH_3 . En termes de variabilité interannuelle, les dépôts secs de NH_x montrent une contribution dominante à la variabilité du dépôt sec total, avec des émissions de NH_3 contribuant jusqu'à 74,9 % de la variabilité des dépôts secs pendant la saison des pluies (JJA) sur la côte guinéenne, et 49,04 % en DJF dans les régions sahéliennes. Le vent, en tant que facteur climatique, a aussi une contribution notable, notamment avec 55,7 % en SON pour la zone sahélienne et 28,9 % en JJA. Concernant la variabilité du dépôt humide, les précipitations ont été identifiées comme le facteur principal de la variabilité dans les régions sahéliennes et de la Côte de Guinée, avec une contribution de 55 % en DJF pour le Sahel. En Afrique centrale et en Afrique de l'Est, la convection et la dynamique verticale ont pris un rôle prépondérant dans les régions humides, avec une contribution des facteurs climatiques (température et vent) atteignant 80 % en DJF pour l'Afrique de l'Est. En revanche, les émissions de NH_3 ont contribué de manière modérée à la variabilité du dépôt humide, comme observé en SON sur la côte guinéenne, où les

émissions agricoles ont contribué à 40 % de la variabilité du dépôt humide de NH_x . En termes de distribution spatiale de la variabilité des dépôts, les régions forestières ont montré des MAD (écarts absolus moyens) élevés, dépassant $3 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ an}^{-1}$, notamment en raison de la forte dynamique de la combustion de biomasse. En revanche, les savanes ont montré des MAD plus faibles, reflétant l'impact plus modéré des émissions de NH_3 et des processus de dépôt sec. Les analyses locales ont confirmé une croissance significative des dépôts de NO_y à Banizoumbou, Katibougou et Djougou, avec une augmentation des dépôts de 30–40 % dans les régions à forte activité agricole. En prenant en compte à la fois les contributions des émissions et des facteurs climatiques, cette approche permet de mieux identifier les leviers d'action pour gérer l'azote atmosphérique. La réduction des émissions de NH_3 , en particulier, doit être une priorité dans les zones agricoles du continent, où elles influencent de manière prépondérante la variabilité des dépôts d'azote. Cependant, les conditions climatiques jouent également un rôle modérateur crucial, qu'il conviendra d'intégrer dans les futures stratégies d'atténuation, notamment face aux défis posés par le changement climatique. L'étude des dépôts d'azote atmosphérique et de leur interaction avec les facteurs climatiques est un domaine en pleine évolution au niveau global, qui touche à plusieurs disciplines scientifiques clés, telles que la climatologie, la chimie atmosphérique, l'hydrologie, et la gestion des écosystèmes. Bien que des avancées aient été réalisées, certaines limitations demeurent, notamment en raison du manque d'observations directes sur le terrain dans plusieurs régions cruciales, en particulier en Afrique. Des progrès significatifs sont donc attendus dans les années à venir. Dans ce contexte, plusieurs défis et opportunités de recherche se dessinent :

- Il est primordial d'améliorer la représentation des processus chimiques atmosphériques importants pour les bilans régionaux de l'azote, tels que les émissions de NO_x par les éclairs (LiNO_x - Lighting NO_x) et les processus chimiques hétérogènes pertinents (par exemple, poussière - HNO_3). L'intégration de la bidirectionnalité des émissions de NH_3 et l'amélioration des inventaires de NH_3 , qui souffrent actuellement d'une sous-estimation dans les simulations, est cruciale. Cela pourrait avoir un impact significatif sur les processus de dépôt, tout en maintenant l'efficacité numérique nécessaire pour les simulations à l'échelle climatique.
- Une autre perspective importante consiste à mener des simulations climatiques basées sur des projections climatiques et des scénarios d'émissions issus du CMIP6. Bien que ce travail n'ait pas pu être réalisé en raison des contraintes de temps et de ressources, il est

essentiel pour appréhender les trajectoires possibles des conditions de chimie atmosphérique et du cycle de l'azote en Afrique dans un contexte de changement climatique. Ces simulations seraient cruciales pour évaluer les impacts futurs des émissions de gaz à effet de serre (par exemple) et des changements climatiques sur les dépôts d'azote dans cette région.

- Afin d'évaluer correctement la dépendance des résultats à l'égard du modèle, il serait nécessaire de répéter l'analyse en utilisant différents modèles climatiques régionaux (RCM) dans un cadre multi-modèle, tel que celui du projet CORDEX. Cela permettrait de réduire l'incertitude des résultats en tenant compte des variations dues aux différents paramétrages des modèles, tout en fournissant une analyse plus robuste des processus de dépôt d'azote.
- Enfin, il est crucial d'encourager la recherche interdisciplinaire, en particulier à l'interface entre les disciplines de la climatologie, de l'hydrologie, de la science atmosphérique, de la météorologie, de la physique des sols et de l'écophysiologie. Cette approche interdisciplinaire permettra d'approfondir notre compréhension des interactions complexes entre les émissions de gaz à effet de serre, les cycles de l'azote et les conditions climatiques. De plus, elle favorisera des synergies entre les communautés de recherche en observation (au sol et par télédétection) et en modélisation, ce qui est essentiel pour l'élaboration de stratégies d'atténuation efficaces face aux défis du changement climatique.

Enfin, il est important de souligner que les émissions et les dépôts d'azote jouent un rôle central dans de nombreux enjeux environnementaux, en particulier dans les régions agricoles. Leur gestion efficace, en particulier dans un contexte de changement climatique, pourrait améliorer la gestion des ressources en eau, la fertilité des sols et la qualité de l'air. La meilleure compréhension des processus sous-jacents à ces phénomènes, accompagnée de stratégies de réduction des émissions, pourrait mener à des applications pratiques telles qu'une gestion plus efficace des cycles d'azote, des alertes sur la pollution atmosphérique, et des prévisions agricoles adaptées aux besoins des communautés locales.

REFERENCES

- Adefolalu D.O., Senouci M., Bounoua A. & Boukri A. (1985). Mean state during the onset phase of the west african monsoon in 1979. *Archives for Meteorology, Geophysics and Bioclimatology, Series A*, 33 : 327—343.
- Adon M., Galy-Lacaux C., Yoboué V., Delon C., Lacaux J.P., Castera P., Gardrat E., Pienaar J., Al Ourabi H., Laouali D., Diop B., Sigha-Nkamdjou L., Akpo A., Tathy J.P., Lavenu F. & Mougin E. (2010). Long term measurements of sulfur dioxide, nitrogen dioxide, ammonia, nitric acid and ozone in africa using passive samplers. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10 : 7467–7487.
- Adon M. (2011). Etude des concentrations de gaz atmosphériques et estimation des flux de dépôt sec à l'échelle des principaux écosystèmes africains. Thèse de Doctorat, UFR Sciences des Structures de la Matière et Technologie, Université Paul Sabatier-Toulouse III (Toulouse, France) et Université de Cocody-Abidjan (Abidjan, Côte d'Ivoire), 274p.
- Adon M., Galy-Lacaux C., Delon C., Yoboue V., Solmon F. & Kaptue Tchuenta A. (2013). Dry deposition of nitrogen compounds (NO₂, HNO₃, NH₃), sulfur dioxide and ozone in west and central african ecosystems using the inferential method. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13 : 11351—11374.
- Anthes R.A. (1977). A cumulus parameterization scheme utilizing a one-dimensional cloud model. *Monthly Weather Review*, 105 : 270—290.
- Arakawa A. & Lamb V.R. (1977). Computational design of the basic dynamical process of the UCLA general circulation model. *Methods in Computational Physics : Advances in Research and Applications*, 17 : 173–265.
- Bahino J., Yoboué V., Galy-Lacaux C., Adon M., Akpo A., Keita S., Liousse C., Gardrat E., Chiron C., Ossohou M., Gnamien S. & Djossou J. (2018). A pilot study of gaseous pollutants' measurement (NO₂, SO₂, NH₃, HNO₃ and O₃) in abidjan, côte d'ivoire : contribution to an overview of gaseous pollution in african cities. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18 : 5173–5198.
- Baklanov A., Schlünzen K., Suppan P., Baldasano J., Brunner D., Aksoyoglu S., Carmichael G., Douros J., Flemming J., Forkel R., Galmarini S., Gauss M., Grell G., Hirtl M., Joffre S., Jorba O., Kaas E., Kaasik M., Kallos G., Kong X., Korsholm U., Kurganskiy A., Kushta J., Lohmann U., Mahura A., Manders-Groot A., Maurizi A., Moussiopoulos N., Rao S., Savage N., Seigneur C., Sokhi R., Solazzo E., Solomos S., Sørensen B., Tsegas G., Vignati

- E., Vogel B. & Zhang Y. (2014). Online coupled regional meteorology chemistry models in Europe : current status and prospects. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(1) : 317–398.
- Barret B., Williams J.E., Bouarar I., Yang X., Josse B., Law K., Pham M., Le Flochmoën E., Lioussé C., Peuch V.H., Carver G.D., Pyle J.A., Sauvage B., van Velthoven P., Schlager H., Mari C. & Cammas J.-P. (2010). Impact of West African monsoon convective transport and lightning NO_x production upon the upper tropospheric composition : a multi-model study. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(12) :5719–5738.
- Barth M.C., Sillman S., Hudman R., Jacobson M.Z., Kim C.-H., Monod A. & Liang J. (2002). Summary of the cloud chemistry modelling intercomparisons : photochemical box model simulation. *Journal of Geophysical Research*, 108(D7) : SOS 5-1–SOS 3-11.
- Beirle S., Borger C., Jost A. & Wagner T. (2023). Catalog of NO_x point source emissions (version 2). *Earth System Science Data Discussions*, 2023 : 1–37.
- Beucher F., Belamari S. & Beau I. (2010). Météorologie tropicale : des alizés au cyclone. *Ecole nationale de la météorologie*, Toulouse, Paris (France), 863 p.
- Binkley D. & Richter D. (1987). Nutrient cycles and H⁺ budgets of forest ecosystems. *Advances in Ecological Research*, 16 : 1–51.
- Blackadar A.K. (1979). High resolution models of the planetary boundary layer. *Gordon and Breach Science*, 1 : 50–85.
- Bonan G.B. (2008). Forests and climate change : forcings, feedbacks, and the climate benefits of forests. *Sciences*, 320 : 1444–1449.
- Bouwman A.F., Lee D.S., Asman W.A.H., Dentener F.J., Van Der Hoek K.W. & Olivier J.G.J. (1997). A global high-resolution emission inventory for ammonia. *Global Biogeochemical Cycles*, 11 : 561–587.
- Bouwman A.F., Boumans L.J.M. & Batjes N.H. (2002). Modeling global annual NO and NO emissions from fertilized fields. *Global Biogeochemical Cycles*, 16 : 28-1–28-9.
- Brasseur G.P., Hauglustaine D.A., Walters S., Rasch P.J., Müller J.-F., Granier C. & Tie X.X. (1998). MOZART, a global chemical transport model for ozone and related chemical tracers : 1. Model description. *Journal of Geophysical Research*, 103 : 28265–28289.
- Bretherton C.S., McCaa J.R. & Grenier H. (2004a). A new parameterization for shallow cumulus convection and its application to marine subtropical cloud-topped boundary layers. Part

- I : Description and 1D results. *Monthly Weather Review*, 132(4) : 864–882.
- Bretherton C.S., McCaa J.R. & Grenier H. (2004b). A new parameterization for shallow cumulus convection and its application to marine subtropical cloud-topped boundary layers. Part I : Description and 1D results. *Monthly Weather Review*, 132(4) : 864–882.
- Briegleb B.P. (1992). Delta-Eddington approximation for solar radiation in the NCAR community climate model. *Journal of Geophysical Research*, 97 : 7603–7612.
- Bucchignani E., Mercogliano P., Panitz H.-J. & Montesarchio M. (2018). Climate change projections for the Middle East–North Africa domain with COSMO-CLM at different spatial resolutions. *Advances in Climate Change Research*, 9(1) : 66–80.
- Butterbach-Bahl K., Kock M., Willibald G., Hewett B., Buhagiar S., Papen H. & Kiese R. (2004). Temporal variations of fluxes of NO, NO₂, N₂O, CO₂, and CH₄ in a tropical rain forest ecosystem. *Global Biogeochemical Cycles*, 18(3) : GB3012.
- Buzzi A., Davolio S., Malguzzi P., Drofa O. & Mastrangelo D. (2014). Heavy rain episodes over Liguria in autumn 2011 : Numerical forecasting experiments. *Natural Hazards and Earth System Sciences*, 14(5) : 1325–1340.
- Cao L., Li S. & Sun L. (2021). Study of different Carbon Bond 6 (CB6) mechanisms by using a concentration sensitivity analysis. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(16) : 12687–12701.
- Carmichael G.R., Ferm M., Thongboonchoo N., Woo J.-H., Chan L.Y., Murano K., Viet P.H., Mossberg C., Bala R., Boonjawat J., Upatum P., Mohan M., Adhikary S.P., Shrestha A.B., Pienaar J.J., Brunke E.B., Chen T., Jie T., Guoan D., Peng L.C., Dhiharto S., Harjanto H., Jose A.M., Kimani W., Kirouane A., Lacaux J.-P., Richard S., Barturen O., Cerda J.C., Athayde A., Tavares T., Cotrina J.S. & Bilici E. (2003). Measurements of sulfur dioxide, ozone and ammonia concentrations in Asia, Africa, and South America using passive samplers. *Atmospheric Environment*, 37 : 1293–1308.
- Chai T. & Draxler R.R. (2014). Root mean square error (RMSE) or mean absolute error (MAE) ? Arguments against avoiding RMSE in the literature. *Geoscientific Model Development*, 7 : 1247–1250.
- Chaillou S. & Lamaze T. (1997). Nutrition ammoniacale des plantes. In : Assimilation de l'Azote chez les Plantes. Aspects Physiologique, Biochimique et Moléculaire. Editions INRA, Paris : 67–83.

- Chauvin F., Roehrig R. & Lafore J.-P. (2010). Intraseasonal variability of the Saharan heat low and its link with midlatitudes. *Journal of Climate*, 23(10) : 2544–2561.
- Ciarlo J., Aquilina N., Strada S., Shalaby A. & Solmon F. (2021). A modified gas-phase scheme for advanced regional climate modelling with RegCM4. *Climate Dynamics*, 57 : 489–502.
- Clough S.A., Kneizys F.X. & Davies R.W. (1989). Line shape and the water vapor continuum. *Atmospheric Research*, 23(3) : 229–241.
- Clough S.A., Iacono M.J. & Moncet J. (1992). Line-by-line calculations of atmospheric fluxes and cooling rates : Application to water vapor. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 97(D14) : 15761–15785.
- Clough S.A. & Iacono M.J. (1995). Line-by-line calculation of atmospheric fluxes and cooling rates : 2. Application to carbon dioxide, ozone, methane, nitrous oxide and the halocarbons. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 100(D8) : 16519–16535.
- Collins W.D., Bitz C.M., Blackmon M.L., Bonan G.B., Bretherton C.S., Carton J.A., Chang P., Doney S.C., Hack J.J., Henderson T.B., Kiehl J.T., Large W.G., McKenna D.S., Santer B.D. & Smith R.D. (2006). The Community Climate System Model Version 3 (CCSM3). *Journal of Climate*, 19 :2122–2143.
- Cooper M.J., Martin R.V., Hammer M.S., Levelt P.F., Veefkind P., Lamsal L.N., Krotkov N.A., Brook J.R. & McLinden C.A. (2022). Global fine-scale changes in ambient NO₂ during COVID-19 lockdowns. *Nature*, 601(7893) : 380–387.
- Coppola E., Sobolowski S., Pichelli E., Raffaele F., Ahrens B., Anders I., Ban N., Bastin S., Belda M., Belusic D., Caldas-Alvarez A., Cardoso R.M., Davolio S., Dobler A., Fernandez J., Fita L., Fumiere Q., Giorgi F., Goergen K., Güttler I., Halenka T., Heinzeller D., Hodnebrog Ø., Jacob D., Kartsios S., Katragkou E., Kendon E., Khodayar S., Kunstmann H., Knist S., Lavín-Gullón A., Lind P., Lorenz T., Maraun D., Marelle L., van Meijgaard E., Milovac J., Myhre G., Panitz H.-J., Piazza M., Raffa M., Raub T., Rockel B., Schär C., Sieck K., Soares P.M.M., Somot S., Srnc L., Stocchi P., Tölle M.H., Truhetz H., Vautard R., de Vries H. & Warrach-Sagi K. (2020). A first-of-its-kind multi-model convection permitting ensemble for investigating convective phenomena over Europe and the Mediterranean. *Climate Dynamics*, 55 : 3–34.
- Coppola E., Raffaele F., Giorgi F., Giuliani G., Xuejie G., Ciarlo J.M., Sines T.R., Torres-Alavez J.A., Das S., di Sante F., Pichelli E., Glazer R., Müller S.K., Omar S.A., Ashfaq M.,

- Bukovsky M., Im E.-S., Jacob D., Teichmann C., Remedio A., Remke T., Kriegsmann A., Bülow K., Weber T., Buntemeyer L., Sieck K. & Rechid D. (2021). Climate hazard indices projections based on CORDEX-Core, CMIP5 and CMIP6 ensemble. *Climate Dynamics*, 57 : 1293–1383.
- Crutzen P.J. & Andreae M.O. (1990). Biomass burning in the tropics : Impact on atmospheric chemistry and biogeochemical cycles. *Science*, 250 : 1669–1678.
- Dajuma A., Ogunjobi K.O., Vogel H., Knippertz P., Silué S., N’Datchoh E.T., Yoboué V. & Vogel B. (2020). Downward cloud venting of the Central African biomass burning plume during the West Africa summer monsoon. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 20 : 5373–5390.
- Danielson J.J. & Gesch D.B. (2011). Global Multi-resolution Terrain Elevation Data 2010 (GMTED2010). Study report – U.S. Geological Survey, 23 p.
- Davidson E.A. & Kinglerlee W. (1997). A global inventory of nitric oxide emissions from soils. *Nutrient cycling in agroecosystems*, 48 : 37–50.
- Davin E.L. (2014). Introduction to the community land model. Study report - Helmholtz-Zentrum Hereon, 85p. https://www.hereon.de/imperia/md/assets/clm/neu5_tl13.pdf.
- Davolio S., Silvestro F. & Gastaldo T. (2017). Impact of rain assimilation on high resolution hydrometeorological forecasts over liguria. *Italian Journal of Hydrometeorology*, 18 : 2659–2680.
- Dawson C. & Hilton J. (2011). Fertiliser availability in a resource-limited world : Production and recycling of nitrogen and phosphorus. *Food Policy*, 36 : S14–S22.
- Delmas R.A., Loudjani P., Podaire A. & Menaut J.C. (1991). Biomass burning in Africa : An assessment of annually burned biomass. *Chapman Conference on Global Biomass Burning*, 19-23 March 1990, Williamsburg, USA, pp 126-133.
- Delmas R., Peuch V.-H., Mégie G. & Brasseur G.P. (1995). Emissions anthropiques et naturelles et dépôts. *In : Physique et chimie de l’atmosphère*. Editions Belin, Paris : 213-259.
- Delmas R., Mégie G. & Peuch V.-H. (2005). Physique et chimie de l’atmosphère. Collection Echelles. *Edition Belin*, Paris (France), 639 p.
- Delon C., Serca D., Boissard C., Dupont R., Dutot A., Laville P., De Rosnay P. & Delmas R. (2007). Soil no emissions modelling using artificial neural network. *Tellus B :Chemical and Physical Meteorology*, 59(3) : 502-513.

- Delon C., Reeves C., Stewart D., Serça D., Dupont R., Mari C., Chaboureau J.-P. & Tulet P. (2008). Biogenic nitrogen oxide emissions from soils—impact on NO_x and ozone over west africa during amma (african monsoon multidisciplinary experiment) : modelling study. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(9) : 2351-2363.
- Delon C., Galy-Lacaux C., Boone A., Lioussé C., Serça D., Adon M., Diop B., Akpo A., Lavenu F., Mougín E. & Timouk F. (2010). Atmospheric nitrogen budget in sahelian dry savannas. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(6) : 2691-2708.
- Delon C., Galy-Lacaux C., Adon M., Lioussé C., Serça D., Diop B. & Akpo A. (2012). Nitrogen compounds emission and deposition in west african ecosystems : comparison between wet and dry savanna. *Biogeosciences*, 9 : 385–402.
- Delon C., Mougín E., Serça D., Grippa M., Hiernaux P., Diawara M., Galy-Lacaux C. & and Kergoat L. (2015). Modelling the effect of soil moisture and organic matter degradation on biogenic no emissions from soils in sahel rangeland (mali). *Biogeosciences*, 12(11) : 3253-3272.
- Emanuel K.A. (1994). Atmospheric convection. *Oxford University Press*, New-York (USA), 592p.
- Emmons L.K., Walters S., Hess P.G., Lamarque J.-F., Pfister G.G., Fillmore D., Granier C., Guenther A., Kinnison D., Laepple T., Orlando J., Tie X., Tyndall G., Wiedinmyer C., Baughcum S.L. & Kloster S. (2010). Description and evaluation of the model for ozone and related chemical tracers, version 4 (MOZART-4). *Geoscientific Model Development*, 3(1) : 43-67.
- Erismann J.W., Van Pul A. & Wyers G.P. (1994). Parameterization of surface resistance for the quantification of atmospheric deposition of acidifying pollutants and ozone. *Atmospheric Environment*, 28 : 2595–2607.
- Evan A.T., Flamant C., Lavaysse C., Kocha C. & Saci A. (2015). Water vapor–forced greenhouse warming over the Sahara Desert and the recent recovery from the Sahelian drought. *Journal of Climate*, 28(1) : 108-123.
- Feig G., Mamtimin B. & Meixner F. (2008). Soil biogenic emissions of nitric oxide from a semi-arid savanna in South Africa. *Biogeosciences*, 5(6) : 1723-1738.
- Ferm M., Lindskog A., Svanberg P. & Boström C. (1994). New measurement technique for air pollutants. *Kemisk Tidskrift*, 1 : 30–32.

- Ferm M. & Rodhe H. (1997). Measurements of air concentrations of SO₂, NO₂ and NH₃ at rural and remote sites in Asia. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 27 : 17–29.
- Fischer G., Van Velthuisen H., Sha M. & Nachtergaele F. (2002). Global agro-ecological assessment for agriculture in the 21st century : Methodology and results. Study report - International Institute for Applied Systems Analysis, Laxenburg, Austria, 115p.
- Flechard C.R., Simpson D., Skjøth C.A., Rees R.M., Erisman J.W., Nemitz E., Milford C., Sutton M.A., Hertel O., Hensen A., Fowler D., Fagerli H., Dore A.J., Davidson E.A., Butterbach-Bahl K., Amman C. & Agrawal M. (2011). Dry deposition of reactive nitrogen to European ecosystems : a comparison of inferential models across the NitroEurope network. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11 : 2703–2728.
- Fountoukis C. & Nenes A. (2007). ISORROPIA II : a computationally efficient thermodynamic equilibrium model for K⁺-Ca²⁺-Mg²⁺-NH₄⁺-Na⁺-SO₄²⁻-NO₃⁻-Cl⁻-H₂O aerosols. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7, 4639–4659.
- Galy-Lacaux C. & Modi A. (1998). Precipitation chemistry in the Sahelian savanna of Niger, Africa. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 30 : 319–343.
- Galloway J., Aber J., Erisman J., Seitzinger S., Howarth R., Cowling E. & Cosby B. (2003). The nitrogen cascade. *BioScience*, 53(4) : 341-356.
- Galloway J., Dentener F., Capone D., Boyer E., Howarth R., Seitzinger S., Asner G., Cleveland C., Green P., Holland E., Karl D., Michaels A., Porter J., Townsend A. & Vöösmary C. (2004). Nitrogen cycles : Past, present, and future. *Biogeochemistry*, 70 : 153–226.
- Galy-Lacaux C., Laouali D., Descroix L., Gobron N. & Lioussé C. (2009). Long term precipitation chemistry and wet deposition in a remote dry savanna site in Africa (Niger). *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(5) : 1579-1595.
- Galy-Lacaux C. & Delon C. (2014). Nitrogen emission and deposition budget in West and Central Africa. *Environmental Research Letters*, 9(12) : 125002.
- Gamo M. (1996). Thickness of the dry convection and large-scale subsidence above deserts. *Boundary-Layer Meteorology*, 79 : 265–278.
- Ganzeveld L., Lelieveld J., Dentener F., Krol M., Bouwman A. & Roelofs G.-J. (2002). Global soil-biogenic NO_x emissions and the role of canopy processes. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 107(D16) : ACH 9-1–ACH 9-17.

- Ganzeveld L. & Lelieveld J. (2004). Impact of Amazonian deforestation on atmospheric chemistry. *Geophysical Research Letters*, 31(6) : L06105.
- Gao W., Wesely M.L. & Doskey P.V. (1993). Numerical modeling of the turbulent diffusion and chemistry of NO, O, isoprene, and other reactive trace gases in and above a forest canopy. *Journal of Geophysical Research*, 98 : 18339–18353.
- Gasche R. & Papen H. (1999). A 3-year continuous record of nitrogen trace gas fluxes from untreated and limed soil of a N-saturated spruce and beech forest ecosystem in Germany : 2. NO and NO₂ fluxes. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 104(D15) : 18505-18520.
- Gautier L. (1990). Contact forêt-savane en Côte d'Ivoire centrale : évolution de la surface forestière de la réserve de Lamto (sud de V-Baoulé). *Candoella*, 45 : 627–641.
- Gery M.W., Whitten G.Z., Killus J.P. & Dodge M.C. (1989). A photochemical kinetics mechanism for urban and regional scale computer modeling. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 94(D10) : 12925-12956.
- Giglio L., Randerson J.T. & van der Werf G.R. (2013). Analysis of daily, monthly, and annual burned area using the fourth-generation Global Fire Emissions Database (GFED4). *Journal of Geophysical Research : Biogeosciences*, 118(1) : 317-328.
- Giorgi F. & Chameides W.L. (1985). The rainout parameterization in a photochemical model. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 90(D5) : 7872-7880.
- Giorgi F. & Bates G.T. (1989). The climatological skill of a regional model over complex terrain. *Monthly Weather Review*, 117(11) : 2325-2347.
- Giorgi F. (1990). Simulation of regional climate using a limited area model nested in a general circulation model. *Journal of Climate*, 3(9) : 941-963.
- Giorgi F., Bates G.T. & Nieman S. (1993a). The multi-year surface climatology of a regional atmospheric model over the western United States. *Journal of Climate*, 6(1) : 75-95.
- Giorgi F., Marinucci M.R. & Bates G.T. (1993b). Development of a second generation regional climate model (RegCM2). Part I : Boundary layer and radiative transfer processes. *Monthly Weather Review*, 121(10) : 2794-2813.
- Giorgi F., Brodeur C.S. & Bates G.T. (1994). Regional climate change scenarios over the United States produced with a nested regional climate model. *Journal of Climate*, 7(3) : 375-399.

- Giorgi F. & Mearns L.O. (1999). Introduction to spectral section : regional climate modeling revisited. *Journal of Geophysical Research*, 104 : 6335–6352.
- Giorgi F., Bi X. & Qian Y. (2002). Direct radiative forcing and regional climatic effects of anthropogenic aerosols over East Asia : a regional coupled climate/chemistry-aerosol model study. *Journal of Geophysical Research*, 107(D20) : AAC 7-1–AAC7-18.
- Giorgi F., Pal J.S., Bi X., Sloan L., Elguindi N. & Solmon F. (2006). Introduction to the TAC special issue : The RegCNET network. *Theoretical and Applied Climatology*, 86(1) : 1-4.
- Giorgi F., Coppola E., Solmon F., Mariotti L., Sylla M.B., Bi X., Elguindi N., Diro G.T., Nair V., Giuliani G., Turuncoglu U.U., Cozzini S., Güttler I., O'Brien T.A., Tawfik A.B., Shalaby A., Zakey A.S., Steiner A.L., Stordal F., Sloan L.C. & Brankovic C. (2012). RegCM4 : Model description and preliminary tests over multiple CORDEX domains. *Climate Research*, 52 : 31–48.
- Giorgi F., Coppola E., Giuliani G., Ciarlo J.M., Pichelli E., Nogherotto R., Raffaele F., Malguzzi P., Davolio S., Stocchi P. & Drofa O. (2023). The fifth generation regional climate modeling system, RegCM5 : Description and illustrative examples at parameterized convection and convection-permitting resolutions. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 128(6) : e2022JD038199.
- Goosse H., Barriat P.-Y., Loutre M.-F. & Zunz V. (2010). Introduction to climate dynamics and climate modeling. *Centre de recherche sur la Terre et le climat Georges Lemaître, UCLouvain, Louvain-la-Neuve (Belgique)*, 168p.
- Granier C., Darras S., Denier van Der Gon H., Jana D., Elguindi N., Bo G., Michael G., Marc G., Jalkanen J.-P., Kuenen J., Liousse C., Quack B., Simpson D. & Sindelarova K. (2019). The Copernicus Atmosphere Monitoring Service global and regional emissions (April 2019 version). Study report - Copernicus Atmosphere Monitoring Service, 53p.
- Graw V., Oldenburg C. & Dubovyk O. (2016). Bush Encroachment Mapping for Africa : Multi-scale analysis with remote sensing and GIS. Discussion report - ZEF, Center for Development Research, Bonn (Germany), 45 p.
- Grell G. (1993). Prognostic evaluation of assumptions used by cumulus parameterizations. *Monthly Weather Review*, 121 : 764–787.
- Grenier H. & Bretherton C.S. (2001). A moist PBL parameterization for large scale models and its application to subtropical cloud-topped marine boundary layers. *Monthly Weather*

- Review*, 129 : 357–371.
- Grindlay D. (1997). Towards an explanation of crop nitrogen demand based on the optimization of leaf nitrogen per unit leaf area. *The Journal of Agricultural Science*, 128(4) : 377-396.
- Guenther A., Karl T., Harley P., Wiedinmyer C., Palmer P.I. & Geron C. (2006). Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature). *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(11) : 3181-3210.
- Halder S., Dirmeyer P. & Saha K. (2015). Sensitivity of the mean and variability of Indian summer monsoon to land surface schemes in RegCM4 : Understanding coupled land-atmosphere feedbacks. *Journal of Geophysical Research*, 120 : 9437–9458.
- Harris I., Osborn T.J., Jones P. & Lister D. (2020). Version 4 of the CRU TS monthly high-resolution gridded multivariate climate dataset. *Scientific Data*, 7(1) : 109.
- Hersbach H., Bell B., Berrisford P., Hirahara S., Horányi A., Muñoz-Sabater J., Nicolas J., Peubey C., Radu R., Schepers D., Simmons A., Soci C., Abdalla S., Abellan X., Balsamo G., Bechtold P., Biavati G., Bidlot J., Bonavita M., De Chiara G., Dahlgren P., Dee D., Diamantakis M., Dragani R., Flemming J., Forbes R., Fuentes M., Geer A., Haimberger L., Healy S., Hogan R.J., Hólm E., Janisková M., Keeley S., Laloyaux P., Lopez P., Lupu C., Radnoti G., de Rosnay P., Rozum I., Vamborg F., Villaume S. & Thépaut J.-N. (2020). The ERA5 global reanalysis. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 146(730) : 1999-2049.
- Hertel O., Ambelas Skjøth C., Løfstrøm P., Geels C., Frohn L., Ellermann T. & Madsen P. (2006). Modelling nitrogen deposition on a local scale — a review of the current state of the art. *Environmental Chemistry*, 3(5) : 317-337.
- Hickman J.E., Dammers E., Galy-Lacaux C. & Van der Werf G.R. (2018). Satellite evidence of substantial rain-induced soil emissions of ammonia across the Sahel. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(22) : 16713-16727.
- Hickman J.E., Andela N., Dammers E., Clarisse L., Coheur P.-F., Van Damme M., Di Vittorio C.A., Ossouhou M., Galy-Lacaux C., Tsigaridis K. & Bauer S.E. (2021). Changes in biomass burning, wetland extent, or agriculture drive atmospheric NH₃ trends in select African regions. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21 : 16277–16291.
- Holtslag A., De Bruijn E. & Pan H.L. (1990). A high resolution air mass transformation model for short-range weather forecasting. *Monthly Weather Review*, 118 : 1561–1575.

- Horowitz L.W., Walters S., Mauzerall D.L., Emmons L.K., Rasch P.J., Granier C., Tie X., Lamarque J.-F., Schultz M.G., Tyndall G.S., Orlando J.J. & Brasseur G.P. (2003). A global simulation of tropospheric ozone and related tracers : Description and evaluation of MOZART, version 2. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 108(D24) : 4797.
- Hostetler S.W., Giorgi F., Bates G.T. & Bartlein P.J. (1994). The role of lake-atmosphere feedbacks in sustaining paleolakes Bonneville and Lahontan 18,000 years ago. *Science*, 263(5147) : 665-668.
- Hourdin F., Musat I., Guichard F., Ruti P.M., Favot F., Filiberti M.-A., Pham M., Grandpeix J.-Y., Polcher J., Marquet P., Boone A., Lafore J.-P., Redelsperger J.-L., Dell'aquila A., Doval T.L., Traore A.K. & Gallée H. (2010). AMMA-model intercomparison project. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 91(1) : 95-104.
- Hu Y.X. & Stamnes K. (1993). An accurate parameterization of the radiative properties of water clouds suitable for use in climate models. *Journal of Climate*, 6 : 728–742.
- Huang T., Yang H., Huang C. & Ju X. (2017). Effect of fertilizer N rates and straw management on yield-scaled nitrous oxide emissions in a maize-wheat double cropping system. *Field Crops Research*, 204 : 1–11.
- Hubbard M.E.N.N. (2003). A three-dimensional, adaptive, Godunov-type model for global atmospheric flows. *Monthly Weather Review*, 8 : 324–338.
- Hudman R., Moore N., Mebust A., Martin R., Russell A., Valin L. & Cohen R. (2012). Steps towards a mechanistic model of global soil nitric oxide emissions : Implementation and space-based constraints. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(16) : 7779-7795.
- Huebert B.J. & Robert C.H. (1985). The dry deposition of nitric acid to grass. *Journal of Geophysical Research*, 90 : 2085–2090.
- Huffman G.J., Bolvin D.T., Nelkin E.J., Wolff D.B., Adler R.F., Gu G., Hong Y., Bowman K.P. & Stocker E.F. (2007). The TRMM multisatellite precipitation analysis (TMPA) : Quasi-global, multiyear, combined-sensor precipitation estimates at fine scales. *Journal of Hydrometeorology*, 8(1) : 38-55.
- Hénault C., Devis X., Lucas J.L. & Germon J.C. (1998). Influence of different agricultural practices (type of crop, form of N-fertilizer) on soil nitrous oxide emissions. *Biology and Fertility of Soils*, 27 : 299–306.

- Jacob D.J., Heikes B.G., Fan S.-M. & Logan J. (1996). Origin of ozone and NO_x in the tropical troposphere : A photochemical analysis of aircraft observations over South Atlantic Basin. *Journal of Geophysical Research*, 101(D19) : 16421–16431.
- Jacob D.J. (1999). Introduction to Atmospheric Chemistr. *Princeton University Press*, Princeton, NJ (USA), 280p.
- Jaeglé L., Steinberger L., Martin R.V. & Chance K. (2005). Global partitioning of NO_x sources using satellite observations : Relative roles of fossil fuel combustion, biomass burning and soil emissions. *Faraday Discussions*, 130 : 407–423.
- Jenkins G.S., Gaye A.T. & Sylla B. (2005). Late 20th century attribution of drying trends in the Sahel from the regional climate model (RegCM3). *Geophysical Research Letters*, 32(22) : L22705.
- Jin L., Shao M., Zeng L., Zhao D. & Tang D. (2006). Estimation of dry deposition fluxes of major inorganic species by canopy throughfall approach. *Chinese Science Bulletin*, 51(15) : 1818-1823.
- Johansson C., Rodhe H. & Sanhueza E. (1988). Emission of NO in a tropical savanna and a cloud forest during the dry season. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 93(D6) : 7180-7192.
- Kain J.S. & Fritsch J.M. (1990). A one-dimensional entraining/detraining plume model and its application in convective parameterization. *Journal of Atmospheric Science*, 47 : 2784–2802.
- Kain J.S. (2004). The Kain–Fritsch convective parameterization : An update. *Journal of Applied Meteorology*, 43 : 170–181.
- Kanamitsu M. & Krishnamurty T.N. (1978). Northern summer tropical circulation during drought and normal rainfall months. *Monthly Weather Review*, 106 : 331–347.
- Kendall M.G. (1975). Rank Correlation Methods. *Charles Griffin*, London (Angleterre), 272p.
- Keuken M.P., Roemer M.G.M., Zandveld P., Verbeek R.P. & Velders G.J.M. (2012). Trends in primary NO and exhaust PM emissions from road traffic for the period 2000–2020 and implications for air quality and health in the Netherlands. *Atmospheric Environment*, 54 : 313–319.
- KhayatianYazdi F., Kamali G., Mirrokni S.M. & Memarian M.H. (2021). Sensitivity evaluation of the different physical parameterizations schemes in regional climate model RegCM4.5

- for simulation of air temperature and precipitation over north and west of Iran. *Dynamics of Atmospheres and Oceans*, 93 : 101199.
- Kiehl J.T., Hack J.J., Bonan G.B., Boville B.A., Briegleb B.P., Williamson D.L. & Rasch P.J. (1996). Description of the NCAR community climate model (CCM3). Technical Report - NCAR, 152p.
- Kleinman L.I. (1994). Low and high NO_x tropospheric photochemistry. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 99(D8) : 16831–16838.
- Kok J.F. (2011). A scaling theory for the size distribution of emitted dust aerosols suggests climate models underestimate the size of the global dust cycle. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 108 : 1016–1021.
- Konaré A., Zakey A.S., Solmon F., Giorgi F., Rauscher S., Ibrah S. & Bi X. (2008). A regional climate modeling study of the effect of desert dust on the West African monsoon. *Journal of Geophysical Research*, 113(D12) : D12206.
- Koné B., Diedhiou A., Diawara A., Anquetin S., Touré N.E., Bamba A. & Koba A.T. (2022). Influence of initial soil moisture in a regional climate model study over West Africa – part 2 : Impact on the climate extremes. *Hydrology and Earth System Sciences*, 26(3) : 731-754.
- Lacaux J.P., Delmas R., Kouadio G., Cros B. & Andreae M.O. (1992). Precipitation chemistry in the Mayombe forest of Equatorial Africa. *Journal of Geophysical Research*, 97 : 6195–6206.
- Lafore J.-P., Flamant C., Giraud V., Williams E., Guichard F., Knippertz P., Mafouf J.-F. & Mascart P. (2010). Introduction to the AMMA special issue on “Advances in understanding atmospheric processes over West Africa through the AMMA field campaign”. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 136 : 2–7.
- Lamarque J.-F., Dentener F., McConnell J., Ro C.-U., Shaw M., Vet R., Bergmann D., Cameron-Smith P., Dalsoren S., Doherty R., Faluvegi G., Ghan S., Josse B., Lee Y., MacKenzie I., Plummer D., Shindell D., Skeie R., Stevenson D., Strode S., Zeng G., Curran M., Dahl-Jensen D., Das S., Fritzsche D. & Nolan M. (2013). Multi-model mean nitrogen and sulfur deposition from the Atmospheric Chemistry and Climate Model Intercomparison Project (ACCMIP) : Evaluation of historical and projected future changes. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13 : 7997–8018.

- Lamsal L.N., Krotkov N.A., Vasilkov A., Marchenko S., Qin W., Yang E.-S., Fasnacht Z., Joiner J., Choi S., Haffner D., Swartz W.H., Fisher B. & Bucsela E. (2021). Ozone Monitoring Instrument (OMI) Aura nitrogen dioxide standard product version 4.0 with improved surface and cloud treatments. *Atmospheric Measurement Techniques*, 14(1) : 455-479.
- Laouali D., Galy-Lacaux C., Diop B., Delon C., Orange D., Lacaux J., Akpo A., Lavenu F., Gardrat E. & Castera P. (2012). Long term monitoring of the chemical composition of precipitation and wet deposition fluxes over three Sahelian savannas. *Atmospheric Environment*, 50 : 314–327.
- Laurent B., Marticorena B., Bergametti G., Léon J.F. & Mahowald N.M. (2008). Modeling mineral dust emissions from the Sahara desert using new surface properties and soil database. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 113(D14) : D14218.
- Lavaysse C., Chaboureau J.-P. & Flamant C. (2011). Dust impact on the West African heat low in summertime. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 137(658) : 1227-1240.
- Lawrence D.M., Oleson K.W., Flanner M.G., Thornton P.E., Swenson S.C., Lawrence P.J., Zeng X., Zong-liang L.S., Sakaguchi K.B., Gordon B.S. & Andrew G. (2011). Parameterization improvements and functional and structural advances in version 4 of the community land model. *Journal of Advances in Modeling Earth Systems*, 3 : M03001.
- Le Barbé L., Lebel L. & Tapsoba D. (2002). Rainfall variability in West Africa during the years 1950–1990. *Journal of Climate*, 15 : 187–202.
- Le Roux X., Gauthier H., Bégué A. & Sinoquet H. (1997). Radiation absorption and use by humid savanna grassland : assessment using remote sensing and modeling. *Agricultural and Forest Meteorology*, 85 : 117–132.
- Leduc-Leballeur M. (2012). Influence océanique du Golfe de Guinée sur la mousson en Afrique de l’Ouest. Thèse de Doctorat, Ecole doctorale Sciences de l’environnement d’Ile de France - Physique de l’atmosphère, Université Pierre et Marie Curie-Paris VI (Paris, France), 153p.
- Lelieveld J. & Dentener F.J. (2000). What controls tropospheric ozone ? *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 105(D3) : 3531-3551.
- Li J., Nagashima T., Kong L., Ge B., Yamaji K., Fu J.S., Wang X., Fan Q., Itahashi S., Lee H.-J., Kim C.-H., Lin C.-Y., Zhang M., Tao Z., Kajino M., Liao H., Li M., Woo J.-H., Kurokawa

- J., Wang Z., Wu Q., Akimoto H., Carmichael G.R. & Wang Z. (2019). Model evaluation and intercomparison of surface-level ozone and relevant species in East Asia in the context of MICS-Asia Phase III–Part 1 : Overview. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(20) : 12993-13015.
- Li R., Xu M., Li M., Chen Z., Zhao N., Gao B. & Yao Q. (2021). Identifying the spatiotemporal variations in ozone formation regimes across China from 2005 to 2019 based on polynomial simulation and causality analysis. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(20) : 15631-15646.
- Lilly D.K. (1968). Models of cloud-topped mixed layers under a strong inversion. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 94 : 292–309.
- Lin W., Xu X., Yu X., Zhang X. & Huang J. (2013). Observed levels and trends of gaseous SO₂ and HNO₃ at Mt. Waliguan, China : Results from 1997 to 2009. *Journal of Environmental Sciences*, 25(4) : 726-734.
- Lin H., Emmons L.K., Lundgren E.W., Yang L.H., Feng X., Dang R., Zhai S., Tang Y., Kelp M.M., Colombi N.K., Eastham S.D., Fritz T.M. & Jacob D.J. (2024). Intercomparison of GEOS-Chem and CAM-Chem tropospheric oxidant chemistry within the Community Earth System Model version 2 (CESM2). *Atmospheric Chemistry and Physics*, 24(15) : 8607-8624.
- Liu X., Zhang Y., Han W., Tang A., Shen J., Cui Z., Vitousek P., Erisman J.W., Goulding K., Christie P., Fangmeier A. & Zhang F. (2013). Enhanced nitrogen deposition over China. *Nature*, 494(7438) : 459-462.
- Lloyd J. & Taylor J. (1994). On the temperature dependence of soil respiration. *Functional Ecology*, 8 : 315–323.
- Lober J.M., Scharffe D.H., Hao W.M. & Crutzen P.J. (1990). Importance of biomass burning in the atmospheric budgets of nitrogen containing gases. *Nature*, 346 : 552–524.
- López-Fernández S., Díez J.A., Hernáiz P., Arce A., García-Torres L. & Vallejo A. (2007). Effects of fertiliser type and the presence or absence of plants on nitrous oxide emissions from irrigated soils. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, 78 : 279–289.
- Malardel S. (2005). Fondamentaux de Météorologie : à l'école du temps. *Cépaduès*, Toulouse (France), 726p.

- Malavelle F., Pont V., Mallet M., Solmon F., Johnson B., Leon J.F. & Liousse C. (2011). Simulation of aerosol radiative effects over West Africa during DABEX and AMMA SOP-0. *Journal of Geophysical Research*, 116(D08) : D08205.
- Mann H.B. (1945). Nonparametric tests against trend. *Econometrica*, 13 : 245–259.
- Mao Y., Liao H., Han Y. & Cao J. (2016). Impacts of meteorological parameters and emissions on decadal and interannual variations of black carbon in China for 1980-2010. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 121(4) : 1822-1843.
- Marais E.A., Jacob D.J., Guenther A., Chance K., Kurosu T.P., Murphy J.G., Reeves C.E. & Pye H.O.T. (2014a). Improved model of isoprene emissions in Africa using ozone monitoring instrument (OMI) satellite observations of formaldehyde : implications for oxidants and particulate matter. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14 : 7693–7703.
- Marais E.A., Jacob D.J., Wecht K.J., Lerot C., Zhang L., Yu K., Kurosu T.P., Chance K., Sauvage B. & Painemal D. (2014b). Anthropogenic emissions in Nigeria and implications for atmospheric ozone pollution : A view from space. *Atmospheric Environment*, 99 : 32–40.
- Marticorena B., Chatenet B., Rajot J.L., Traoré S., Coulibaly M., Diallo A., Koné I., Maman A., NDiaye T. & Zakou A. (2010). Temporal variability of mineral dust concentrations over West Africa : analyses of a pluriannual monitoring from the AMMA Sahelian dust transect. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10 : 8899–8915.
- Mathon V., Laurent H. & Lebel T. (2002). Mesoscale convective system rainfall in the Sahel. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 41 : 1081–1092.
- Matson P., Lohse K.A. & Hall S.J. (2002). The globalization of nitrogen deposition : Consequences for terrestrial ecosystems. *Ambio*, 31(2) : 113-119.
- Mayaux P., Bartholomé E., Fritz S. & Belward A. (2004). A new land cover map of Africa for the year 2000. *Journal of Biogeography*, 31 : 861–877.
- Mbienda A.K., Guenang G., Kaissassou S., Tanessong R., Choumbou P. & Giorgi F. (2023). Enhancement of RegCM4.7-CLM precipitation and temperature by improved bias correction methods over Central Africa. *Meteorological Applications*, 30(1) : e2116.
- McCaa J.R. & Bretherton C.S. (2004). A new parameterization for shallow cumulus convection and its application to marine subtropical cloud-topped boundary layers. Part II : Regional simulations of marine boundary layer clouds. *Monthly Weather Review*, 132(4) : 883-896.

- McNally A. (2018). FLDAS Noah Land Surface Model L4 global monthly 0.1×0.1 degree (MERRA-2 and CHIRPS). Study report - Goddard Earth Sciences Data and Information Services Center (GES DISC) of Greenbelt, 20p.
- Menaut J.C. & César J. (1979). Structure and primary productivity of Lamto savannas, Ivory Coast. *Ecology*, 60 : 1197–1210.
- Mlawer E.J. & Clough S.A. (1997). On the extension of rapid radiative transfer model to the shortwave region. *Proceedings of the 6th Atmospheric Radiation Measurement (ARM) Science Team Meeting*, 4–7 March 1996, San Antonio, Texas, USA, pp 223-226.
- Mlawer E.J., Taubman S.J., Brown P.D., Iacono M.J. & Clough S.A. (1997). Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres : RRTM, a validated correlated-k model for the longwave. *Journal of Geophysical Research*, 102 : 16663–16682.
- Mostafa A.N., Zakey A.S., Alfaro S.C., Wheida A.A., Monem S.A. & Abdul Wahab M.M. (2019). Validation of RegCM-CHEM4 model by comparison with surface measurements in the greater Cairo (Egypt) megacity. *Environmental Science and Pollution Research*, 26 : 23524–23541.
- Mougin E., Hiernaux P., Kergoat L., Grippa M., De Rosnay P., Timouk F., Le Dantec V., Demarez V., Lavenu F. & Arjounin M. (2009). The AMMA-CATCH Gourma observatory site in Mali : relating climatic variations to changes in vegetation, surface hydrology, fluxes and natural resources. *Journal of Hydrology*, 375 : 14–33.
- Mu Q. & Liao H. (2014). Simulation of the interannual variations of aerosols in China : Role of variations in meteorological parameters. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(18) : 9597-9612.
- Nenes A., Pandis S.N. & Pilinis C. (1998). ISORROPIA : A new thermodynamic equilibrium model for multiphase multicomponent inorganic aerosols. *Aquatic Geochemistry*, 4, 123–152.
- Nicholls S. & Turton J.D. (1986). An observational study of the structure of stratiform cloud sheets : Part II, entrainment. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 112 : 461–480.
- Nicholson S.E. (2008). The intensity, location and structure of the tropical rain belt over West Africa as factors in interannual variability. *International Journal of Climatology*, 28 : 1775–1785.

- Nicholson S.E. (2009). A revised picture of the structure of the “monsoon” and land ITCZ over West Africa. *Climate Dynamics*, 32 : 1155–1171.
- Nikulin G., Jones C., Giorgi F., Asrar G., Büchner M., Cerezo-Mota R., Christensen O.B., Déqué M., Fernandez J., Hänsler A., van Meijgaard E., Samuelsson P., Sylla M.B. & Sushama L. (2012). Precipitation climatology in an ensemble of CORDEX-Africa regional climate simulations. *Journal of Climate*, 25(18) : 6057-6078.
- Nogherotto R., Tompkins A.M., Giuliani G., Coppola E. & Giorgi F. (2016). Numerical framework and performance of the new multiple-phase cloud microphysics scheme in RegCM4.5 : precipitation, cloud microphysics, and cloud radiative effects. *Geoscientific Model Development*, 9(7) : 2533-2547.
- O’Brien T.A., Chuang P.Y., Sloan L.C., Faloon I.C. & Rossiter D.L. (2012). Coupling a new turbulence parameterization to RegCM adds realistic stratocumulus clouds. *Geoscientific Model Development*, 5(4) : 989-1008.
- Ogawa M. & Yoshida N. (2005). Nitrous oxide emission from the burning of agricultural residue. *Atmospheric Environment*, 39 : 3421–3429.
- Ojima D.S., Schimel D.S., Parton W.J. & Owensby C.E. (1994). Long- and short-term effects of fire on nitrogen cycling in tallgrass prairie. *Biogeochemistry*, 24 : 67–84.
- Okin G.S., Murray B. & Schlesinger W.H. (2001). Degradation of sandy arid shrubland environments : observations, process modelling, and management implications. *Journal of Arid Environments*, 47(2) : 123-144.
- Oleson K.W., Niu G.Y., Yang Z.L., Lawrence D.M., Thornton P.E., Lawrence P.J., Stöckli R., Dickinson R.E., Bonan G.B., Levis S., Dai A. & Qian T. (2008). Improvements to the Community Land Model and their impact on the hydrologic cycle. *Journal of Geophysical Research*, 113 : G01021.
- Oleson K., Lawrence D., Bonan G., Fisher R., Lawrence P., Muszala S., Drewniak B., Huang M., Koven C., Levis S., Li F., Riley W. & Subin Z. (2013). Technical description of version 4.5 of the Community Land Model (CLM). Study report - NCAR Earth System Laboratory–Climate and Global Dynamics, 434p. <http://www.cesm.ucar.edu/models/cesm1.2/clm>.
- Oluleye A., Ogunjobi K.O., Bernard A., Ajayi V.O. & Akinsanola A.A. (2021). Satellite observation of spatio-temporal variations in nitrogen dioxide over West Africa and implications

- for regional air quality. *Journal of Health and Pollution*, 11(31) : 210913.
- Opacka B., Stavrakou T., Müller J.-F., Smedt I.D., van Geffen J., Marais E.A., Horner R.P., Millet D.B., Wells K.C. & Guenther A.B. (2025). Natural emissions of voc and nox over africa constrained by tropomi hcho and no2data using the magrittev1.1 model. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 25 :2863–2894.
- Oppenheimer C., Tsanev V.I., Allen A.G., McGonigle A.J., Cardoso A.A., Wiatr A., Paterlini W. & de Mello Dias C. (2004). NO₂ emissions from agricultural burning in Sao Paulo, Brazil. *Environmental Science & Technology*, 38(17) : 4557-4561.
- Ormeçi B., Sanin S.L. & Peirce J.J. (1999). Laboratory study of NO flux from agricultural soil : Effects of soil moisture, pH, and temperature. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 104(D1) : 1621-1629.
- Ossouhou M., Galy-Lacaux C., Yoboué V., Hickman J.E., Gardrat E., Adon M., Darras S., Laouali D., Akpo A., Ouafu M., Diop B. & Opepa C. (2019). Trends and seasonal variability of atmospheric NO₂ and HNO₃ concentrations across three major African biomes inferred from long-term series of ground-based and satellite measurements. *Atmospheric Environment*, 207 : 148–166.
- Ossouhou M., Galy-Lacaux C., Yoboué V., Adon M., Delon C., Gardrat E., Konaté I., Ki A. & Zouzou R. (2021). Long-term atmospheric inorganic nitrogen deposition in West African savanna over 16 year period (Lamto, Côte d’Ivoire). *Environmental Research Letters*, 16(1) : 015004.
- Ossouhou M., Hickman J.E., Clarisse L., Coheur P.-F., Van Damme M., Adon M., Yoboué V., Gardrat E., Alvès M.D. & Galy-Lacaux C. (2023). Trends and seasonal variability in ammonia across major biomes in western and central Africa inferred from long-term series of ground-based and satellite measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 23(16) : 9473-9494.
- Pacifico F., Delon C., Jambert C., Durand P., Morris E., Evans M.J., Lohou F., Derrien S., Donnou V.H.E., Houeto A.V., Martínez I.R. & Brilouet P.-E. (2019). Measurements of nitric oxide and ammonia soil fluxes from a wet savanna ecosystem site in West Africa during the DACCIWA field campaign. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(4) : 2299-2325.
- Padro J., Den Hartog G. & Neumann H. (1991). An investigation of the ADOM dry deposition module using summertime O₃ measurements above a deciduous forest. *Atmospheric*

- Environment. Part A. General Topics*, 25(8) : 1689-1704.
- Padro J. & Edwards G.C. (1991). Sensitivity of adom dry deposition velocities to inputparameters : a comparison with measurements for SO₂ and NO₂ over three land use types. *Atmosphere-Ocean*, 29(4) :667-685.
- Pal J.S., Small E.E. & Eltahir E. (2000). Simulation of regional-scale water and energy budgets : Representation of subgrid cloud and precipitation processes within RegCM. *Journal of Geophysical Research*, 105(D24) : 29579-29594.
- Pal J.S., Giorgi F., Bi X., Elguindi N., Solmon F., Gao X., Ashfaq M., Francisco R., Bell J. & Diffenbaugh N. (2007). The ICTP RegCM3 and RegCNET : Regional climate modeling for the developing world. *Bulletin of the American Meteorological Society*, 88 : 1395–1409.
- Palmer P.I., Wainwright C.M., Dong B., Maidment R.I., Wheeler K.G., Gedney N., Hickman J.E., Madani N., Folwell S.S., Abdo G., Allan R.P., Black E.C.L., Feng L., Gudoshava M., Haines K., Huntingford C., Kilavi M., Lunt M.F., Shaaban A. & Turner A.G. (2023). Drivers and impacts of eastern African rainfall variability. *Nature Reviews Earth Environment*, 4(4) : 254-270.
- Pan Y., Tian S., Zhao Y., Zhang L., Zhu X., Gao J., Huang W., Zhou Y., Song Y., Zhang Q. & Wang Y. (2018). Identifying ammonia hotspots in China using a national observation network. *Environmental Science & Technology*, 52(7) : 3926-3934.
- Parmar R.S., Satsangi G.S., Lakhani A., Srivastava S.S., Prakash S., Rastogi R.K., Ramkumar K.L., Venugopal V. & Manohar S.B. (2000). Diurnal and seasonal behaviour of atmospheric ammonia and nitric acid in a suburban site. *Proceeding of the 10th National Symposium on Environment-Pollution in Urban Environment*, 7–9 february 2000, Nagpur, India, pp 66-70.
- Paulson C.A. (1970). The mathematical representation of wind speed and temperature profiles in the unstable atmospheric surface layer. *Journal of Applied Meteorology*, 9 : 857–861.
- Philippon N., Cornu G., Monteil L., Gond V., Moron V., Pergaud J., Sèze G., Bigot S., Camberlin P., Doumenge C., Fayolle A. & Ngomanda A. (2019). The light-deficient climates of western central African evergreen forests. *Environmental Research Letters*, 14(3) : 034007.
- Pichelli E., Coppola E., Sobolowski S., Ban N., Giorgi F., Stocchi P., Alias A., Belušić D., Berthou S., Caillaud C., Cardoso R.M., Chan S., Christensen O.B., Dobler A., de Vries H., Goergen K., Kendon E.J., Keuler K., Lenderink G., Lorenz T., Mishra A.N., Panitz

- H.-J., Schär C., Soares P.M.M., Truhetz H. & Vergara-Temprado J. (2021). The first multi-model ensemble of regional climate simulations at kilometer-scale resolution Part 2 : historical and future simulations of precipitation. *Climate Dynamics*, 56 : 3581–3602.
- Pilegaard K. (2013). Processes regulating nitric oxide emissions from soils. *Philosophical Transactions of the Royal Society B : Biological Sciences*, 368(1621) : 20130126.
- Pineda Rojas A.L. & Venegas L.E. (2009). Atmospheric deposition of nitrogen emitted in the metropolitan area of Buenos Aires to coastal waters of De La Plata River. *Atmospheric Environment*, 43 : 1339–1348.
- Potter P., Ramankutty N., Bennett E.M. & Donner S.D. (2010). Characterizing the spatial patterns of global fertilizer application and manure production. *Earth Interactions*, 14(2) : 1-22.
- Randerson J., Van Der Werf G., Giglio L., Collatz G. & Kasibhatla P. (2018). Global fire emissions database, version 4.1 (GFEDv4). Study report - ORNL DAAC, Oak Ridge, Tennessee, USA, 10p.
- Rao P., Wang Y., Wang F., Liu Y., Wang X. & Wang Z. (2022). Daily soil moisture mapping at 1 km resolution based on SMAP data for desertification areas in northern China. *Earth System Science Data*, 14(7) : 3053-3073.
- Roelle P.A., Aneja V.P., Gay B., Geron C. & Pierce T. (2001). Biogenic nitric oxide emissions from cropland soils. *Atmospheric Environment*, 35(1) : 115-124.
- Rustad L.E.J.L., Campbell J., Marion G., Norby R., Mitchell M., Hartley A., Cornelissen J., Gurevitch J. & GCTE-NEWS (2001). A meta-analysis of the response of soil respiration, net nitrogen mineralization, and aboveground plant growth to experimental ecosystem warming. *Oecologia*, 126 : 543–562.
- Sanhueza E., Hao W.M., Scharffe D., Donoso L. & Crutzen P.J. (1990). N₂O and NO emissions from soils of the northern part of the Guayana Shield, Venezuela. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 95(D13) : 22481-22488.
- Santese M., Perrone M.R., Zakey A.S., De Tomasi F. & Giorgi F. (2010). Modeling of Saharan dust outbreaks over the Mediterranean by RegCM3 : case studies. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10 : 133–156.
- Sauvage B., Thouret V., Cammas J.-P., Gheusi F., Athier G. & Nédélec P. (2005). Tropospheric ozone over Equatorial Africa : regional aspects from the MOZAIC data. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5(2), 311-335.

- Sauvage B., Martin R.V., Van Donkelaar A. & Ziemke J. (2007). Quantification of the factors controlling tropical tropospheric ozone and the South Atlantic maximum. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 112(D11) : D11309.
- Schlesinger W.H. & Hartley A.E. (1992). A global budget for NH. *Biogeochemistry*, 15 : 191–211.
- Schwenke G.D. & Haigh B.M. (2016). The interaction of seasonal rainfall and nitrogen fertiliser rate on soil NO emission, total N loss and crop yield of dryland sorghum and sunflower grown on sub-tropical vertosols. *Soil Research*, 54 : 604–618.
- Seinfeld J. & Pandis S. (1998). Atmospheric Chemistry and Physics : From Air Pollution to Climate Change. *John Wiley & Sons*, Hoboken, NJ (USA), 30p.
- Sen P.K. (1968). Estimates of the regression coefficient based on Kendall's tau. *Journal of the American Statistical Association*, 63 : 1379–1389.
- Serca D., Delmas R., Jambert C. & Labroue L. (1994). Emissions of nitrogen oxides from equatorial rain forest in Central Africa. *Tellus B : Chemical and Physical Meteorology*, 46(4) : 243-254.
- Shalaby A., Zakey A.S., Tawfik A., Solmon F., Giorgi F., Stordal F., Sillman S., Zaveri R.A. & Steiner A. (2012). Implementation and evaluation of online gas-phase chemistry within a regional climate model (RegCM-Chem4). *Geoscientific Model Development*, 5(3) : 741-760.
- Shammas N.K. (1986). Interactions of temperature, pH, and biomass on the nitrification process. *Journal of Water Pollution Control Federation*, 58 : 52–59.
- Shen J.L., Tang A.H., Liu X.J., Fangmeier A., Goulding K.T.W. & Zhang F.S. (2009). High concentrations and dry deposition of reactive nitrogen species at two sites in the North China Plain. *Environmental Pollution*, 157 : 3106–3113.
- Sillman S. & He D. (2002). Some theoretical results concerning O₃-NO_x-VOC chemistry and NO_x-VOC indicators. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 107(D22) : ACH 26-1–ACH 26-15.
- Simpson D., Benedictow A., Berge H., Bergström R., Flechard C., Hayman G., Gauss M., Jonson J., Jenkin M., Nyíri A., Wind P., Richter C., Semeena V., Tsyro S., Tuovinen J. & Valdebenito A. (2012). The EMEP MSC-W chemical transport model – technical description. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12 : 7825–7865.

- Simpson D. & Darras S. (2021). Global soil NO emissions for atmospheric chemical transport modelling : CAMS-Glob-Soil v2.2. *Earth System Science Data Discussions*, 2021 : 1–35.
- Skopp J., Jawson M. & Doran J. (1990). Steady-state aerobic microbial activity as a function of soil water content. *Soil Science Society of America Journal*, 54(6) : 1619-1625.
- Slingo J.M. (1989). A GCM parameterization for the shortwave radiative properties of water clouds. *Journal of Atmospheric Science*, 46 : 1419–1427.
- Smith K., Ball T., Conen F., Dobbie K., Massheder J. & Rey A. (2003). Exchange of greenhouse gases between soil and atmosphere : interactions of soil physical factors and biological processes. *European Journal of Soil Science*, 54 : 779–791.
- Solmon F., Giorgi F. & Liousse C. (2006). Aerosol modelling for regional climate studies : application to anthropogenic particles and evaluation over a European/African domain. *Tellus B : Chemical and Physical Meteorology*, 58(1) : 51-72.
- Solmon F., Mallet M., Elguindi N., Giorgi F., Zakey A. & Konaré A. (2008). Dust aerosol impact on regional precipitation over western Africa, mechanisms and sensitivity to absorption properties. *Geophysical Research Letters*, 35(24) : L24705.
- Solmon F., Elguindi N., Mallet M., Flamant C. & Formenti P. (2021). West African monsoon precipitation impacted by the south eastern Atlantic biomass burning aerosol outflow. *npj Climate and Atmospheric Science*, 4(1) : 54.
- Stark J.M. (1996). Modeling the temperature response of nitrification. *Biogeochemistry*, 35 : 433–445.
- Steinkamp J., Ganzeveld L., Wilcke W. & Lawrence M. (2009). Influence of modelled soil biogenic NO emissions on related trace gases and the atmospheric oxidizing efficiency. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(8) : 2663-2677.
- Stewart D., Taylor C., Reeves C. & McQuaid J. (2008). Biogenic nitrogen oxide emissions from soils : impact on NO_x and ozone over West Africa during AMMA (African Monsoon Multidisciplinary Analysis) : observational study. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8(8) : 2285-2297.
- Sultan B., Janicot S. & Diedhiou A. (2003). The West African monsoon dynamics. Part I : Documentation of intraseasonal variability. *Journal of Climate*, 16(21) : 3389–3406.
- Sultan B. & Janicot S. (2003). The west african monsoon dynamics. Part II : The “preonset” and “onset” of the summer monsoon. *Journal of Climate*, 16 : 3407–3427.

- Sun S., Tai A.P., Yung D.H., Wong A.Y., Ducker J.A. & Holmes C.D. (2022). Influence of plant ecophysiology on ozone dry deposition : comparing between multiplicative and photosynthesis-based dry deposition schemes and their responses to rising CO₂ level. *Biogeosciences*, 19(6) : 1753–1776.
- Sundqvist H., Berge E. & Kristjansson J. (1989). Condensation and cloud parameterization studies with a mesoscale numerical weather prediction model. *Monthly Weather Review*, 117 : 1641–1657.
- Sutton M.E. (2011). The European nitrogen assessment : sources, effects, and policy perspectives. *Cambridge University Press*, Cambridge (UK), New York (USA), 602p.
- Sutton M.A., Bleeker A., Howard C.M., Bekunda M., Grizzetti B., de Vries W., van Grinsven H.J.M., Abrol Y.P., Adhya T.K., Billen G., Davidson E.A, Datta A., Diaz R., Erisman J.W., Liu X.J., Oenema O., Palm C., Raghuram N., Reis S., Scholz R.W., Sims T., Westhoek H. & Zhang F.S. (2013). Our nutrient world : the challenge to produce more food and energy with less pollution. Study report - Centre for Ecology and Hydrology (CEH), Edinburgh UK, 128p.
- Sylla M., Giorgi F. & Stordal F. (2012). Large-scale origins of rainfall and temperature bias in high-resolution simulations over southern Africa. *Climate Research*, 52 : 193–211.
- Sylla M., Diallo I. & Pal J. (2013b). West African monsoon in state-of-the-art regional climate models. *Climate Variability—Regional and Thematic Patterns*, 10 : 1–31.
- Szukics U., Abell G.C.J., Hödl V., Mitter B., Sessitsch A., Hackl E. & Zechmeister-Boltenstern S. (2010). Nitrifiers and denitrifiers respond rapidly to changed moisture and increasing temperature in a pristine forest soil. *FEMS Microbiology Ecology*, 72(3) : 395-406.
- Tadic I., Nussbaumer C.M., Bohn B., Harder H., Marno D., Martinez M., Obersteiner F., Parchatka U., Pozzer A., Rohloff R., Zöger M., Lelieveld J. & Fischer H. (2021). Central role of nitric oxide in ozone production in the upper tropical troposphere over the Atlantic Ocean and western Africa. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 21(10) : 8195-8211.
- Tadross M., Gutowski W., Hewitson B., Jack C. & New M. (2006). MM5 simulations of interannual change and the diurnal cycle of southern African regional climate. *Theoretical and Applied Climatology*, 86 : 63–80.
- Tawfik A.B., Stöckli R., Goldstein A., Pressley S. & Steiner A.L. (2012). Quantifying the contribution of environmental factors to isoprene flux interannual variability. *Atmospheric*

- Environment*, 54 : 216–224.
- Tetzlaff G., Dlugi R., Friedrich K., Gross G., Hinneburg D., Pahl U., Zelger M. & Moelders N. (2002). On modeling dry deposition of long-lived and chemically reactive species over heterogeneous terrain. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 42 : 123–155.
- Tiedtke M. (1989). A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in large-scale models. *Monthly Weather Review*, 117(8) : 1779-1800.
- Tiedtke M. (1996). An extension of cloud-radiation parameterization in the ECMWF model : The representation of subgrid-scale variations of optical depth. *Monthly Weather Review*, 124 : 745–750.
- Trebs I., Lara L., Zeri L., Gatti L., Artaxo P., Dlugi R., Slanina J., Andreae M. & Meixner F. (2006). Dry and wet deposition of inorganic nitrogen compounds to a tropical pasture site (Rondônia, Brazil). *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(2) : 447-469.
- Trini Castelli S., Bisignano A., Donateo A., Landi T.C., Martano P. & Malguzzi P. (2020). Evaluation of the turbulence parameterization in the Moloch meteorological model. *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 146 : 124–141.
- Tsai J.L., Chen C.L., Tsuang B.J., Kuo P.H., Tseng K.H., Hsu T.F., Sheu B.H., Liu C.P. & Hsueh M.T. (2010). Observation of SO₂ dry deposition velocity at a high elevation flux tower over an evergreen broadleaf forest in central Taiwan. *Atmospheric Environment*, 44 : 1011–1019.
- Tsivlidou M., Sauvage B., Bennouna Y., Blot R., Boulanger D., Clark H., Le Flochmoën E., Nédélec P., Thouret V., Wolff P. & Barret B. (2023). Tropical tropospheric ozone and carbon monoxide distributions : characteristics, origins, and control factors, as seen by IAGOS and IASI. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 23(21) : 14039-14063.
- van Wees D. & van der Werf G.R. (2019). Modelling biomass burning emissions and the effect of spatial resolution : a case study for Africa based on the global fire emissions database (gfed). *Geoscientific Model Development*, 12(11) : 4681-4703.
- Vet R., Artz R., Carou S., Shaw M., Ro C.-U., Aas W., Baker A., Bowersox V., Dentener F., Galy-Lacaux C., Hou A., Pienaar J., Gillett R., Forti M., Gromov S., Hara H., Khodzher T., Mahowald N., Nickovic S., Rao P. & Reid N. (2014). A global assessment of precipitation chemistry and deposition of sulfur, nitrogen, sea salt, base cations, organic acids, acidity and pH, and phosphorus. *Atmospheric Environment*, 93 : 3–100.

- Vinken G., Boersma K., Maasackers J., Adon M. & Martin R. (2014). Worldwide biogenic soil NO_x emissions inferred from OMI NO₂ observations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(18) : 10363-10381.
- Vitousek P.M. & Howarth R.W. (1991). Nitrogen limitation on land and in the sea : how can it occur? *Biogeochemistry*, 13 : 87–115.
- Vitousek P.M., Aber J.D., Howarth R.W., Likens G.E., Matson P.A., Wentz D.W., Schlesinger W.H. & Tilman D.G. (1997). Human alteration of the global nitrogen cycle : sources and consequences. *Ecological Applications*, 7(3) : 737-750.
- Wagner A., Bennouna Y., Blechschmidt A.-M., Brasseur G., Chabrillat S., Christophe Y., Errera Q., Eskes H., Flemming J., Hansen K.M., Inness A., Kapsomenakis J., Langerock B., Richter A., Sudarchikova N., Thouret V. & Zerefos C. (2021). Comprehensive evaluation of the Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS) reanalysis against independent observations : reactive gases. *Elementa : Science of the Anthropocene*, 9(1) : 00171.
- Wen Z., Xu W., Li Q., Han M., Tang A., Zhang Y., Luo X., Shen J., Wang W., Li K., Pan Y., Zhang L., Li W., Collett J.L., Zhong B., Wang X., Goulding K., Zhang F. & Liu X. (2020). Changes of nitrogen deposition in China from 1980 to 2018. *Environment International*, 144 : 106022.
- Wesely M.L. (1989). Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models. *Atmospheric Environment*, 23 : 1293–1304.
- Wesely M. & Hicks B. (2000). A review of the current status of knowledge on dry deposition. *Atmospheric Environment*, 34 : 2261–2282.
- Wilks D.S. (2011). *Statistical Methods in the Atmospheric Sciences*. Academic Press, San Diego (USA), 635p.
- Williams J., Scheele M., van Velthoven P., Cammas J.-P., Thouret V., Galy-Lacaux C. & Volz-Thomas A. (2009). The influence of biogenic emissions from Africa on tropical tropospheric ozone during 2006 : a global modeling study. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(15) : 5729-5749.
- Wu Z., Wang X., Chen F., Turnipseed A.A., Guenther A.B., Niyogi D., Charusombat U., Xia B., Munger J.W. & Alapaty K. (2011). Evaluating the calculated dry deposition velocities of reactive nitrogen oxides and ozone from two community models over a temperate deciduous forest. *Atmospheric Environment*, 45(16) : 2663-2674.

- Yan X., Ohara T. & Akimoto H. (2005). Statistical modeling of global soil NO_x emissions. *Global Biogeochemical Cycles*, 19(3) : GB3019.
- Yienger J. & Levy H. (1995). Empirical model of global soil-biogenic NO_x emissions. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 100(D6) : 11447-11464.
- Young P.J., Naik V., Fiore A.M., Gaudel A., Guo J., Lin M.Y., Neu J.L., Parrish D.D., Rieder H.E., Schnell J.L., Tilmes S., Wild O., Zhang L., Ziemke J., Brandt J., Delcloo A., Doherty R.M., Geels C., Hegglin M.I., Hu L., Im U., Kumar R., Luhar A., Murray L., Plummer D., Rodriguez J., Saiz-Lopez A., Schultz M.G., Woodhouse M.T. & Zeng G. (2018). Tropospheric Ozone Assessment Report : Assessment of global-scale model performance for global and regional ozone distributions, variability, and trends. *Elementa : Science of the Anthropocene*, 6 : 10.
- Zakey A.S., Solmon F. & Giorgi F. (2006). Development and testing of a desert dust module in a regional climate model. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(12) : 4687-4704.
- Zakey A.S., Giorgi F. & Bi X. (2008). Modeling of sea salt in a regional climate model : fluxes and radiative forcing. *Journal of Geophysical Research*, 113(D14) : D14221.
- Zaveri R.A. & Peters L.K. (1999). A new lumped structure photochemical mechanism for large-scale applications. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 104(D23) : 30387-30415.
- Zeng X., Zhao M. & Dickinson R.E. (1998). Inter-comparison of bulk aerodynamic algorithms for the computation of sea surface fluxes using TOGA COARE and TAO data. *Journal of Climate*, 11 : 2628–2644.
- Zhang L., Brook J. & Vet R. (2002a). On ozone dry deposition with emphasis on non-stomatal uptake and wet canopies. *Atmospheric Environment*, 36 : 4787–4799.
- Zhang L., Moran M.D., Makar P.A., Brook J.R. & Gong S. (2002b). Modelling gaseous dry deposition in AURAMS : a unified regional air-quality modelling system. *Atmospheric Environment*, 36(3) : 537-560.
- Zhang L., Brook J.R. & Vet R. (2003a). A revised parameterization for gaseous dry deposition in air-quality models. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3 : 2067–2082.
- Zhang L., Brook J.R. & Vet R. (2003b). A revised parameterization for gaseous dry deposition in air-quality models. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3(6) : 2067-2082.

- Zhang L., Brook J.R., Vet R., Wiebe A., Mihele C., Shaw M., O'Brien J.M. & Iqbal S. (2005). Estimation of contributions of NO and PAN to total atmospheric deposition of oxidized nitrogen across eastern Canada. *Atmospheric Environment*, 39 : 7030–7043.
- Zhang L., Vet R., O'Brien J.M., Mihele C., Liang Z. & Wiebe A. (2009). Dry deposition of individual nitrogen species at eight Canadian rural sites. *Journal of Geophysical Research*, 114(D2) : D02301.
- Zhang X., Davidson E.A., Mauzerall D.L., Searchinger T.D., Dumas P. & Shen Y. (2015). Managing nitrogen for sustainable development. *Nature*, 528 : 51–59.
- Zhu Z., Zhao F., Voss L., Xu L., Sun X., Yu G. & Meixner F.X. (2015). The effects of different calibration and frequency response correction methods on eddy covariance ozone flux measured with a dry chemiluminescence analyzer. *Agricultural and Forest Meteorology*, 213 : 114–125.
- Zhu J., Liao H., Mao Y., Yang Y. & Jiang H. (2017). Interannual variation, decadal trend, and future change in ozone outflow from East Asia. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(5) : 3729–3747.
- Zittis G., Hadjinicolaou P., Fnais M. & Lelieveld J. (2016). Projected changes in heat wave characteristics in the eastern Mediterranean and the Middle East. *Regional Environmental Change*, 16 : 1863–1876.

ANNEXES

Annexe 1 : Schémas explicatifs du modèle de surface CLM

Cette annexe présente une série de schémas illustrant les principaux processus représentés dans le modèle de surface CLM (Community Land Model). Ces figures permettent de visualiser les différences structurelles entre les générations de CLM, ainsi que la complexité des interactions biophysiques, hydrologiques et biogéochimiques simulées dans CLM 4.5.

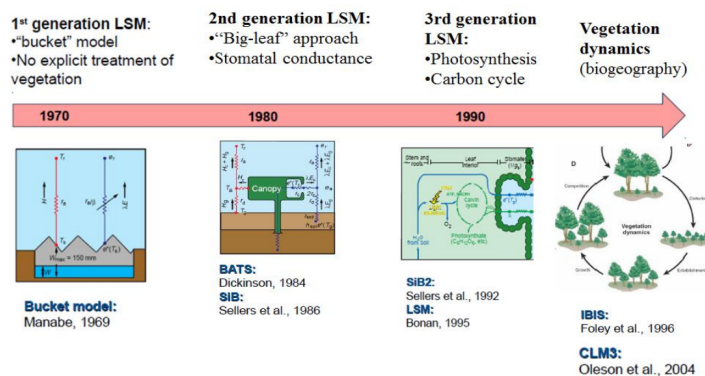


Figure 1 : Classification des modèles de LSM.

Source : Davin (2014).

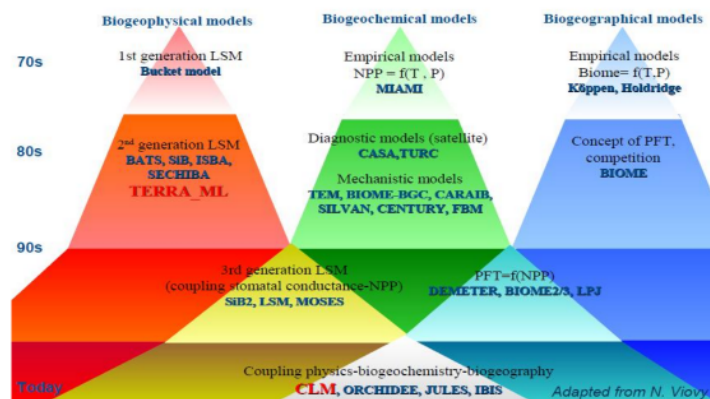


Figure 2 : Différents processus et leur couplage dans BATS et CLM.

Source : Davin (2014)

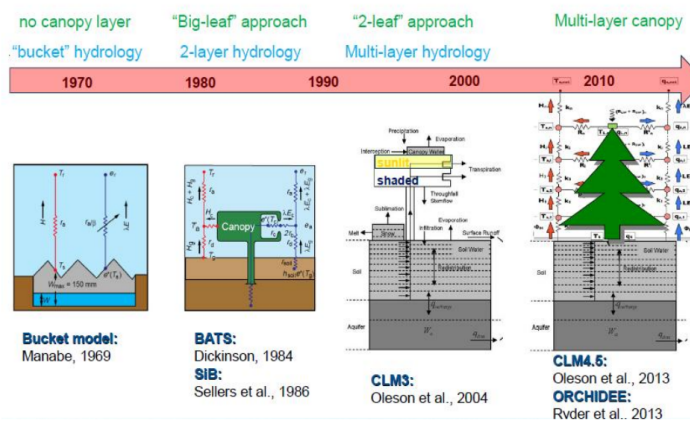


Figure 3 : Discrétisation verticale des différentes générations des modèles de surface.

Source : Davin (2014)

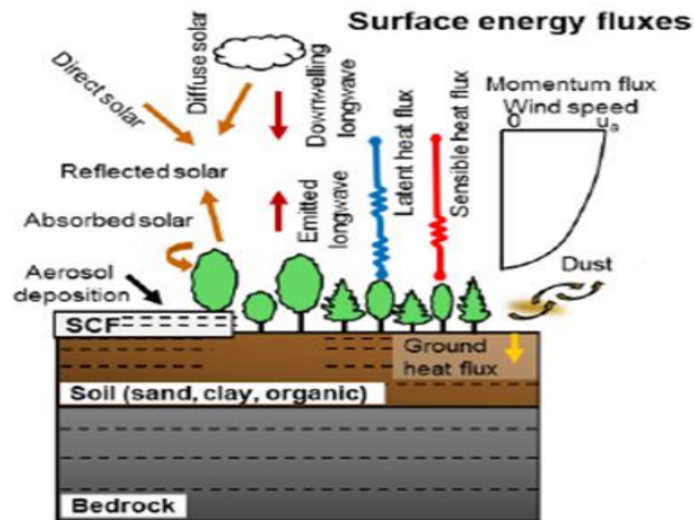


Figure 4 : Différents processus des flux d'énergie de surface pris en compte dans CLM.

Source : Lawrence *et al.* (2011)

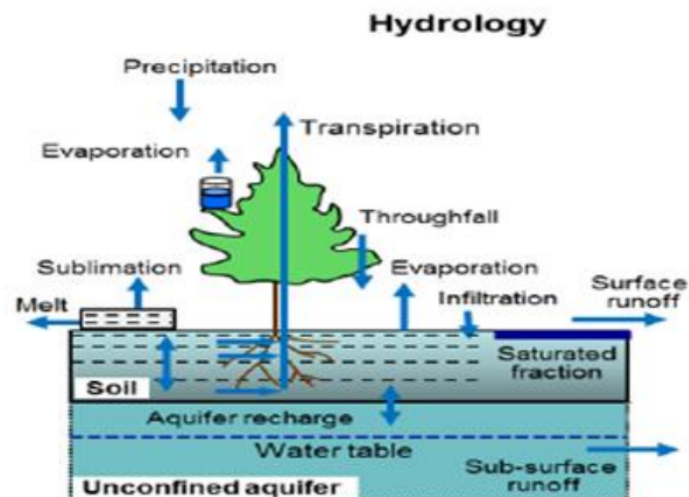


Figure 5 : Différents processus hydrauliques pris en compte dans CLM.

Source : Lawrence *et al.* (2011)

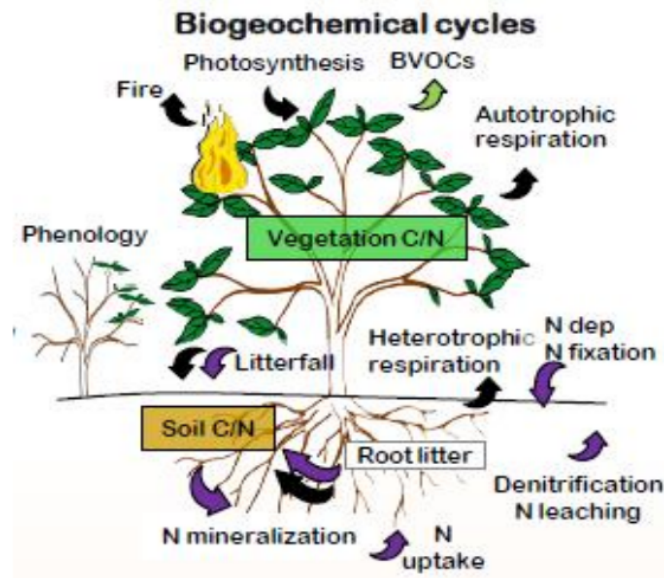


Figure 6 : Différents cycles biogéophysiques pris en compte dans CLM.

Source : Lawrence *et al.* (2011)

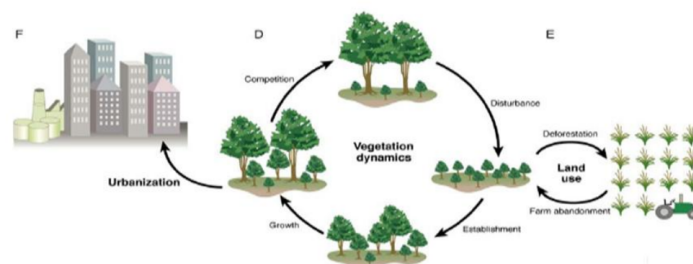


Figure 7 : Différents processus biogéographiques pris en compte dans CLM.

Source : Bonan (2008)

Annexe 2 : Paramétrisation de la vitesse de dépôt sec

Le dépôt sec joue un rôle essentiel en tant que mécanisme principal d'élimination des espèces gazeuses traces dans le modèle (Shalaby *et al.*, 2012). Le modèle utilise une paramétrisation du dépôt sec basée sur le schéma de Zhang (Zhang *et al.*, 2003a), qui l'exprime comme une fonction de la vitesse de dépôt sec (V_{dry}) et de la concentration atmosphérique (X_a) selon l'équation 2.8. Quant à la vitesse de dépôt V_{dry} , elle représente l'efficacité de la surface à capturer le gaz à un instant donné, et elle intègre l'effet de tous les processus impliqués dans le dépôt. En conséquence, la vitesse de dépôt est elle-même un facteur très complexe qui doit être paramétré en fonction de plusieurs facteurs fondamentaux, physiques, chimiques et biologiques.

Comme le montre la figure 1, la paramétrisation de la vitesse de dépôt est basée sur le concept d'analogie électrique entre le processus de dépôt et la somme des résistances associées (résistances en série) qui limitent les échanges entre le sol, la végétation et l'atmosphère : (1) la résistance aérodynamique R_a , (2) la résistance de la sous-couche quasi-laminaire R_b , et (3) la résistance de surface globale R_c qui prend en compte l'absorption stomatique et non stomatique dans les plantes et le sol. Dans cette analogie électrique, la vitesse de dépôt est considérée comme l'inverse de la somme de trois résistances principales décrivant le transfert vertical (Wesely, 1989), selon l'équation :

$$V_d = \frac{1}{R_a + R_b + R_c}$$

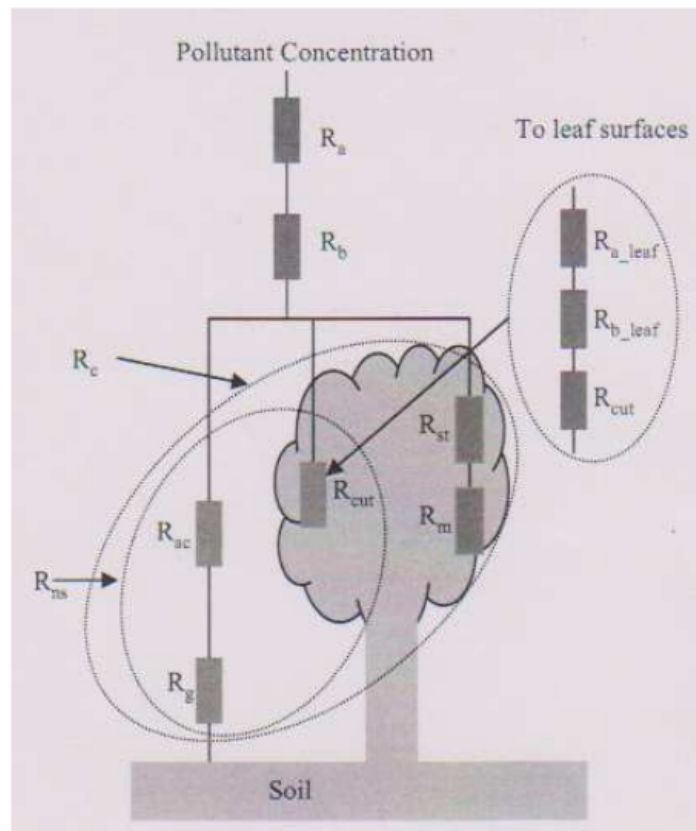


Figure 1 : Modèle de résistances big-leaf.

Source : Zhang *et al.* (2003a)

Toutes ces résistances sont calculées de façon interactive, c'est-à-dire calculées dans le modèle de surface CLM4.5.

R_a représente la résistance au transfert vertical d'un gaz dans la couche de surface atmosphérique. La limite inférieure de cette couche correspond à la hauteur de rugosité z_0 . R_a dépend principalement de l'intensité de la turbulence. Son expression est donnée par (Padro *et al.*, 1991) :

$$R_a = \frac{1}{k u^*} [0,74 \cdot \ln(z/z_0) - \Psi_H]$$

Avec

z_0 : la longueur de rugosité

z : la hauteur de référence à laquelle la vitesse de dépôt sec est évaluée

k : la constante de Von Karman ($k = 0,4$)

u^* : la vitesse de friction

Ψ_H : la fonction de correction de stabilité pour la chaleur (Paulson, 1970)

La vitesse de friction u_* est calculée dans le modèle en fonction de la stabilité de l'air à l'aide

du nombre de Richardson R_i , défini par :

$$R_i = \frac{g \cdot z (\theta_a - \theta_s)}{T_a \cdot u^2(z)} \quad (5.1)$$

Avec

$$u(z) = \frac{u_*}{k} \ln\left(\frac{z-d}{z_0}\right) \quad (5.2)$$

Où

$\theta_a(K)$: la température potentielle de l'air

$\theta_s(K)$: la température potentielle de surface

g : l'accélération gravitationnelle

T_a : la température de l'air

$u(z)$: vitesse du vent à la hauteur z

La résistance R_b est liée au transfert des gaz à travers la couche quasi-laminaire en contact direct avec la surface. Elle est influencée à la fois par l'agitation turbulente et la diffusion moléculaire du gaz considéré.

Son expression, établie par Padro and Edwards (1991), est la suivante :

$$R_b = \frac{2}{k u_*} \left(\frac{\nu}{D_i}\right)^{2/3} \quad (5.3)$$

Où

ν : la viscosité cinétique de l'air

D_i : la diffusivité moléculaire d'une espèce i dans l'air

R_c représente la résistance globale de la surface à l'absorption ou à la destruction du gaz. Cette caractérisation est particulièrement complexe pour les surfaces de végétations, en raison de l'interaction entre les aspects physiques, chimiques et biologiques du polluant et de la surface de dépôt. Pour les surfaces de végétation, le modèle le plus couramment utilisé pour décrire R_c est le modèle de résistance de la "grande feuille" du fait de la moindre complexité des processus impliqués (Adon, 2011).

Dans la présente étude, la résistance R_c est paramétrée selon Zhang *et al.* (2002a) :

$$\frac{1}{R_c} = \frac{1 - W_{st}}{R_{st} + R_m} + \frac{1}{R_{ns}} \quad (5.4)$$

$$\frac{1}{R_{ns}} = \frac{1}{R_{cut}} + \frac{1}{R_{ac} + R_{sol}} \quad (5.5)$$

La résistance non-stomatique (R_{ns}) est calculée pour SO_2 et O_3 , puis extrapolée à d'autres espèces gazeuses en se basant sur la similarité de leurs propriétés chimiques et physiques avec l'un ou l'autre de ces gaz (Zhang *et al.*, 2002b). W_{st} correspond à la partie du blocage stomatique, intégrée au modèle de Zhang en cas de présence de rosée ou de pluie.

De plus amples détails sur l'expression de la résistance de surface peuvent être trouvés dans Zhang *et al.* (2003a), Adon (2011).

Annexe 3 : Paramétrisation du module de NO biogénique (ANN)

L'un des développements majeurs effectués lors de la réalisation de ces travaux de thèse est l'inclusion complète et l'activation d'un module pour prendre en compte l'émission des NO biogéniques provenant du sol.

Pour améliorer les concentrations de NO_x en surface, nous avons intégré un algorithme de réseau de neurones artificiels (ANN) dans le modèle communautaire de surface (CLM4.5) de RegCM pour estimer les émissions de NO biogénique à la surface. Les outils de réseaux de neurones artificiels sont apparus comme des alternatives à la modélisation statistique classique dans de nombreuses disciplines, et sont particulièrement utiles pour les phénomènes non linéaires. Les réseaux de neurones artificiels sont conçus pour apprendre à représenter des informations complexes. Le type de ANN utilisé dans cette étude (Figure 1) est le Perceptron Multi-Couches (MLP : Multi Layer Perceptron). Le MLP est le plus largement utilisé en science atmosphérique car il interconnecte des neurones, représentant une cartographie non linéaire entre des vecteurs d'entrée et un vecteur de sortie (Dreyfus *et al.*, 2002). L'objectif du MLP est de trouver l'équation qui relie les variables d'entrée X à la variable de sortie Y avec une fonction mathématique f choisie parmi différentes autres :

$$Y = f(X)$$

Les réseaux de neurones artificiels, inspirés du cerveau humain et basés sur des données environnementales, utilisent des poids pour connecter les entrées aux sorties via une fonction d'activation, offrant ainsi une approche non linéaire pour modéliser des relations complexes. Les données utilisées proviennent de différents climats et types de sols, permettant une application dans des conditions diverses, bien que limitée par la disponibilité des données, comme en Afrique (par exemple Delon *et al.*, 2008, 2010), qui constitue le domaine d'étude. Dans cette étude, nous avons utilisé l'algorithme développé par Delon *et al.* (2007) au Laboratoire d'Aérodynamique à Toulouse. Les émissions de NO à travers la couche de sol sont largement influencées par l'activité microbienne, qui est dictée par les propriétés physiques du sol régissant la diffusion du substrat et l'apport en oxygène (Skopp *et al.*, 1990).

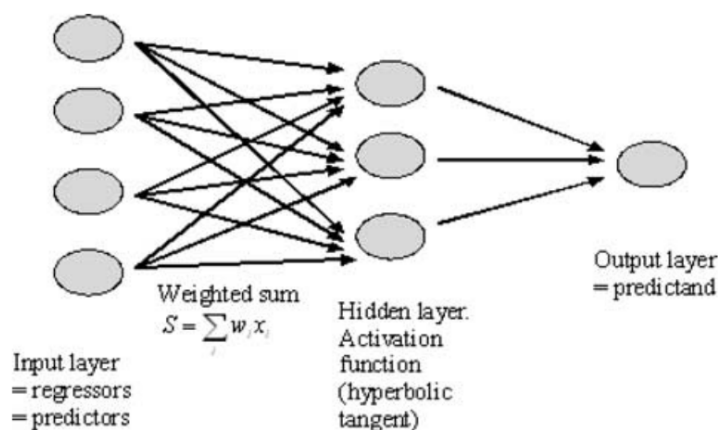


Figure 1 : Schéma illustrant le MLP utilisé pour les simulations ANN.

Source : Delon *et al.* (2007)

Cette paramétrisation est construite avec sept paramètres d'entrée, mettant en évidence divers processus physiques favorisant l'activité microbienne. Ceux-ci incluent la vitesse du vent, le taux de fertilisation, la température de surface, le pourcentage de sable, l'humidité du sol, le pH du sol et la température du sol en profondeur. Par exemple, la vitesse du vent est utilisée comme indicateur des conditions atmosphériques à un moment donné (Delon *et al.*, 2007). Le choix de la température du sol profond est justifié par son influence sur la diffusion de l'oxygène et la minéralisation de l'azote dans le sol (Butterbach-Bahl *et al.*, 2004). Le pourcentage de sable impacte la diffusion de l'eau (Roelle *et al.*, 2001). Le pH est un facteur crucial en raison de son impact sur les mécanismes chimiques ou biologiques (Serca *et al.*, 1994). Il peut également influencer les émissions de NO par le processus de chemo-dénitrification (pH bas) ou l'activité biologique (pH plus élevé) (par exemple, Ormechi *et al.*, 1999; Serca *et al.*, 1994). Le taux de fertilisation indique la quantité d'azote introduite (Sanhueza *et al.*, 1990). Ainsi, le ANN a été utilisé dans cette étude pour analyser la relation entre ces paramètres d'entrée susmentionnés et les flux d'émission de NO, à travers l'équation résultante :

$$\text{NOflux}_{\text{norm}} = w_{24} + w_{25} \tanh(S_1) \\ + w_{26} \tanh(S_2) + w_{27} \tanh(S_3)$$

with

$$S_1 = w_0 + \sum_{i=1}^7 w_i x_{j,\text{norm}}$$

$$S_2 = w_8 + \sum_{i=9}^{15} w_i x_{j,\text{norm}}$$

$$S_3 = w_{16} + \sum_{i=17}^{23} w_i x_{j,\text{norm}}$$

with $j = 1 \rightarrow 7$

$\text{NOflux}_{\text{norm}}$ représente le flux normalisé de NO et les sept paramètres d'entrée mentionnés ci-dessus sont également représentés par x_1 à x_7 (la teneur en eau dans les pores du sol en surface (WFPS : Water-Filled Pore Space, en %), la température du sol en surface (0-5 cm, en °C), la température en profondeur (20-30 cm, en °C), le taux de fertilisation (en $\text{gN ha}^{-1} \text{ jour}^{-1}$), Pourcentage de sable (%) et pH (sans unité) intégrés sur les 30 cm supérieurs du sol, et la vitesse du vent (à 10 m du sol, en m s^{-1}). À chaque variable d'entrée x_i est associé un poids w_i , qui reflète l'importance ou l'influence de cette variable dans la détermination finale du flux de NO. Les poids w_i dans les équations du réseau de neurones artificiel (ANN) sont déterminés via un processus d'apprentissage supervisé. Au départ, des poids aléatoires de faible amplitude sont attribués afin d'éviter qu'une variable n'influence trop fortement la sortie. Le réseau est ensuite entraîné à l'aide de l'algorithme de rétropropagation de l'erreur, qui ajuste de manière itérative les poids pour minimiser l'erreur entre les flux de NO simulés et observés. À chaque itération, l'erreur est calculée, rétropropagée dans le réseau, et les poids sont mis à jour en conséquence. Ce processus se poursuit jusqu'à ce que l'erreur soit minimisée, garantissant ainsi que les poids finaux traduisent fidèlement l'influence de chaque variable environnementale sur les émissions de NO.

La fonction d'activation utilisée est la tangente hyperbolique (tanh), qui introduit la non-linéarité nécessaire à la représentation des interactions complexes entre les variables environnementales et les émissions de NO. Cette fonction normalise les sorties intermédiaires dans un intervalle de -1 à 1 , ce qui stabilise l'apprentissage et évite les valeurs extrêmes.

Les sous-équations (S_1 , S_2 , S_3) structurent le réseau en couches distinctes, chacune capturant des aspects spécifiques des relations entre les variables environnementales et les émissions de NO. Bien que toutes les sous-équations utilisent les mêmes variables d'entrée (x_1 à x_7), elles leur

appliquent des poids différents, ce qui permet au réseau d'explorer plusieurs combinaisons et de mieux représenter les dépendances non linéaires. Chaque sous-équation agit comme un filtre, mettant en évidence certains motifs ou interactions, et leurs sorties sont combinées à l'aide de la fonction tanh pour produire le flux final de NO normalisé. De plus amples informations sur les équations caractéristiques de la paramétrisation de l'algorithme ANN peuvent être trouvées dans Delon *et al.* (2007).

Annexe 4 : Détails sur les indicateurs statistiques

Déviatiion absolue moyenne (MAD) et écart en pourcentage par rapport à la moyenne (APDM)

Ces deux indicateurs sont utilisés pour caractériser la variabilité interannuelle (IAV) des flux de dépôt atmosphérique d'azote réactif (Nr) au cours de la période d'étude.

$$MAD = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \left| F_i - \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n F_i \right|$$

$$APDM = \frac{MAD}{\left(\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n F_i \right)} \times 100 \%$$

où F_i est la valeur du flux annuel de Nr pour l'année i , et n est le nombre total d'années analysées. MAD donne une mesure absolue de l'IAV, tandis que l'APDM en donne une version relative en pourcentage de la moyenne.

Test de Mann–Kendall et pente de Sen

Le test de Mann–Kendall (MK) est un test non paramétrique utilisé pour détecter l'existence d'une tendance monotone dans une série chronologique. Pour une série composée de n observations $(x_1, y_1), (x_2, y_2), \dots, (x_n, y_n)$, la statistique de Kendall S est définie par :

$$S = \sum_{i=1}^{n-1} \sum_{j=i+1}^n \text{sgn}(y_j - y_i) \quad \text{avec} \quad \text{sgn}(\theta) = \begin{cases} +1 & \text{si } \theta > 0 \\ 0 & \text{si } \theta = 0 \\ -1 & \text{si } \theta < 0 \end{cases}$$

Sous l'hypothèse nulle (absence de tendance), S suit une loi normale centrée réduite pour $n > 10$, ce qui permet d'estimer une p-value. Une tendance est considérée significative si cette p-value est inférieure à un seuil donné (ici, 0,10 soit 90% de confiance).

L'amplitude de la tendance est estimée à l'aide de la méthode de la pente de Sen, définie comme la médiane (med) de toutes les pentes calculées entre les paires de points :

$$\beta = \text{med} \left(\frac{y_j - y_i}{x_j - x_i} \right), \quad \text{pour tous } j > i$$

Cette méthode est robuste face aux valeurs aberrantes et ne suppose aucune distribution particulière des données.

Annexe 5 : Biases entre les simulations BASE et BIONO pour NO₂, NH₃ et HNO₃

Tableau I : Biases (en ppb) des simulations BASE, BIONO, CAMS et GEOS-Chem pour le NO₂.

		Mois												
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec	
Savanes sèches	Ba	BASE ^a	-0.47	-0.67	-0.48	-2.01	-2.86	-4.62	-3.28	-2.04	-2.15	-4.97	-1.92	-0.72
		BIONO ^b	-0.43	-0.63	-0.47	-1.84	-2.62	-3.94	-0.48	3.53	0.97	-4.26	-1.85	-0.68
		Red/Inc ^c	-7.42	-6.45	-2.38	-8.38	-8.39	-14.65	-85.46	73.17	-54.86	-14.27	-3.48	-5.57
		CAMS ^d	0.33	0.27	0.74	-0.47	-1.86	-3.85	-2.73	-1.47	-1.52	-4.21	-0.33	0.44
		GEOS-Chem ^e	-0.19	-0.33	-0.44	-2.04	-2.84	-4.54	-3.29	-2.17	-2.39	-5.16	-1.37	-0.33
	Ka	BASE	-0.64	-0.41	-1.54	-2.4	-2.42	-3.02	-1.3	-1.52	-1.13	-1.47	-2.53	-1.27
		BIONO	-0.03	0.19	-0.74	-1.26	-1.03	-1.06	2.25	2.72	1.28	0.08	-1.36	-0.63
		Red/Inc	-95.2	-54.71	-51.67	-47.51	-57.57	-65.08	73.2	79.12	13.22	-94.44	-46.41	-50.69
		CAMS	-0.26	-0.21	-1.4	-2.34	-2.4	-3.06	-1.38	-1.58	-1.18	-1.82	-2.45	-0.88
		GEOS-Chem	0.50	0.24	-1.30	-2.29	-2.47	-3.08	-1.40	-1.66	-1.33	-1.96	-2.31	-0.25
Savanes humides	La	BASE	0.25	-0.84	-1.07	-0.76	-0.31	-0.36	-0.22	-0.35	-0.35	-0.27	0.21	0.51
		BIONO	0.95	-0.13	-0.46	-0.09	0.35	0.27	0.26	0.12	0.28	0.64	1.05	1.26
		Red/Inc	286.37	-84.14	-57.09	-87.57	11.55	-24.72	20.15	-64.49	-18.37	137.2	406.76	146.79
		CAMS	0.16	-0.60	-0.83	-0.65	-0.26	-0.31	-0.17	-0.27	-0.24	-0.31	0.05	0.00
		GEOS-Chem	-0.15	-0.69	-0.97	-0.80	-0.34	-0.38	-0.23	-0.28	-0.24	-0.36	-0.02	-0.04
	Dj	BASE	1.59	-0.16	-0.54	-0.64	-0.4	-0.45	-0.2	0.4	0.66	0.95	-0.09	0.84
		BIONO	2.86	1.18	0.58	0.48	0.77	1	1.62	2.06	2.4	2.15	0.99	2.28
		Red/Inc	79.95	656.78	8.14	-25.51	91.97	121.09	716.21	410.01	264	126.18	1052.96	171.61
		CAMS	-0.32	-1.41	-1.56	-1.62	-1.31	-1.23	-1.23	-0.54	-0.56	-0.55	-1.76	-0.90
		GEOS-Chem	0.99	-1.22	-1.43	-1.55	-1.22	-1.13	-1.13	-0.47	-0.56	-0.55	-0.87	1.02
Forêts	Bo	BASE	-0.80	-1.37	-1.17	-1.33	-1.64	-1.56	-0.98	-1.15	-1.12	-0.82	-0.55	0.16
		BIONO	0.20	-0.41	-0.23	-0.45	-0.77	-0.71	-0.13	-0.35	-0.39	-0.08	0.41	1.19
		Red/Inc	-75.32	-69.82	-80.71	-66.58	-52.96	-54.28	-86.47	-69.38	-65.42	-90.82	-24.59	649.99
		CAMS	-2.15	-2.04	-1.65	-1.64	-1.88	-1.86	-1.34	-1.41	-1.18	-0.91	-0.98	-1.26
		GEOS-Chem	-1.94	-1.93	-1.54	-1.57	-1.82	-1.78	-1.20	-1.28	-1.12	-0.85	-0.90	-0.97
	Zo	BASE	0.88	-1.04	-0.82	-0.74	-0.54	-0.45	0.03	-0.30	-0.36	-0.37	0.05	1.14
		BIONO	1.65	-0.19	0.13	0.21	0.35	0.26	0.60	0.18	0.30	0.40	1.00	1.99
		Red/Inc	87.84	-81.28	-83.92	-71.35	-35.02	-41.79	2046.86	-41.26	-17.48	7.11	1769.01	74.47
		CAMS	-0.53	-1.79	-1.25	-0.93	-0.67	-0.66	-0.25	-0.47	-0.5	-0.51	-0.45	-0.59
		GEOS-Chem	2.12	-0.87	-0.77	-0.78	-0.57	-0.52	-0.07	-0.32	-0.39	-0.45	-0.30	0.80

^a Biases avec la simulation BASE

^b Biases avec la simulation BIONO

^c Réduction / Augmentation du biais par les émissions de BioNO

^d Biases avec la réanalyse CAMS

^e Biases avec le modèle GEOS-Chem

La réduction ou l'augmentation (Red/Inc.) des biais apportée par la simulation BIONO est indiquée en %. Ba : Banizoumbou, Ka : Katibougou, La : Lamto, Dj : Djougou, Bo : Bomassa, Zo : Zoétélé.

Tableau II : Biais (en ppb) pour HNO₃ dans les simulations BASE, BIONO, CAMS et GEOS-Chem.

		Mois												
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec	
Savanes sèches	Ba	BASE ^a		-0.02	-0.05	-0.25	-0.47	-1.36	-0.95	-0.91	-0.51	-0.46	-0.03	-0.05
		BIONO ^b		0.01	-0.04	-0.23	-0.45	-1.32	-0.87	-0.79	-0.36	-0.38	-0.01	-0.04
		Red/Inc ^c		-67.9	-12.35	-6.06	-4.02	-2.75	-8.47	-13.07	-29.26	-18.24	-68.23	-22.09
		CAMS ^d		0.14	0.00	-0.23	-1.20	-0.86	-0.84	-0.41	-0.27	0.18	0.12	
		GEOS-Chem ^e		0.95	0.43	0.74	0.71	-0.24	-0.32	-0.48	-0.02	0.41	0.91	0.49
	Ka	BASE		-0.68		-0.45	-1.18	-1.73	-0.41	-1.01	-0.54	-0.32	-0.14	0.02
		BIONO		-0.64		-0.40	-1.13	-1.67	-0.30	-0.90	-0.44	-0.23	-0.08	0.05
		Red/Inc		-5.75		-10.28	-4.31	-3.51	-25.82	-11.12	-19.24	-29.46	-43.56	148.94
		CAMS		-0.58		-0.22	-1.05	-1.67	-0.38	-1.00	-0.52	-0.24	0.04	0.18
		GEOS-Chem		0.20		0.99	-0.23	-1.11	-0.12	-0.85	-0.30	0.30	1.04	0.95
Savanes humides	La	BASE	-0.07	-0.53	-0.66	-0.52	-0.36	-0.45	-0.16	-0.12	-0.13	-0.19	-0.21	-0.03
		BIONO	0.03	-0.47	-0.63	-0.51	-0.34	-0.42	-0.12	-0.06	-0.09	-0.17	-0.17	0.05
		Red/Inc	-62.64	-10.56	-4.79	-3.34	-4.56	-5.77	-25.28	-47.81	-31.76	-12.32	-20.27	53.7
		CAMS	-0.21	-0.50	-0.60	-0.48	-0.33	-0.43	-0.30	-0.34	-0.16	-0.18	-0.22	-0.14
		GEOS-Chem	1.50	0.18	-0.14	-0.18	-0.15	-0.32	-0.17	-0.21	-0.06	-0.05	0.14	1.23
	Dj	BASE	0.26	-0.27	-0.39	-0.80	-0.68	-0.41	-0.30	-0.54	-0.35	-0.41	-0.27	-0.08
		BIONO	0.36	-0.20	-0.35	-0.77	-0.65	-0.36	-0.23	-0.48	-0.31	-0.34	-0.17	0.01
		Red/Inc	38.57	-26.36	-10.94	-4.56	-5.10	-12.64	-23.90	-10.38	-11.09	-16.50	-37.03	-84.93
		CAMS	0.56	0.04	-0.13	-0.65	-0.60	-0.38	-0.29	-0.53	-0.33	-0.32	-0.03	0.60
		GEOS-Chem	3.71	1.74	0.91	0.03	-0.04	0.06	-0.06	-0.34	-0.09	0.15	1.25	2.90
Forêts	Bo	BASE	-0.27	-0.42	-0.54	-0.45	-0.37	-0.24	-0.34	-0.35	-0.41	-0.17	-0.43	-0.16
		BIONO	-0.23	-0.40	-0.52	-0.44	-0.36	-0.24	-0.33	-0.34	-0.41	-0.17	-0.42	-0.13
		Red/Inc	-13.69	-4.99	-2.27	-1.25	-1.57	-2.68	-2.60	-1.98	-0.43	-0.52	-2.67	-19.02
		CAMS	-0.18	-0.42	-0.52	-0.44	-0.36	-0.18	-0.27	-0.30	-0.41	-0.16	-0.37	-0.00
		GEOS-Chem	1.64	0.16	-0.14	-0.20	-0.16	0.14	0.29	0.04	-0.22	-0.05	-0.02	2.30
	Zo	BASE	0.05	-0.38	-0.26	-0.26	-0.25	-0.44	-0.10	-0.26	-0.18	-0.09	-0.27	-0.13
		BIONO	0.09	-0.36	-0.24	-0.26	-0.24	-0.43	-0.09	-0.25	-0.17	-0.09	-0.26	-0.09
		Red/Inc	84.56	-4.46	-4.67	-2.39	-1.46	-1.22	-7.70	-2.93	-2.48	-1.86	-4.61	-31
		CAMS	-0.03	-0.36	-0.23	-0.24	-0.23	-0.41	-0.08	-0.24	-0.17	-0.08	-0.23	-0.19
		GEOS-Chem	2.67	0.58	0.24	-0.01	-0.07	-0.25	0.03	-0.13	-0.07	0.04	0.38	2.89

^a Biais avec la simulation BASE^b Biais avec la simulation BIONO^c Réduction / Augmentation du biais par les émissions de BioNO^d Biais avec la réanalyse CAMS^e Biais avec le modèle GEOS-Chem

La réduction ou l'augmentation (Red/Inc.) des biais apportée par la simulation BIONO est indiquée en %. Ba : Banizoumbou, Ka : Katibougou, La : Lamto, Dj : Djougou, Bo : Bomassa, Zo : Zoétélié.

Tableau III : Biases (en ppb) des simulations BASE, BIONO, CAMS et GEOS-Chem pour l'ozone (O₃).

		Mois												
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec	
Savanes sèches	Ba	BASE ^a	29.19	29.69	34.20	20.44	7.01	-2.46	-1.29	-1.06	6.64	12.16	28.46	26.72
		BIONO ^b	29.15	29.94	35.02	22.24	9.04	-0.41	-1.00	-1.98	9.28	14.56	29.08	26.87
		Red/Inc ^c	-0.16	0.83	2.40	8.78	28.84	-83.38	-22.87	86.79	39.70	19.67	2.16	0.54
		CAMS ^d	25.22	29.07	35.16	30.02	15.19	3.99	2.12	1.69	11.05	14.96	24.78	23.53
		GEOS-Chem ^e	30.10	33.26	33.00	31.91	21.16	13.62	9.63	6.82	15.19	21.68	32.61	28.59
	Ka	BASE	30.44	26.04	29.86	19.01	-2.64	-9.84	12.94	1.97	7.22	13.00	20.23	29.63
		BIONO	29.93	25.80	29.53	19.42	-1.23	-8.80	13.35	2.25	10.11	15.59	20.23	29.34
		Red/Inc	-1.68	-0.93	-1.09	2.17	-53.40	-10.53	3.19	14.00	40.03	19.91	-0.03	-0.97
		CAMS	25.85	23.27	31.97	24.73	-2.33	-10.77	12.30	0.16	7.59	12.99	17.71	25.86
		GEOS-Chem	33.50	20.24	39.04	36.18	11.03	1.06	17.34	2.52	11.76	22.53	31.00	32.96
Savanes humides	La	BASE	20.45	11.04	7.34	3.78	7.05	15.40	26.23	28.72	24.33	11.89	10.63	14.54
		BIONO	20.77	11.56	8.83	5.70	7.74	15.43	26.18	28.83	23.80	12.02	11.66	15.22
		Red/Inc	1.56	4.72	20.40	50.89	9.80	0.19	-0.21	0.38	-2.17	1.15	9.68	4.65
		CAMS	21.40	12.74	9.60	9.48	10.08	14.54	19.02	17.06	13.27	13.14	11.67	14.96
		GEOS-Chem	32.79	18.14	14.09	14.23	10.85	11.18	14.53	14.41	12.81	12.16	15.58	27.52
	Dj	BASE	24.57	15.22	5.51	-2.63	-1.98	2.01	11.17	11.83	6.95	5.58	9.82	17.57
		BIONO	24.17	15.12	6.36	-0.58	-0.52	2.46	10.28	10.73	6.93	7.39	10.61	17.25
		Red/Inc	-1.64	-0.63	15.52	-78.09	-73.72	22.54	-7.94	-9.33	-0.25	32.48	8.10	-1.87
		CAMS	35.55	27.40	18.09	10.03	7.28	7.30	11.79	10.33	11.14	16.93	23.48	33.12
		GEOS-Chem	41.37	33.38	22.38	17.30	13.17	11.57	13.37	13.34	14.42	19.23	33.01	32.54
Forêts	Bo	BASE	17.38	11.39	6.39	4.63	7.74	12.04	15.46	14.91	5.08	1.96	5.80	17.08
		BIONO	17.86	12.20	8.32	6.27	8.16	11.66	15.08	14.57	5.02	3.11	7.57	17.83
		Red/Inc	2.77	7.12	30.28	35.51	5.45	-3.15	-2.44	-2.30	-1.16	58.58	30.44	4.39
		CAMS	15.00	7.01	1.46	2.09	4.02	9.73	14.20	13.15	6.12	4.94	4.56	13.71
		GEOS-Chem	47.03	22.99	17.44	13.10	14.00	18.42	29.07	23.27	15.65	12.21	20.40	51.97
	Zo	BASE	18.57	6.10	5.01	4.23	2.64	9.56	19.67	23.05	13.45	4.61	4.24	14.92
		BIONO	19.14	6.69	6.31	6.08	3.57	9.65	19.40	23.04	13.02	5.33	6.11	15.39
		Red/Inc	3.09	9.70	26.07	43.94	35.60	0.91	-1.34	-0.07	-3.20	15.57	44.12	3.21
		CAMS	24.77	13.25	9.37	8.52	9.10	18.48	24.52	19.57	13.30	13.02	9.74	19.89
		GEOS-Chem	49.95	25.61	19.73	12.08	9.12	13.48	20.70	18.95	14.30	14.05	23.98	52.49

^a Biases avec la simulation BASE^b Biases avec la simulation BIONO^c Réduction / Augmentation du biais par les émissions de BioNO^d Biases avec la réanalyse CAMS^e Biases avec le modèle GEOS-Chem

La réduction ou l'augmentation (Red/Inc.) des biais apportée par la simulation BIONO est indiquée en %. Ba : Banizoumbou, Ka : Katibougou, La : Lamto, Dj : Djougou, Bo : Bomassa, Zo : Zoétéélé.

PUBLICATION



Influence of biogenic NO emissions from soil on atmospheric chemistry over Africa: a regional modelling study

Eric Martial Yao^{1,2}, Fabien Solmon², Marcellin Adon¹, Claire Delon², Corinne Galy-Lacaux², Graziano Giuliani³, Bastien Sauvage², and Véronique Yoboue⁴

¹Laboratoire des Sciences et Technologies de l'Environnement, Université Jean Lorougnon Guédé, Daloa, Côte d'Ivoire

²Laboratoire d'Aérodologie, Université Paul Sabatier Toulouse III, CNRS, IRD, 14 Avenue Edouard Belin, 31400 Toulouse, France

³Earth System Physics Section, International Centre for Theoretical Physics, 34151 Trieste, Italy

⁴Laboratoire des Sciences de la Matière, de l'Environnement et de l'Energie Solaire, Université Félix Houphouët-Boigny, Abidjan, Côte d'Ivoire

Correspondence: Eric Martial Yao (yaoeric0746@gmail.com) and Fabien Solmon (fabien.solmon@univ-tlse3.fr)

Received: 13 October 2024 – Discussion started: 20 January 2025

Revised: 30 July 2025 – Accepted: 19 August 2025 – Published: 7 October 2025

Abstract. In the context of climate change and increasing anthropogenic pressures in Africa, understanding the interactions between atmospheric chemistry, regional climate, and biogeochemical cycles is critical. This study investigates the potential role of biogenic nitric oxide emissions from African soils (BioNO), particularly in arid and semi-arid ecosystems, as major contributors to atmospheric nitrogen dioxide (NO₂) concentrations and regional atmospheric chemistry. To this end, we rely on a modelling approach based on the RegCM5 regional climate model, including an updated atmospheric chemistry module and, amongst other, a specific parametrization for BioNO emissions. Throughout the paper, the performances of the model are evaluated against various datasets, including in-situ observations from the INDAAF network and chemical reanalyses. Sensitivity studies demonstrate that integrating BioNO emissions into the model enhances the accuracy of simulated NO₂, nitric acid (HNO₃), and ozone (O₃) seasonal cycles and surface concentrations, and reduces simulated biases compared to ground based observations. Despite these improvements, notable discrepancies still exist, in particular between simulated surface ozone concentrations and in-situ measurements. Similar biases are also observed in a chemical reanalysis model and in a state-of-the-art chemistry transport model used for comparison. In addition to highlighting the impact and added value of including BioNO fluxes in regional atmospheric chemistry models, our findings also highlight the suitability of the RegCM5 coupled system for studying regional climate, chemistry and nitrogen cycle interactions over Africa.

1 Introduction

Tropical Africa is a major source of gaseous and particulate emissions, affecting the regional and global atmospheric chemistry and climate. In addition to large chemical sources linked to anthropogenic activities (biomass burning, megacities), there are also substantial biogenic emissions which can strongly interact with the regional tropospheric composition in the tropics (e.g., Aghedo et al., 2007).

Nitrogen emissions originating from soil microbial processes are an important component of these emissions (Fudjoe et al., 2023). Indeed, soil microbial processes, such as nitrification and denitrification involve the production of reactive gaseous compounds released to the atmosphere (Delmas et al., 1995; Medinets et al., 2015; Schreiber et al., 2012). Soil NO (referred to as BioNO) emissions dominate the global net nitrogen oxide exchange between ecosystems and the atmosphere (Ludwig et al., 2001), and above-canopy emission estimates ranging from 4.7–26.7 Tg N yr⁻¹ (Davidson and Kinglerlee, 1997; Ganzeveld et al., 2002; Hudman et al., 2012; Jaeglé et al., 2005; Müller, 1992; Steinkamp and Lawrence, 2011; Vinken et al., 2014; Yan et al., 2005; Yienger and Levy, 1995). BioNO emissions play a crucial role in the formation of particles and key atmospheric gaseous compounds, such as O₃ and HNO₃ (Liu et al., 2020; Mosier, 2001; Vinken et al., 2014; Williams et al., 2009). BioNO emissions are influenced by a variety of environmental and physical factors, including wind speed, floristic composition, nitrogen input (from organic and synthetic fertilization and atmospheric deposition), plant cover, soil temperature, soil moisture content, soil pH, and soil texture (Delon et al., 2007; Williams et al., 1992). Among these factors, soil moisture plays a dominant role in tropical regions, where seasonal rainfall patterns lead to marked fluctuations (particularly intense in Sahelian regions) in soil water content. This results in nitrogen accumulation during dry periods and important emission pulses following the onset of the rainy season (Austin et al., 2004; Meixner and Yang, 2006; Johanson et al., 1988; Yienger and Levy, 1995). Precipitation and soil moisture are recognized as key drivers of microbial processes that regulate NO fluxes (Liu et al., 2009; Li et al., 2022). While soil temperature and nitrogen content also influence NO fluxes, particularly in temperate zones, the pulse effect, which is driven by soil moisture, remains especially pronounced in tropical soils, where short but intense rainfall events can trigger sharp increases in NO emissions.

In tropical Africa, estimating BioNO emissions is challenging due to a lack of observational data (e.g., Jaeglé et al., 2004; Van Der A et al., 2008). Nevertheless, global and regional modelling approaches, have been proposed to quantify BioNO emissions (e.g., Hudman et al., 2012; Stohl et al., 1996; Stehfest and Bouwman, 2006; Yienger and Levy, 1995; Yan et al., 2005) and evaluate the potential impact on atmospheric chemistry. For instance, Williams et al. (2009) used an inventory of biogenic emissions derived from multi-

annual simulations of the ORCHIDEE (Organising Carbon and Hydrology In Dynamic Ecosystems) vegetation model (Lathiere et al., 2006) to study the influence of BioNO and BVOC (Biogenic Volatile Organic Compound) emissions on Equatorial Africa's tropospheric composition. The global chemistry-transport model simulations revealed that NO emissions from soils in Africa contribute between 2 % and 45 % of tropospheric ozone production. Delon et al. (2008) used a neural network-based parameterization coupled with a mesoscale model to investigate the impact of BioNO emissions on NO_x and O₃ production in the lower troposphere over Equatorial Africa for a specific day (6 August 2006) during the AMMA (African Monsoon Multidisciplinary Analysis) campaign in the Sahel. Their findings indicate an increase in tropospheric O₃ and NO_x concentrations in the lowest few kilometres of the atmosphere when BioNO emissions are included. Steinkamp et al. (2009) used the ECHAM5/MESSy atmospheric chemistry model (EMAC) to examine the influence of BioNO on lower tropospheric NO_x, O₃, PAN, HNO₃, OH, and the lifetime of CH₄ (τ_{CH_4}). Their results revealed that BioNO largely contributes to NO_x levels, especially in the tropics. Moreover, BioNO notably raises OH concentrations, thereby increasing the global troposphere's oxidizing capacity and resulting in a 10 % decrease in τ_{CH_4} .

Integrating interactive BioNO emissions into regional climate system models allows studying the impact of present and future climate change and variability, including temperature and precipitation patterns, on BioNO emissions. This understanding is crucial for predicting possible future emission trends, potential changes in the chemical environment, and developing effective mitigation strategies. BioNO emissions can also affect the formation of ozone and other secondary pollutants, which has implications for air quality as well as climate forcing and responses. These knock-on effects can be calculated using coupled climate-chemistry systems. In addition to being able to include BioNO emissions and the consequent effects on secondary pollutants, the regional climate modelling approach adopted in this paper can also be used to study regional environmental disturbances such as land use and agricultural changes. Furthermore, since climatic and land use gradients are particularly important in west and central Africa, the dynamical downscaling capabilities offered by the regional climate modelling approach are also of particular interest for capturing regional contrasts in emissions and processes at play.

One goal of the present study is to evaluate and extend such a system based on the International Centre for Theoretical Physics Regional Climate Model version 5 (ICTP RegCM5) (Giorgi et al., 2023). A second goal is to estimate and analyse the regional impact of BioNO emissions (from soils and vegetation) on key tropospheric species relevant to the atmospheric nitrogen cycle. The latter plays an important role in the chemistry of the atmosphere as well as the functioning of aquatic and terrestrial ecosystems and

agrosystems (McNeill and Unkovich, 2007; Vitousek et al., 1997). This N cycle is markedly disrupted by anthropogenic activities (agriculture, fossil fuel combustion, and biofuels) (Galloway et al., 2008). This issue is particularly concerning in tropical regions like Africa, where rapid population growth and seasonal cycles from natural and anthropogenic sources strongly contribute to changes in N emissions (Adon et al., 2010). We focus on NO_2 , HNO_3 , and O_3 because these species are tightly interconnected and are involved in a range of environmental and health impacts. NO_2 , a key reactive nitrogen species, contributes to the formation of HNO_3 and O_3 . HNO_3 is formed when NO_2 reacts with other substances in the atmosphere, and is an important contributor of rainfall acidity deposition and nitrogen supply to ecosystems. O_3 , a powerful oxidant, is influenced by the presence of NO_2 and plays a crucial role in HNO_3 formation. It also contributes to a range of environmental and health impacts, including reduced crop yields due to its phytotoxic effects and influences on ecosystem functioning (e.g., Ainsworth et al., 2012). Understanding the concentrations and fluxes of these species is essential for assessing nitrogen management and potential risks in Africa.

The study is structured as follows: Sects. 2 and 3 provide a description of the modelling context and developments, as well as the measurement sites and relevant databases used. Section 4 focuses on evaluating model performance in simulating key regional climatic features affecting emissions and tropospheric chemistry. Section 5 provides a more detailed analysis of simulated BioNO. Section 6 addresses the model results and limitations regarding the impact of BioNO on key atmospheric chemistry components.

2 Model description

2.1 The regional climate-chemistry model RegCM5

The International Centre for Theoretical Physics (ICTP) Regional Climate Model version 5 (RegCM5, discussed in detail in Giorgi et al., 2023) is the latest version of a long-standing regional modeling system originally developed at the National Center for Atmospheric Research (NCAR) and maintained by the ICTP (Dickinson et al., 1989; Giorgi and Bates, 1989; Giorgi et al., 2012). RegCM has been widely applied for regional-scale climate and atmospheric composition studies across various regions (Giorgi and Mearns, 1999; Pal and Coauthors, 2007; Shalaby et al., 2012). Compared to previous versions, a key development has been the inclusion of the MOdello LOcale in H coordinate (MOLOCH) non-hydrostatic dynamical core (Davolio et al., 2020). This has improved model efficiency, notably with regard to climate convection-permitting (CP) simulations (e.g., Ban et al., 2021; Coppola et al., 2020; Lucas-Picher et al., 2021; Pichelli et al., 2021; Prein et al., 2015).

This development is also important for atmospheric chemistry, which uses a large number of tracers, as it reduces the

numerical cost of advection in the context of long-term simulations. As for previous model versions, several options are available for the model physics. In the present study we run successive tests (not discussed further here) to retain a model configuration based on the RRTM (Rapid Radiative Transfer Model) for shortwave and longwave radiation, the University of Washington turbulence scheme (UW, Bretherton et al., 2004), the Nogherotto et al. (2016) bulk microphysics scheme and the Tiedtke convection scheme (Tiedtke, 1989). Continental surface processes are treated by the Community Land Model, version 4.5 (CLM4.5, Oleson et al., 2013) which also provides important coupling variables used in the atmospheric chemistry interface, such as surface resistances, soil humidity and temperature. The meteorological boundary conditions are provided every six hours, from the ERA5 reanalysis (the fifth-generation ECMWF global atmospheric reanalysis; Hersbach et al., 2020). The sea surface temperature data is provided by the Optimal Interpolated Weekly (OI_WK) dataset.

Atmospheric chemistry processes used in this study are based on approaches initially developed in Solmon et al. (2006) and Solmon et al. (2021) for aerosols, and Shalaby et al. (2012) and Ciarlo et al. (2021) for gas phases. The chemical reaction solver is based on the CBM-Z photochemical mechanism module (Shalaby et al., 2012; Zaveri and Peters, 1999). It allows a comprehensive coverage of regionally and globally relevant species as well as the reactions involved in photo oxidant chemistry, while maintaining a good precision and numerical efficiency. CBM-Z notably includes key prognostic species such as O_3 , NO_x , CO, VOCs. CBM-Z builds upon the widely used CBM-IV mechanism (Gery et al., 1989) and incorporates additional processes that enhance its applicability from urban air quality modeling to regional and global scales (Shalaby et al., 2012). It improves the representation of key chemical pathways by explicitly treating methane and ethane, refining parameterizations for higher alkanes, and incorporating a more detailed isoprene chemistry (Zaveri and Peters, 1999). Additionally, CBM-Z accounts for peroxy radical interactions and nighttime NO_3 chemistry, which are relevant in NO_x -limited environments. However, as with most reduced chemical mechanisms, CBM-Z uses a lumped VOC representation, which may oversimplify NO_x -VOC interactions, potentially affecting the formation of secondary species such as HNO_3 and O_3 (Carter, 2010). While these simplifications can introduce uncertainties, CBM-Z remains widely used due to its computational efficiency and its ability to capture key atmospheric trends (Shalaby et al., 2012; Zaveri and Peters, 1999; Gery et al., 1989; Yarwood et al., 2010). The mechanism employs the Radical Balance Method (RBM), ensuring a stable and efficient numerical integration of chemical equations. Although more explicit mechanisms exist, their computational cost remains prohibitive for long-term regional climate simulations (Cao et al., 2021), making CBM-Z a suitable compromise between accuracy and efficiency for this study. Recent

developments, such as CBM-6 (Cao et al., 2021) and CBM-7 (Yarwood and Tuite, 2024), offer improved treatments of VOCs and radical chemistry, including better representation of oxygenated VOCs and updated kinetic data. However, these mechanisms remain more computationally demanding and are not yet widely implemented in regional climate models. It is also worth noting that biogenic and anthropogenic VOC emissions are potentially affected by potentially large uncertainties over Africa (Marais et al., 2014), and these uncertainties should be taken into account when considering the potential added value of a more complex chemical scheme.

Gas-aerosol partitioning is calculated using the ISORROPIA-II thermodynamic equilibrium model (Fountoukis and Nenes, 2007; Nenes et al., 1998), which determines the partitioning of semi-volatile inorganic species and the composition of sulfate–nitrate–ammonium aerosols.

Dry deposition processes and fluxes are parameterized according to Zhang et al. (2003), for 31 gas phase species in the model. Key inputs for the Zhang deposition scheme include biophysical and physiological parameters, which are provided to the model using pre-defined land use categories and mapping (Dickinson, 1986; Zhang et al., 2002). Some parameters, such as LAI (Leaf Area Index), roughness length, wind, surface temperature, etc. are provided through the CLM4.5 interface. In the present study, slight modifications have been made in the deposition scheme to account for African regional specificities:

- a. Default ground resistance (R_g) values for ozone, based on Zhang et al. (2003), are used. For the oceanic domain, the R_g value for ozone was reduced from 2000 to 1000 s m^{-1} to obtain dry deposition velocities more consistent with those reported in the literature (e.g., Charusombat et al., 2010; Wu et al., 2011; Zhang et al., 2002). The default resistance led to values that underestimated ozone deposition and caused an overestimation of surface ozone concentrations over oceans. This adjustment better reflects the higher reactivity and solubility of ozone in oceanic surfaces, improving the accuracy of simulated concentrations.
- b. The friction velocity (u^*) is a crucial parameter for calculating aerodynamic resistance (r_a). According to Padro et al. (1991), the equation used to calculate r_a requires that the Richardson number (R_{ib}) be maintained below 0.21 under stable conditions. This is particularly important in tropical forested areas with weak mean winds, where both u^* and deposition velocity are often lower than those reported in the literature (e.g. Adon et al., 2013; Zhang et al., 2003). For our simulation, we recalculated u^* from interactive u^* provided by the CLM4.5 scheme, to ensure compliance with this criterion, imposing minimum thresholds of 0.4 m s^{-1} in forests and 0.1 m s^{-1} in savannas, based on statistical analysis, showing that $R_{ib} > 0.21$ for u^* below these

values, consistent with Adon et al. (2013). While the 0.4 m s^{-1} threshold may seem high compared to other studies, such as temperate forest studies (e.g., Flechard et al., 2011), tropical African forests typically experience weaker winds and higher atmospheric stability, justifying a higher threshold in this region. Moreover, at the spatial resolution of RegCM and with parameterized convection, modeled wind speeds and u^* are uncertain since intermittent subgrid thermal gusts are not resolved, which can lead to an underestimation of the effective u^* . Hence, these minimum thresholds represent a pragmatic correction applied only within the dry deposition calculations to avoid unrealistic aerodynamic resistances and associated biases in deposition velocities. This correction does not affect u^* used elsewhere in the model.

The wet deposition flux is initially parameterized following the approach developed in the MOZART chemistry transport model (Emmons et al., 2010; Horowitz et al., 2003). 26 CBM-Z tracers are considered for wet removal through large-scale and convective precipitation processes. Compared to Shalaby et al. (2012) and Ciarlo et al. (2021), we substantially improve the wet deposition parameterizations by developing a new interface which directly uses cloud to rainwater production and precipitation rate terms taken from both the Nogherotto et al. (2016) stratiform and the Tiedtke (1989) convective rain rates. This enhances the interaction between atmospheric chemistry and convective precipitation processes in African tropical rainy seasons, yielding wet deposition estimates closer to literature values (e.g., Delon et al., 2010; Ossouhou et al., 2021).

Anthropogenic and biomass burning emissions are treated using a preprocessing interface designed for the regional interpolation and chemical aggregation of different possible inventories. In this study, the monthly, 0.1 degree resolution emission inventories from the Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAM5, version 6.2) are used for non-biomass burning emissions (Soulie et al., 2024). For biomass burning, we use daily emissions from GFED4 (Global Fire Emissions Data, version 4) with a 0.25° spatial resolution (Randerson et al., 2018). For both inventories, the lumping of emitted VOC species to effective CBMZ species has been performed following a method similar to Huijnen et al. (2019). The biogenic VOC emissions are calculated on-line as part of CLM45 using the embedded MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature; Guenther et al., 2006) scheme. Only isoprene fluxes are passed to the atmospheric chemistry and transport interfaces (Strada et al., 2023).

Finally, an important development compared to Shalaby et al. (2012) and Ciarlo et al. (2021) concerns the chemical initial and lateral boundary conditions. We replace the standard monthly climatology approach by a new interface using six-hourly CAMS chemical reanalysis (Inness et al., 2019;

Wagner et al., 2021), consistent with the ERA5 dynamical forcing. For important chemical and aerosol species, this allows us to more explicitly represent the influence and variability of long range chemical transport events that may affect the domain via the boundaries.

2.2 The BioNO emission parameterization

Interactive BioNO emissions are included following the empirical approach developed in Delon et al. (2007) (D2007), which is based on an Artificial Neural Network (ANN) supervised learning algorithm applied to several databases. In some regions, such as Africa, few in situ measurements of BioNO are available, leading to inaccurate estimates of BioNO emissions, which in turn affects the estimation of species concentrations in the lower troposphere (Jaeglé et al., 2005). The main advantage in using the ANN algorithm is that it is linked to varying environmental parameters of specific regions of interest (such as African tropical regions), providing effective BioNO emissions whatever the type of soil and/or climate (Delon et al., 2007). This enhances responsiveness compared to traditional inventories (Delon et al., 2008). For now, this ANN algorithm has been used only in Tropical African climates (Delon et al., 2007, 2012, 2015). NO emissions are largely influenced by microbial activity, determined by the physical properties of the soil (porosity, soil texture, soil moisture etc.) which also govern substrate diffusion and oxygen supply (Skopp et al., 1990). D2007's parameterization includes seven explicative variables, including wind speed, fertilisation rate, surface temperature, sand percentage, soil moisture, soil pH, and soil temperature at depth (20–30 cm). Wind speed is used as an indicator of varying atmospheric conditions. Soil temperature at depth relates to oxygen diffusion and nitrogen mineralization in the soil (Butterbach-Bahl et al., 2004). The sand percentage impacts water diffusion (Roelle et al., 2001). pH is a crucial factor due to its impact on chemical or biological mechanisms (Serca et al., 1994), can also influence NO emissions through chemo-denitrification process (low pH) or biological activity (higher pH) (e.g., Ormeci et al., 1999; Serca et al., 1994). Finally, the fertilisation rate is key for including the amount of externally introduced nitrogen (Sanhueza et al., 1990). The pH and fertilisation rates are determined using external databases: soil pH data are obtained from IGBP-DIS (International Geosphere Biosphere Programme-Data and Information System; IGBP-Dis, 1998), and fertilisation rates, including N fertilizer and N manure, are sourced from Potter et al. (2010). The other variables are integrated on-line within the model.

The final NO fluxes are calculated at each model time step, using the following equations:

$$\text{NOflux}_{\text{norm}} = w_{24} + w_{25} \tanh(S_1) + w_{26} \tanh(S_2) + w_{27} \tanh(S_3) \quad (1)$$

with

$$\begin{aligned} S_1 &= w_0 + \sum_{i=1}^7 w_i x_{j,\text{norm}} \\ S_2 &= w_8 + \sum_{i=9}^{15} w_i x_{j,\text{norm}} \\ S_3 &= w_{16} + \sum_{i=17}^{23} w_i x_{j,\text{norm}} \end{aligned} \quad (2)$$

with $j = 1 \rightarrow 7$.

$\text{NOflux}_{\text{norm}}$ represents the normalised NO flux (in $\text{g N ha}^{-1} \text{d}^{-1}$) and the seven inputs mentioned above are represented by x_1 to x_7 : surface Water-Filled Pore Space (WFPS, in %), surface soil temperature (0–5 cm, in $^{\circ}\text{C}$), soil temperature at depth (20–30 cm, in $^{\circ}\text{C}$), fertilisation rate (in $\text{g N ha}^{-1} \text{d}^{-1}$), sand percentage (%) and pH (unitless) integrated over the topsoil layer (upper 30 cm), and wind speed (10 m a.g.l. – above ground level, m s^{-1}), respectively. Each input x_i is associated with a weight w_i , which represents the strength or influence of that input in determining the final NO flux.

The weights w_i in the ANN equations are determined using a supervised learning process. Initially, small random weights are assigned to prevent any input variable from dominating. The network is trained using a backpropagation algorithm, which iteratively adjusts these weights to minimize the error between predicted and observed NO fluxes. In each iteration, the error is calculated, propagated backward, and the weights are updated accordingly. This process continues until the error is minimized, ensuring final weights accurately reflect the influence of each input variable on NO emissions. In this study, we use the ANN structure from Delon et al. (2007), but apply the updated weights provided in Delon et al. (2008), a better representation of the emission pulses in semi arid ecosystems due to strong dry-wet seasonality whereas this feature is less obvious in wet savannas and forests. These revised weights have also been used in subsequent applications of the model (e.g., Delon et al., 2010, 2012, 2015).

The tanh (hyperbolic tangent) function is used as the activation function, introducing non-linearity essential for capturing complex interactions between environmental variables and NO emissions. It normalizes intermediate outputs to a range between -1 and 1 , stabilizing learning and preventing extreme values.

The sub-equations (S_1 , S_2 , S_3) structure the network into distinct layers, each capturing different aspects of the relationships between the environmental variables and NO emissions. While all sub-equations use the same input variables (x_1 to x_7), they apply different weights, allowing the network to explore multiple combinations and better capture non-linear dependencies. Each sub-equation acts as a filter, highlighting specific patterns or interactions, and their out-

puts are combined using the tanh function to produce the final normalized NO flux.

It should be noted that although the ANN formulation was originally calibrated over semi-arid ecosystems, it is here applied to a broad range of ecosystems, including dense forested areas. Its performance may therefore be less reliable in humid tropical forests, where the controlling factors of NO emissions (e.g. soil moisture, canopy shielding) differ from the calibration environments. This limitation is further discussed in Sect. 5.

2.3 Model experiments

To test the ability of RegCM5 to simulate the African climate, BioNO emissions and to evaluate the effect of BioNO emissions on atmospheric chemistry, we conducted two different simulations which are listed in Table 1. The simulations cover the period from January 2010 to February 2013, which includes a variety of climatic conditions and seasonal variations. The first two months are used as spin-up time for both experiments and are not considered in the analysis of the results.

- BASE run: with biomass burning and anthropogenic emissions, without BioNO emissions.
- BIONO run: with biomass burning, anthropogenic emissions and BioNO emissions.

The model has a spatial resolution of $30\text{ km} \times 30\text{ km}$, with 35 vertical levels from the surface to 3.6 hPa. The model time step is 210 s.

The model domain extends from 19.35° S to 35.48° N in latitude and from 24.98° W to 41.65° E in longitude, covering a large portion of the African continent. This domain was carefully selected to encompass key climatic and atmospheric processes relevant to the study, including the West African Monsoon, the Saharan Heat Low, and regions strongly influenced by biomass burning and anthropogenic emissions. While it does not cover the entire continent, the domain focuses on the most active regions for BioNO emissions and includes all of the INDAAF (International Network to study Depositions and Atmospheric chemistry in Africa) measurement sites used for model evaluation. Figure 1 shows the model domain and the locations of the INDAAF measurement sites.

3 Data and study sites

3.1 Study sites and ground-based observation of pollutants

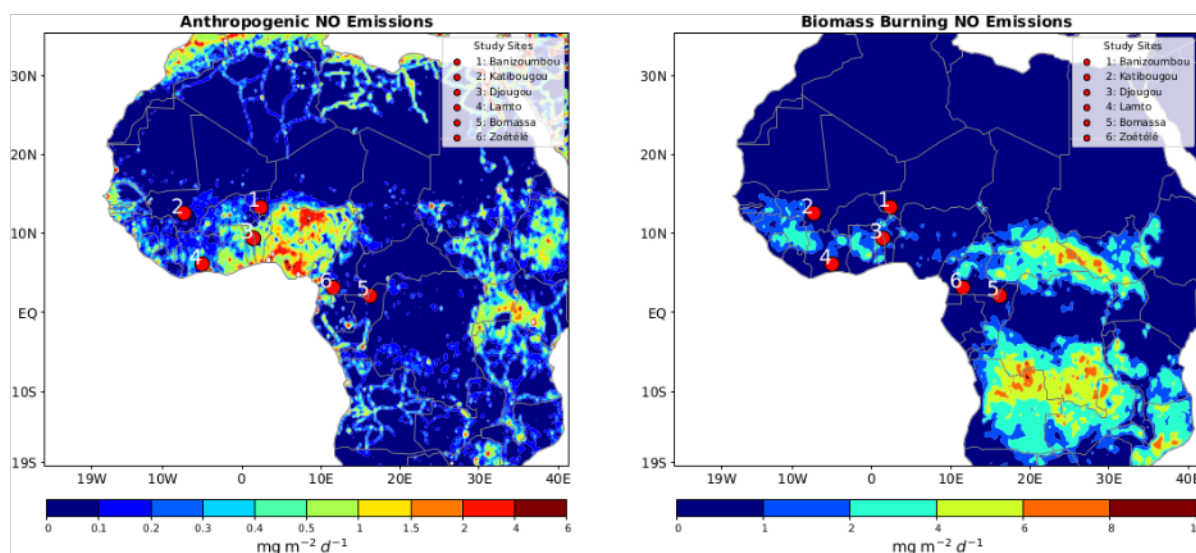
O_3 , NO_2 and HNO_3 concentrations are measured in the framework of the INDAAF long-term monitoring project. INDAAF, which is part of the Aerosol Cloud and Trace gases

Infrastructure (ACTRIS-Fr), is a long term monitoring service to study the evolution of the atmospheric chemical composition and deposition in Africa. Gaseous concentrations are measured monthly at different sites in West and Central Africa and are publicly available (INDAAF, 2021). Datasets are referenced for each site: Banizoumbou (Laouali et al., 2023), Katibougou (Galy-Lacaux et al., 2023a), Djougou (Akpo et al., 2023), Lamto (Galy-Lacaux et al., 2023e), Bomassa (Galy-Lacaux et al., 2023f) and Zoétélé (Ouafo-Leumbe et al., 2023). We use observations from six sites representative of the main african ecosystems (Fig. 1, Table 2): Dry savannas (Banizoumbou, Katibougou), Wet savannas (Lamto, Djougou) and equatorial Forests (Bomassa, Zoétélé). Monitoring at Banizoumbou, Katibougou, Lamto, Bomassa and Zoétélé started in 1998, with the Djougou site joining in 2005. Atmospheric gas concentrations (NO_2 , HNO_3 , O_3) are performed using passive sampling techniques based on the methodology outlined by Ferm et al. (1994). Developed by the Laboratory of Aerologie (LAERO) in Toulouse within the framework of the INDAAF project, these passive samplers have undergone rigorous testing across a range of tropical and subtropical regions (Adon et al., 2010; Carmichael et al., 2003; Ferm and Rodhe, 1997). Continuous measurements are ongoing at all INDAAF sites, and measurements were performed throughout the entire study period. Although there are some missing data for certain months in specific ecosystems, the overall dataset provides a comprehensive overview and is used as a reference dataset for model evaluation.

A detailed description and evaluation of the INDAAF passive samplers can be found in previous African studies, encompassing both rural and urban sites (Adon et al., 2010; Bahino et al., 2018; Carmichael et al., 2003; Ferm and Rodhe, 1997; Galy-Lacaux et al., 2009; Galy-Lacaux and Modi, 1998; Osohou et al., 2019, 2023). At each INDAAF site, two passive samplers are exposed simultaneously to ensure reproducibility, and the monthly concentrations are calculated as the average of these duplicate samples (Osohou et al., 2023). Upon completion of the exposure period, all samplers, including field blanks, undergo laboratory analysis using ionic chromatography. LAERO has participated in the bi-annually WMO-GAW (World Meteorological Organization – Global Atmosphere Watch) quality assurance program since 1996, which evaluates the precision of ionic chromatography measurements for trace compounds. Results, accessible under reference number 700 106 (QA/SAC – Americas, 2025), consistently demonstrate analytical precision of 5 % or better for all ions. Additionally, the measurement accuracy of passive samplers, assessed through covariance with duplicates, was estimated at 9.8 % for NO_2 , 20 % for HNO_3 , and 10 % for O_3 (Adon et al., 2010). Detection limits, determined using the exposure period and field blanks for the studied duration, are reported as 0.2 ± 0.1 ppb for NO_2 , 0.07 ± 0.03 ppb for HNO_3 , and 0.1 ± 0.1 ppb for O_3 .

Table 1. Summary of simulations performed for the analysis of regional climate and trace gas in this article.

Name	Period	Spin-up	Description
BASE	Jan 2010–Feb 2013	Jan–Feb 2010	Base run as release
BIONO	Jan 2010–Feb 2013	Jan–Feb 2010	Base run + BioNO emissions

**Figure 1.** Annual anthropogenic and biomass burning NO emissions (averaged over 2010–2013) and INDAAF measurement site locations, showing the full extent of the model domain used in the simulations. Measurement sites include Banizoumbou (Ba), Katibougou (Ka), Djougou (Dj), Lamto (Lam), Bomassa (Bom), and Zoétélé (Zoe).

3.2 Climatic and chemical evaluation datasets

For further model evaluation, we use a variety of sources, including data from meteorological stations and satellites, as well as reanalysis products. Table 3 summarises information about the meteorological variables used from each database. Precipitation data are obtained from the Tropical Rainfall Measuring Mission 3B42-version 7 (TRMM; Huffman et al., 2007). Temperature data are sourced from the Climatic Research Unit version TS4.03 (CRU; Harris et al., 2020). For circulation dynamics, we use ERA5 data (Hersbach et al., 2020). CRU data is exclusively based on in situ observations, while TRMM data originates from satellite observations. As mentioned above, ERA5 reanalysis data is derived from a combination of in situ measurements and satellite observations assimilated in a Numerical Weather Prediction model simulation. By using multiple sources of observational data (in situ and satellite) as well as reanalysis estimates, we are able to quantify and account for uncertainties in parameter estimates – precipitation (Pr), wind field (U , V , and W), and 2 m surface temperature (T). This is particularly relevant for Africa due to the limited availability of in situ measurements and the complexity of the regional climate.

For the chemical evaluation, model outputs are compared with the INDAAF in-situ measurement database. To complement this local evaluation we also compare model outputs to CAMS chemical reanalysis data (Inness et al., 2019; Wagner et al., 2021), to outputs from the state-of-the-art chemistry transport model GEOS-Chem (Goddard Earth Observing System-Chemistry; GEOS-Chem, 2020), to ground-level NO_2 concentrations derived from OMI and TROPOMI satellite NO_2 observations (Cooper et al., 2022) and to the OMI/Aura-derived tropospheric NO_2 columns dataset (Lamsal et al., 2021) over the period 2010–2013.

GEOS-Chem is a global 3D Chemical Transport Model (CTM) driven by assimilated meteorological observations from NASA's Goddard Earth Observing System (GEOS). It models the atmospheric chemical composition at both local to global scales.

CAMS provides chemical reanalysis data by assimilating diverse observational sources, including satellite and in-situ measurements, which improves the accuracy of the simulated chemical species.

The ground-level NO_2 concentrations are derived from OMI (Ozone Monitoring Instrument) and TROPOMI (TROPospheric Monitoring Instrument) satellite observations, fol-

Table 2. Site coordinates and location information. Dry savannas (ws: June–September, ds: October–May), Wet savannas (ws: April–October, ds: November–March), Forests (ws: March–November, ds: December–February). ws: wet season, ds: dry season.

Ecosystems	Station	Latitude, longitude	Type of soil and/or vegetation	Climate	Country
Dry savannas	Banizoumbou	13°18' N, 02°22' E	91.2 % Sandy soils, Tiger bush – fallow bush	Sahelian	Niger
	Katibougou	12°56' N, 07°32' W	Sandy soils, Deciduous shrubs	Sudano-Sahelian	Mali
Wet savannas	Djougou	09°39' N, 01°44' E	Ferrallitic and ferruginous soil, Mosaic of dry forests and savannah	Sudano-Guinean	Benin
	Lamto	06°13' N, 05°02' W	Ferruginous soils, Grass, shrub and tree stratum	Guinean	Côte d'Ivoire
Forests	Bomassa	02°12' N, 16°20' E	Dense evergreen forest	Equatorial	Republic of Congo
	Zoétélé	03°10' N, 11°49' E	Dense evergreen forest	Equatorial	Cameroon

Table 3. Summary of validation data for physical parameters.

	TRMM	CRU	ERA5
Variables	Pr	T	T, U, V and W
Spatial resolution	0.25°	0.5°	0.25°
Spatial coverage	Ocean/Land	Land	Ocean/Land
Period	1997–2020 (6H)	1901–2018 (mensual)	1940–present (6H)

lowing the methodology of Cooper et al. (2020b, 2022). In this approach, tropospheric NO₂ column densities are first retrieved using OMI, then downscaled to a finer resolution using TROPOMI data, and finally converted to surface NO₂ concentrations using the GEOS-Chem chemical transport model. The latter is constrained using ground-based monitoring data to improve surface-level estimates. The resulting dataset provides annual mean NO₂ concentrations at a resolution of approximately 1 km × 1 km.

OMI/Aura-derived tropospheric NO₂ columns data come from the Level-3 daily global gridded 0.25 × 0.25° OMI NO₂ product (OMNO2d), which provides total and tropospheric NO₂ columns for all atmospheric conditions and is cloud-screened for sky conditions where cloud cover is less than 30%. With its high spatial resolution (0.25° × 0.25°), this dataset is well-suited for studying large-scale NO₂ distributions in the troposphere.

Both CAMS and GEOS-Chem are subject to model uncertainties, however CAMS includes an additional observational constraint which reduces uncertainty compared to the GEOS-Chem model. The calculation of the TROPOMI-derived NO₂ data also introduces uncertainty, particularly in the conversion from column density to surface concentration. These include potential errors in satellite retrievals and air mass factor calculations, which can introduce biases in the estimated surface NO₂. For example, Cooper et al. (2020a) report a mean fractional bias of 13% between TROPOMI-derived and OMI-derived surface NO₂ concentrations, highlighting the influence of vertical mixing assumptions and spatial resolution on retrieval accuracy.

4 Regional climate validation

The ability of the RegCM5 model to accurately simulate the African climate is evaluated in terms of seasonal and daily means over the period of 3 years. An exhaustive analysis of climate simulations is out of the scope of this paper. We report here model performance in terms of temperature, precipitation and monsoon circulation, which are key features of the African climate and strongly impact atmospheric chemistry.

Figure 2 compares the ERA5 reanalysis to simulated mean wind at 850 hPa i.e. in the monsoon layer. RegCM5 manages to reproduce the main features of the monsoon circulation with a mean characteristic southwesterly flow of up to 17° N, and Harmattan-like circulation over northern Africa. However, the model tends to underestimate the intensity of the mean monsoon flow from the Gulf of Guinea to the Sahel. The monsoon front and the Saharan Heat Low (SHL) are also reasonably captured by the RegCM5 model, although the SHL amplitude is underestimated (Fig. 2). This could explain or contribute to the weaker Monsoon flux and the underestimation of sahelian precipitation discussed later (Fig. 3c), which is consistent with the connections described in Peyrillé et al. (2007), Lavaysse et al. (2009), Chauvin et al. (2010), Lavaysse et al. (2010) and Evan et al. (2015). Outside of the monsoon domain, the minimum central-equatorial African wind is consistently captured, compared to the ERA5 data.

RegCM5 mostly captures the patterns and spatial gradients of the 2 m surface temperature from hot Sahara regions to colder tropical forests, however, there is a cold bias over the northern Sahel/Southern Sahara (ranging from −5 to −1 °C) during the monsoon season (JJA: June–July–August) (Fig. 3f). Attributing surface temperature bias to a

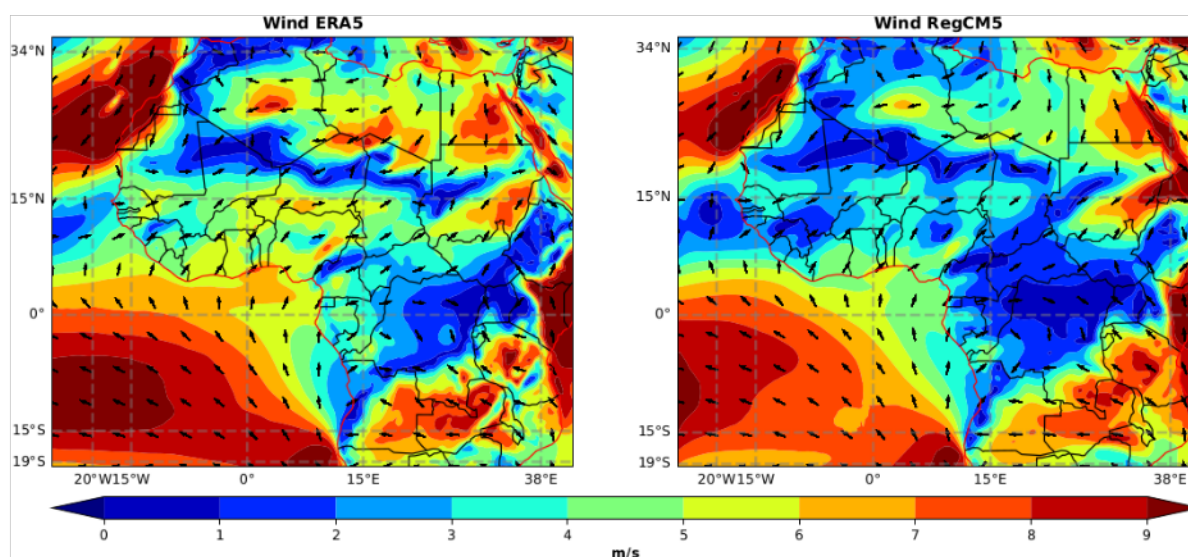


Figure 2. JJA (June–July–August) Monsoon wind speed at 875 hPa for ERA5 reanalysis and RegCM5 simulation.

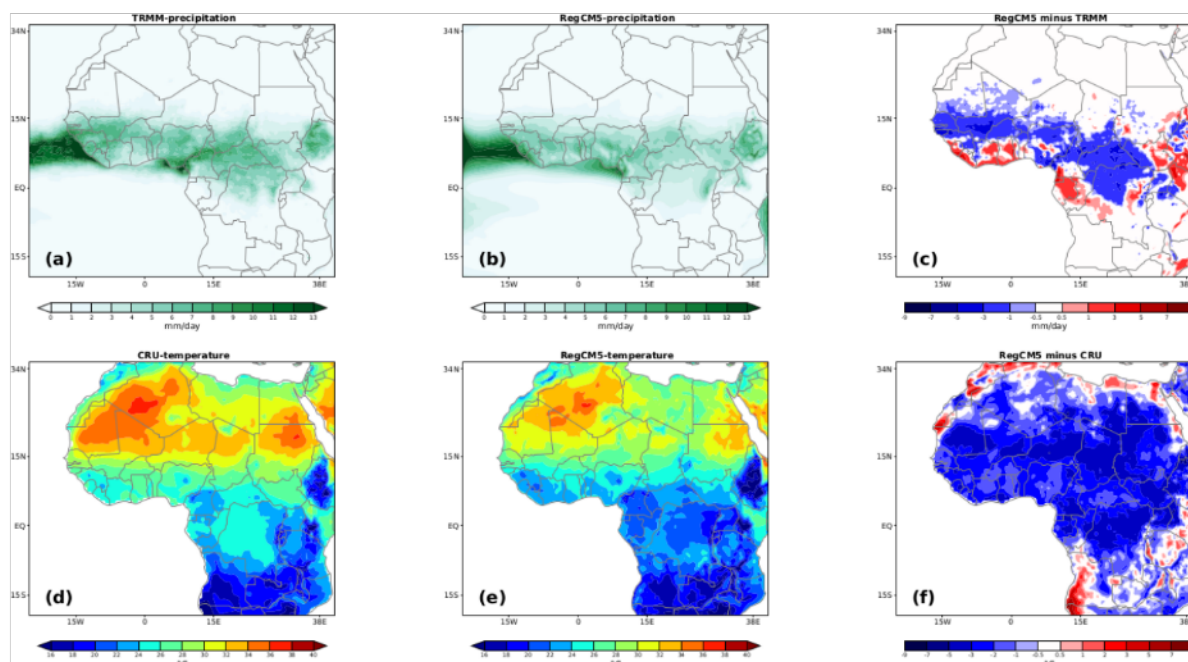


Figure 3. Summer (JJA) means Precipitation and Surface Temperature Biases (TRMM and CRU vs. RegCM5). Units: Precipitation in mm d^{-1} , Temperature in $^{\circ}\text{C}$.

specific cause is difficult due to surface-atmosphere interactions and feedbacks (Sylla et al., 2012; Tadross et al., 2006). For the Sahelian and Sahara regions, RegCM5 shows a negative bias which is likely linked to a bias in the surface radiative budget, which in turn depends on simulated surface

Shortwave (SW) and Longwave (LW) net radiation (related to surface radiative parameters). It may also be a result of possible excessive high level cloudiness (e.g., Sylla et al., 2012; Zittis et al., 2016) or/and aerosol estimations (e.g., Lavaysse et al., 2011; Wang et al., 2015). In the SHL region,

this cold bias is consistent with a weaker monsoon flux and lower precipitation in the Sahel. In contrast, in the equatorial region the temperature bias could be linked, to excessive cooling induced by overestimated precipitations values. Sylla et al. (2012) showed that cold bias in surface temperature is generally consistent with positive rainfall bias. Locally, the overestimation of surface temperature over coastal central Africa has also been observed by Mbienda et al. (2023). This bias in Central Africa might stem from inadequate modelling of the low-level cloud cover that is typical of this area (Philippon et al., 2019). For precipitation, simulated values vary from 0 to more than 13 mm d^{-1} over the study region, with a spatial and seasonal patterns of precipitation consistent with TRMM observations (Fig. 3a and b). In summary, the most predominant biases in our simulation are an underestimation of precipitation values in the Sahel and Central Africa, and an overestimation closer to equatorial regions (from -5 to -0.5 in Sahel/Central Africa and from 1 to 5 mm d^{-1} in the Cameroon Highlands). The RegCM5 model successfully reproduces the rain belt over the Sahelian region, associated with the InterTropical Convergence Zone (ITCZ), stretching from the mountains of Darfur in East Africa to the Guinea Highlands and downstream into the Atlantic. In some subregions, observational data sets do not fully agree. For instance, in comparison to GPCP data, which is consistent with gauge-based precipitation datasets in Africa (Sylla et al., 2013), TRMM data shows weaker precipitation values over East Africa, the Guinea Highlands, and the Cameroon Highlands (Nikulin et al., 2011, 2012). This variability amongst observations should be kept in mind when evaluating the model's results. Model precipitation is extremely sensitive to the choice of parameter combinations used in the physics configurations, such as convection, land surface scheme, boundary layer, etc. The number of parameter combinations is large and model optimization is a complex and often time-consuming task (e.g., KhayatianYazdi et al., 2021). Using the parameterization evaluated above, the precipitation and temperature biases remain reasonable, especially considering the range of bias shown by state-of-the-art CMIP6 (Coupled Model Intercomparison Project phase 6) Global Climate Models and CORDEX (COrdinated Regional Downscaling EXperiments) RCMs for African climate simulations (e.g., Bucchignani et al., 2018; Zittis et al., 2016).

For the west African region, Fig. 4 shows a time-latitude Hovmoeller diagram of precipitation averaged within zones between 10°W and 10°E for the RegCM5 model and TRMM observational data. The three characteristic phases of the African monsoon (Hourdin et al., 2010; Koné et al., 2022; Sultan et al., 2003) can be observed in both the simulated results and the observational data. For TRMM, the onset of the rainy season occurs in mid-April and extends until mid-June, as evidenced by the core of the rainfall band along the Guinea coast between approximately 4 and 7°N , while the simulations show a delayed onset from mid-May to June with lower intensity rainfall. In TRMM observations,

the monsoon phase itself is characterised by a shift of the rainfall maximum band, between July and September, reaching 15°N . For this phase, the simulations show a consistent northward precipitation shift, but the maximum does not penetrate as far north as in the observations, consistent with the underestimation of Sahelian precipitation values pointed out earlier. The monsoon withdrawal is observed with precipitation gradually shifting towards the coast. The late season rainfall is more intense in our simulations compared to TRMM. These characteristic seasonal patterns are adequately captured by the RegCM5 model compared to state-of-the-art climate models.

Additional details on the distribution of daily temperature and precipitation intensities over the Sahel region are provided in the Supplementary Information (Fig. S2), using Probability Density Functions (PDFs) compared to ERA5 and TRMM respectively. These support the model's reasonable performance on daily-scale variability.

After the evaluations discussed above, we consider that the performance of the simulation model is sufficiently good to support further analysis focusing on atmospheric chemistry.

5 BioNO fluxes

Since soil moisture is an important driver of microbial activity and BioNO emissions (Skopp et al., 1990), we evaluate simulated soil moisture by comparing it to the Famine Early Warning Systems Network Land Data Assimilation System FLDAS (McNally et al., 2017; McNally, 2018) (Fig. 5). As shown in the figure, JJA soil moisture is greatest in subregions dominated by dense vegetation (forest regions: -7 to 4°N) and in regions where precipitation events are more intense. Despite the overall slight underestimation of simulated soil moisture compared to FLDAS observed data, especially in Saharan regions, RegCM5 captures the spatial distribution of soil moisture both in DJF (December–January–February) and JJA. FLDAS integrates various observational datasets and uses advanced modelling techniques to provide soil moisture data, but its accuracy in arid regions like the Sahara is uncertain due to sparse in-situ data and the extreme dryness of the environment. Soil moisture data in such regions are often derived from remote sensing sources like microwave satellites, which can struggle with accuracy in arid zones where ground measurements are extremely rare (Rao et al., 2022). The spatial distribution of BioNO emissions reflects the influence of the different explicative variables considered in the D2007 ANN. In both seasons, weak BioNO emissions in Saharan regions (above 16°N), are associated with low N content, no N input, low soil moisture and sandy soils. A high percentage of sand in the soil leads to increased evaporation and drainage rates (Delon et al., 2008), which prevents the soil from retaining enough water to support the microbial processes responsible for NO emissions. Between 8 and 16°N (Sahel), locations with high BioNO emission re-

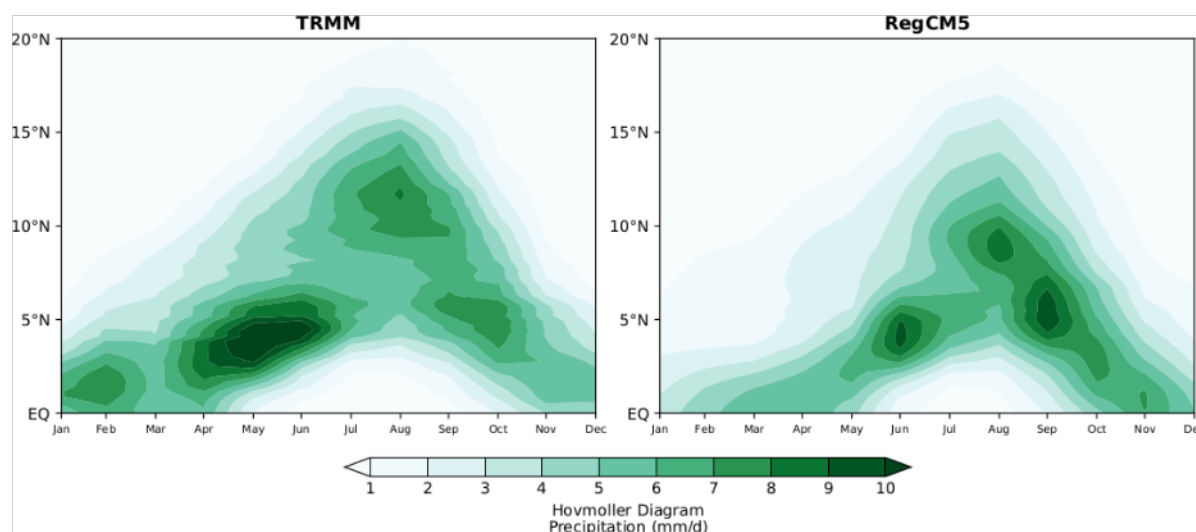


Figure 4. JJA Hovmöller diagram of monthly precipitation (mm d^{-1}) averaged between longitudes 10° W and 10° E of the study period.

sult from a combination of large soil moisture, latitudinal distribution of soil pH, and important nitrogen input (shown in Potter et al., 2010). The seasonal variability of Sahelian emission hot spots is mostly driven by soil humidity, as illustrated in Fig. 5. There is also a substantial canopy inhibition factor in the region of large LAI which, for example, reduces forest emissions to the atmosphere. As outlined in Delon et al. (2008), the Artificial Neural Network (ANN) algorithm used in this study tends to be more suitable for the Sahel region compared to forested region because it is primarily trained on data from semi-arid regions and temperate zones. In forested areas, factors such as dense canopy cover (affecting soil temperature and moisture), higher organic matter content (affecting nitrogen cycling dynamics), and different microbial communities influence soil processes and NO emissions (Davidson et al., 2000; Pilegaard, 2013) differently compared to semi-arid and temperate zones. This discrepancy highlights the need for further region-specific training data to improve the model's accuracy in diverse ecosystems.

The limited flux measurements for BioNO emissions in Africa make a systematic evaluation of the model challenging. In this study, simulated BioNO emissions range from 0.02 to $7 \text{ mg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$, corresponding to seasonally averaged flux values ranging from 0.1 to $37.52 \text{ ng N m}^{-2} \text{ s}^{-1}$. This is within the range found by both Delon et al. (2008) (from 0.43 to $6.52 \text{ mg m}^{-2} \text{ d}^{-1}$) and Davidson and Kinglerlee (1997) (from 0.5 to $28 \text{ ng N m}^{-2} \text{ s}^{-1}$). The simulated BioNO values are also consistent with measured values from the flight B227 observed data of the British Aerospace 146 (BAe-146) under the Facility for Airborne Atmospheric Measurements (FAAM) program: 0.8 to $35 \text{ ng N m}^{-2} \text{ s}^{-1}$, but remain greater than estimations from Ganzeveld et al. (2002) for the Sahel region: 2.32 to

$11.6 \text{ ng N m}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Our simulated BioNO are in good agreement with NO fluxes from soil emissions measured during the DACCIWA field campaign West Africa) in June and July 2016, which ranged from 0 to $48.39 \text{ ng N m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ (Pacifico et al., 2019). Feig et al. (2008) also obtained NO flux fields in the range of 4.7 to $27.01 \text{ ng N m}^{-2} \text{ s}^{-1}$, but for South Africa. A summary of these estimates is presented in Table 4. Additional measurements of BioNO emissions from wet African savannas can be found in Table 7 of Delon et al. (2012).

Over the whole simulation domain, the total amount of nitrogen emitted due to BioNO emissions range between 0.01 and 4.4 Tg N per month. If we downscale for the Sahel region (10° W– 10° E, 10 – 20° N, corresponding to an area of $2.3 \times 10^6 \text{ km}^2$) as done in Stewart et al. (2008), the simulated emissions range from 0.0006 to 0.23 Tg N per month. This value is consistent with both Stewart et al. (2008)'s estimates of 0.03 to 0.3 Tg N for 2 months (July and August) and Yan et al. (2005)'s estimates of $1.373 \text{ Tg N yr}^{-1}$ for all of Africa. Delon et al. (2010) calculated an annual estimate of $0.35 \text{ Tg N yr}^{-1}$ over the Sahel region. Over the same region (the Sahel), Vinken et al. (2014) estimated total annual BioNO emissions to be $0.52 \text{ Tg N yr}^{-1}$, using a top-down soil NO_x emission inventory for 2005 based on retrieved tropospheric NO_2 column from the Ozone Monitoring Instrument (OMI).

Our total estimate is also consistent with Williams et al. (2009), who estimated BioNO emissions for the same Sahel region ($0.575 \text{ Tg N yr}^{-1}$) based on biogenic emission inventories provided by Granier et al. (2000) and Lathiere et al. (2006). It is worth noting that our estimated emission fluxes, particularly in the Sahel region, are higher than those reported by Simpson and Darras (2021), which were calculated in the framework of the CAMS project using the EMEP

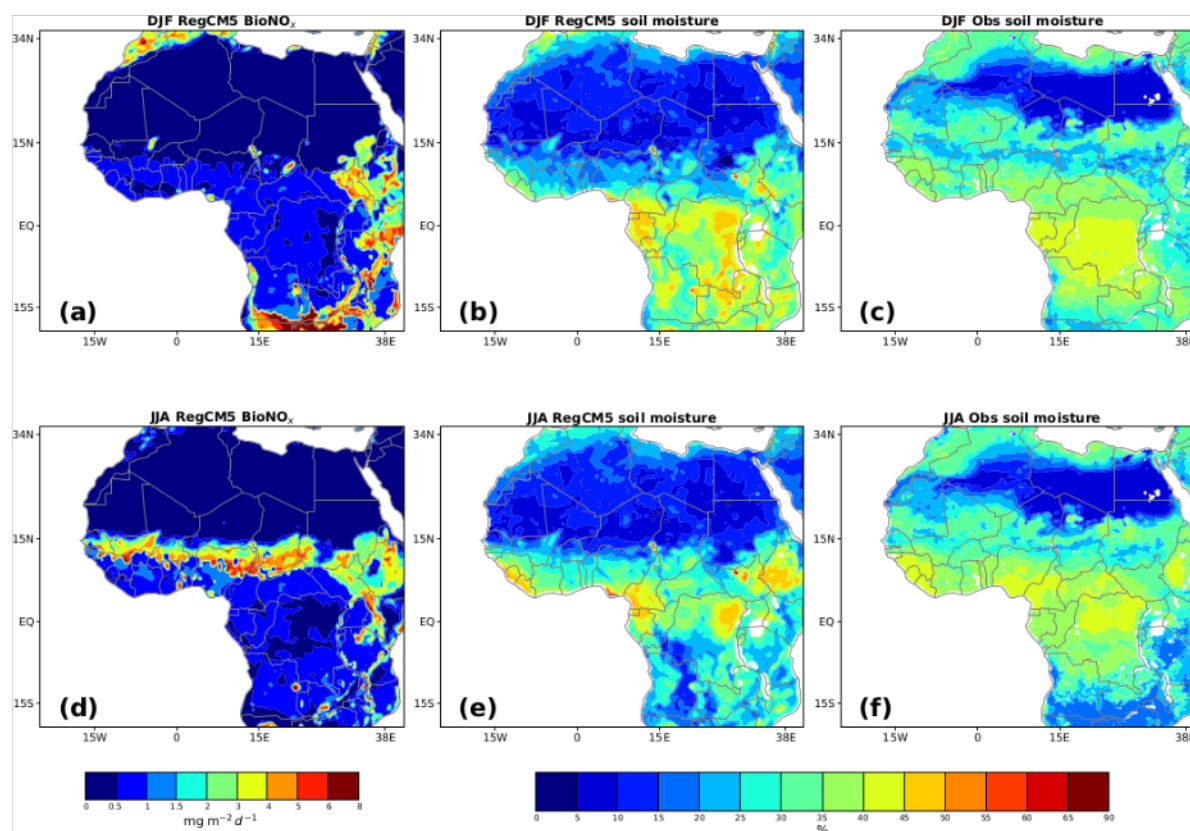


Figure 5. Simulated BioNO emissions (in $\text{mg m}^{-2} \text{d}^{-1}$) and Soil Moisture Comparison for DJF and JJA Seasons: Analysis Using FLDAS Noah Land Surface Model L4 for 10–40 cm Soil Depth (in %).

Table 4. Summary of some BioNO emissions estimates from literature.

Regions/Biomes	Range of fluxes ($\text{ng N m}^{-2} \text{d}^{-1}$)	Period	Citation
Sahel	2.32–35.29	August 2006	Delon et al. (2008)
Sahel	2.32–11.6	–	Ganzeveld et al. (2002)
Niger	0.8–35	August 2006	Flight B227 (*FAAM, 2018)
West Africa	0–48.39	June–July 2016	Pacifico et al. (2019)
Semi-arid savanna (South Africa)	4.7–27.01	June 2003–October 2005	Feig et al. (2008)
Semi arid sahelian rangeland (Dahra, Sénégal)	2–10	July 2012, July 2013, November 2013	Delon et al. (2017)

* FAAM: Facility for Airborne Atmospheric Measurements.

MSC-W model (Meteorological Synthesising Centre – West of the European Monitoring and Evaluation Programme, EMEP). Their estimates ranged from 0 to $3.5 \text{ mg m}^{-2} \text{d}^{-1}$ over the study period and region. In our study, the ANN algorithm incorporates additional surface controlling parameters, which may explain why our model yields higher emission estimates.

6 RegCM5 simulations and the impact of BioNO emissions

6.1 Regional and local nitrogen

6.1.1 NO_2 concentration

We first analyse the simulated seasonal surface nitrogen (NO_2 and HNO_3) concentrations for the BASE run over

the domain, in comparison with the CAMS reanalysis (Inness et al., 2019; Wagner et al., 2021) and outputs from the GEOS-Chem model. The variability of simulated NO₂ concentration over the domain of interest is primarily driven by regional biomass burning emissions (see Fig. 1). We hence observe consistent spatial and seasonal patterns between RegCM5 simulations, CAMS and the GEOS-Chem model (Fig. 6) reflecting the general spatial agreement between the different biomass burning emission inventories considered in these models. However, sub-regional details, for instance over west Africa, can be clearly distinguished in the higher resolution models (RegCM5 and CAMS) but not in the coarser GEOS-Chem model. Compared to the CAMS reanalysis and to GEOS-Chem, the RegCM5-BASE estimates lower surface NO₂ concentrations (about 0.7–0.9 ppb less), especially in the Sahel regions during the summer. In the Biomass burning regions (see Fig. 1), these differences are less visible. The biomass burning regions, which are primarily located in the central (in DJF) and southern (in JJA) parts of Africa, are areas where extensive burning occurs.

This difference in NO₂ concentration can be attributed to differences in NO emissions (biomass burning, anthropogenic inventories and BioNO) as BioNO emissions were not accounted for in the BASE simulation (cf. Sect. 3). Indeed, CAMS includes BioNO emissions from a fixed climatology based on the Precursors of Ozone and their Effects in the Troposphere (POET) database for 2000 (Granier et al., 2005) inventory, while GEOS-Chem parameterizes soil NO emissions dynamically using the Hudman et al. (2012) scheme. Differences in biomass burning injection heights and nitrogen fluxes considered in RegCM5 versus CAMS and GEOS-Chem could also explain differences in surface concentrations. The introduction of BioNO fills this gap to some extent, by increasing surface NO₂ concentrations, bringing them closer to, and sometimes exceeding CAMS values (Fig. 6b and f). This is especially apparent in transitional ecosystems such as savannas and grasslands (see Fig. S1 in the Supplement). To assess the potential importance and to quantify the impact of BioNO emissions on lower troposphere NO₂, we consider the difference between the BioNO and the BASE simulations (Fig. 7). The plots are shown for a vertical cross section averaged between –10 and 10° E, from 4 to 21° N.

The comparison between RegCM5 simulations and satellite-derived NO₂ data highlights both the strengths and limitations of the model (Figs. 8 and 9). The model simulation is evaluated against two observational datasets: the surface-level NO₂ concentrations derived from OMI/TROPOMI and the tropospheric NO₂ columns from OMI/Aura datasets, both of which are detailed in Section 3.2. The RegCM5 model simulation captures the general spatial distribution of NO₂ across the region. Model results and satellite data both show high concentrations of NO₂ in areas such as Sahel and forested regions, where biomass burning plays a preponderant role (see Fig. 1). However, the model

overestimates NO₂ levels compared to both TROPOMI-derived surface NO₂ and OMI-derived tropospheric NO₂ columns, particularly when BioNO emissions are included. This overestimation could be due to several factors, including the way in which biogenic and biomass burning emissions are represented in the model, and the inherent uncertainties in the satellite-derived data. The use of ground-monitoring data to constrain models may introduce biases, particularly in regions with sparse monitoring data. On the other hand, as detailed by Cooper et al. (2022), uncertainties in the conversion of satellite-observed NO₂ column densities into surface concentrations can lead to errors. These uncertainties include potential errors of around 10 % in the retrieval of slant columns from satellite radiances and errors ranging from 23 % to 37 % in the calculation of air mass factors. Thus, the apparent overestimation of NO₂ by RegCM5 compared to TROPOMI (Fig. 8) may not only result from model biases but also from the uncertainties in the processing of satellite data. In addition, a spatial correlation analysis shows moderate agreement between the RegCM5 simulations and the OMI/Aura-derived tropospheric NO₂ columns (Fig. 9). Specifically, the Pearson Correlation Coefficient (PCC) indicates a correlation of 0.41 when excluding BioNO emissions (BASE run) and a correlation of 0.37 when BioNO emissions are included in the simulation. This suggests that the addition of BioNO emissions reduces the overall correlation with the OMI observations. One potential explanation for this reduction could be that OMI measures the entire tropospheric column, while the model's representation of NO₂ distribution may be influenced by uncertainties in vertical mixing and emission sources. In particular, diffuse biogenic emissions or localized sources (e.g., Ossouhou et al., 2019) may not be fully captured in the satellite retrievals, potentially affecting the correlation. Despite some discrepancies in specific regions, the spatial correlation suggests a reasonable alignment of NO₂ patterns between the model and the satellite observations, particularly in regions where biomass burning and other large-scale processes dominate.

At the regional scale, the effect of incorporating BioNO emissions using the ANN algorithm, leads to an overall increase in NO₂ seasonal mean concentrations ranging from 0 to 2–4 ppb. This increase also appears in the lower troposphere, as illustrated in Fig. 7. The maximum increase occurs over the Sahel region (especially 10–21° N) and can reach up to 3 ppb in JJA, consistent with increased BioNO fluxes in this region. We note a general positive correlation between the BioNO emissions (Fig. 5a and d) and the difference between the BIONO and BASE simulations at the surface level (Fig. 16a and d). This increase in surface NO₂ concentrations over the domain is consistent with Delon et al. (2008), who report a local BioNO induced NO₂ increase by up to 0.9 ppb at 4° E and between 7–21° N for August. Based on global simulations, Steinkamp et al. (2009) found an increase in global NO_x mean mixing ratio in the lower troposphere reaching 7 % and 17 % for DJF and JJA respectively.

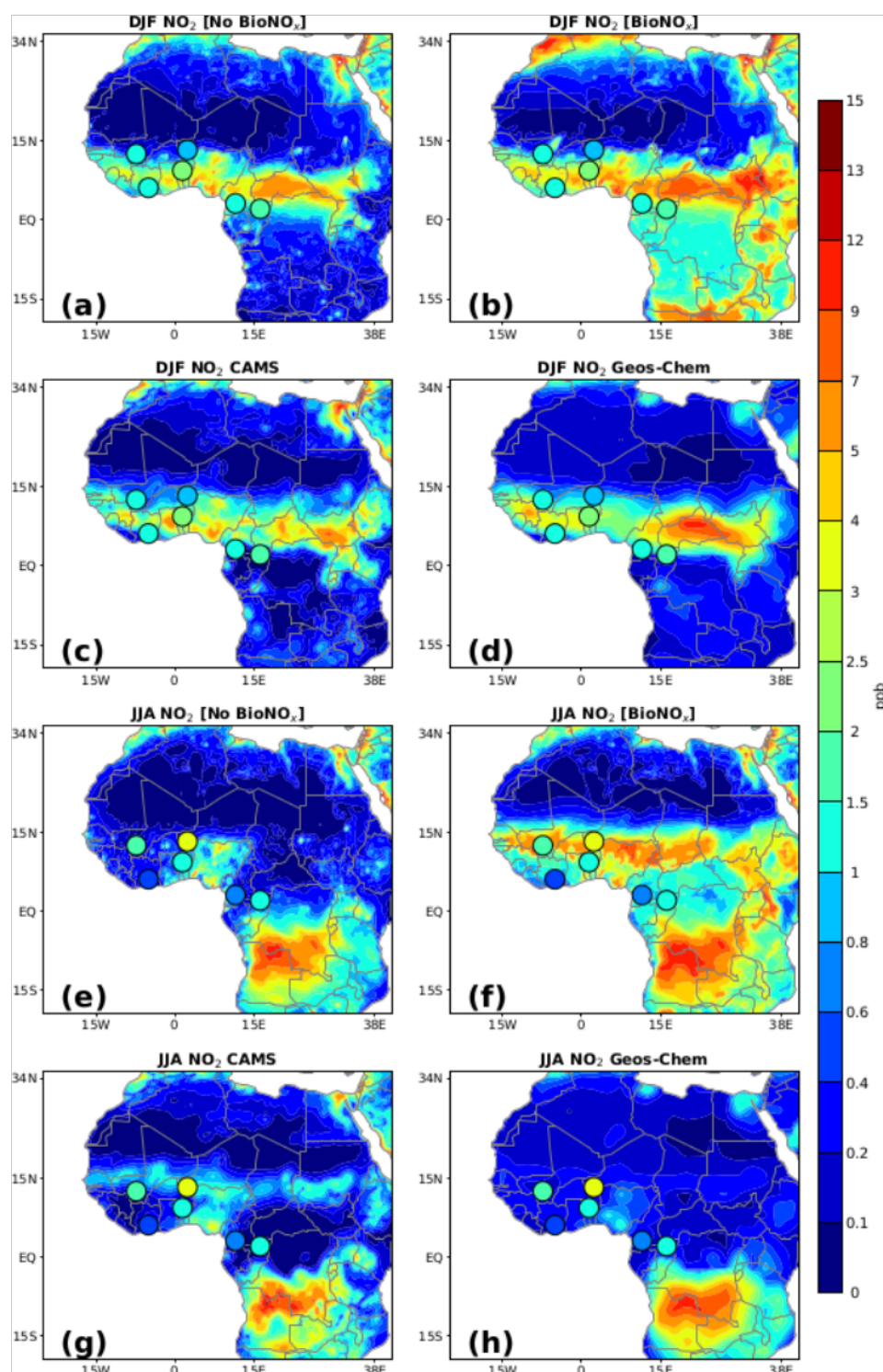


Figure 6. Comparison of BASE and BioNO simulations of surface NO_2 against the CAMS reanalysis and the GEOS-Chem model for DJF and JJA seasons. The INDAAF measurement values are overplotted and represented by small circles on the map.

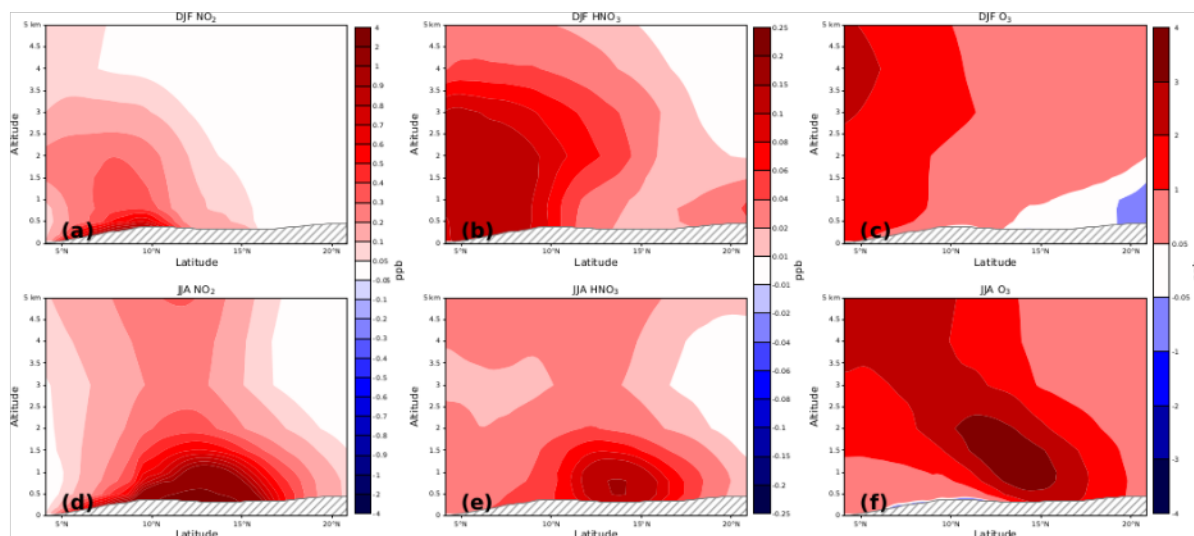


Figure 7. DJF and JJA differences (BIONO – BASE) in NO_2 (a, d), HNO_3 (b, e) and O_3 (c, f) concentrations, on the transect 4–21° N averaged between 10° W–10° E. Units are in ppb.

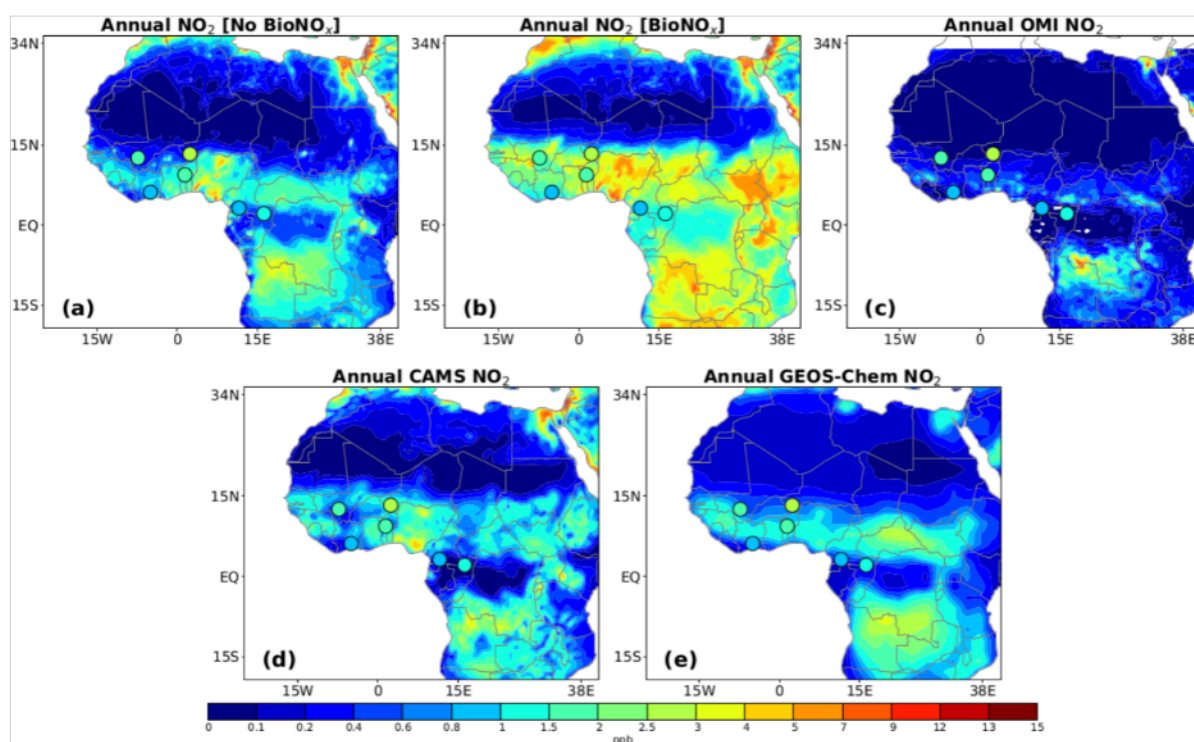


Figure 8. Comparison of BASE and BioNO simulations of annual mean surface NO_2 concentrations (ppb) against OMI and TROPOMI-derived surface-level concentrations over 2010–2013, the CAMS reanalysis and the GEOS-Chem model. The INDAAF measurement values are overlotted and represented by small circles on the map.

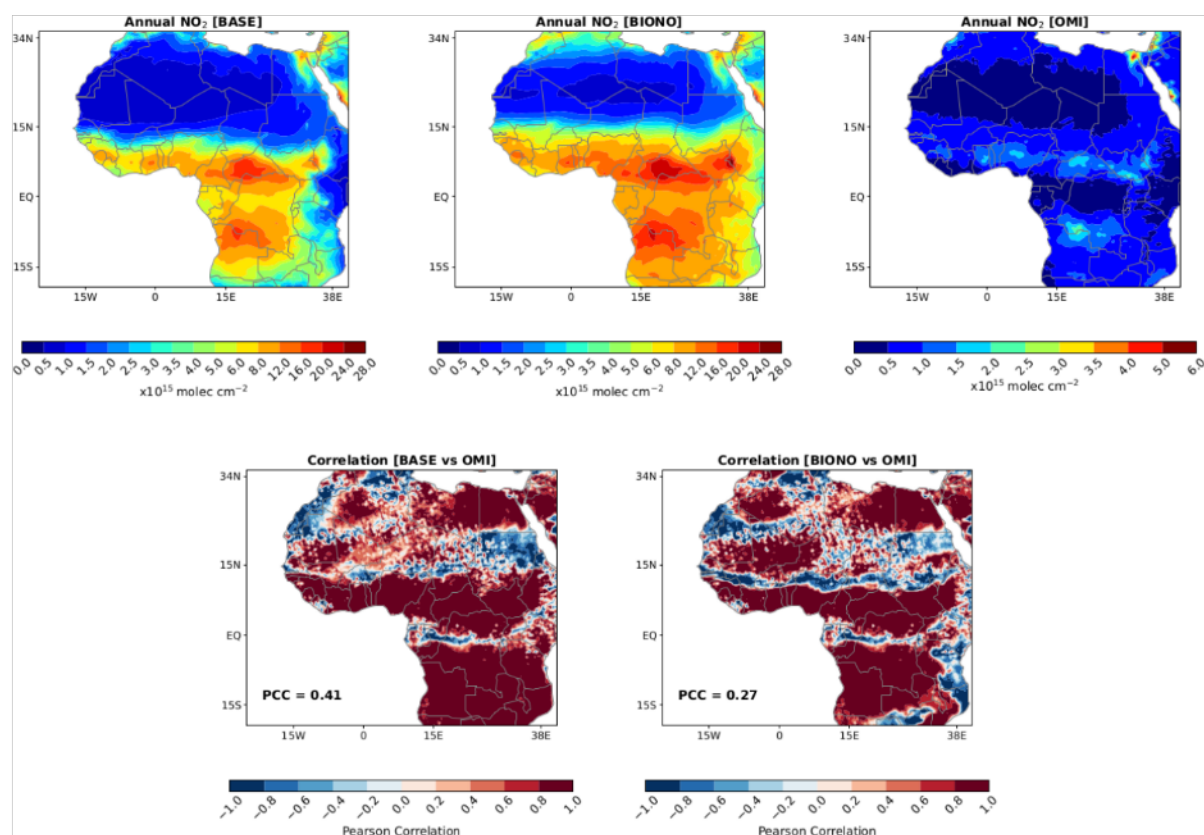


Figure 9. Comparison between BASE and BIONO simulations, and OMI/Aura-derived tropospheric NO_2 columns over 2010–2013, and associated Pearson spatial correlation.

To further examine the simulated NO_2 concentrations, we compare the simulated results with monthly average surface concentrations from INDAAF stations. Simulated outputs at the lower model level (around 40 m a.g.l.) are interpolated to the site locations for the simulated period. BIONO and BASE biases (based on the 3-years monthly-averaged mass concentration) (Table 5) and correlation with observations (Fig. 11) were calculated for NO_2 at the corresponding stations.

Figures 10 and 11 show that the BASE model simulation tends to underestimate NO_2 concentrations except for december-january in wet savannas (Lamto, Djougou). This is also the case for the CAMS reanalysis (Fig. 10). RegCM5-BASE NO_2 concentrations are especially underestimated over dry savannas (Banizoumbou, Katibougou) in the wet season, where the maximum negative bias recorded is ≈ -4 ppb in June and October at the Banizoumbou site. Mostafa et al. (2019) used the RegCM4 model and also showed that the model mostly underestimates, compared to the Greater Cairo observation data (Egypt), the monthly averages of NO_2 concentrations at four representative sites, with maximal underestimation in April. Taking into account

BioNO emissions has a very considerable impact on reducing the dry savanna's wet season bias, as illustrated in Figs. 10 and 11. Figure 10 suggests that this reduction can reduce the model's maximum negative bias to ≈ -3.94 ppb when BioNO are accounted for, vs. -4.62 ppb in the BASE run, in June at Banizoumbou. Even though this reduction lowers the bias, it remains high and is also observed in the CAMS reanalysis (-3.85 ppb) and the state-of-the-art model (GEOS-Chem: -4.54 ppb) for the same month and site (see Table 5). We can observe in Fig. 10 that the model (BIONO run) tends to produce maximum concentrations in the middle of the rainy season, while the observations show that maximum NO_2 concentrations occur at the beginning and end of the wet season (in a sort of bi-modal pattern). This could be due to a nitrogen pool limitation not accounted for by the ANN approach, which reacts only to environmental conditions. Indeed, soil N content in the Sahel shows a maximum at the end of the rainy season when senescent herbaceous biomass begins to decompose, leading to increased BioNO fluxes (not represented in the model). The temporal distribution of rain events might also be at play, with emission

Table 5. BASE, BIONO, CAMS and GEOS-Chem Biases (ppb) for NO₂. The Reduced/Increased (Red/Inc) biases given by BIONO run is in %. Ba: Banizoumbou, Ka: Katibougou, La: Lamto, Dj: Djougou, Bo: Bomassa, Zoétélé: Zo.

		Month												
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec	
Dry Savannas	Ba	BASE ^a	-0.47	-0.67	-0.48	-2.01	-2.86	-4.62	-3.28	-2.04	-2.15	-4.97	-1.92	-0.72
		BIONO ^b	-0.43	-0.63	-0.47	-1.84	-2.62	-3.94	-0.48	3.53	0.97	-4.26	-1.85	-0.68
		Red/Inc ^c	-7.42	-6.45	-2.38	-8.38	-8.39	-14.65	-85.46	73.17	-54.86	-14.27	-3.48	-5.57
		CAMS ^d	0.33	0.27	0.74	-0.47	-1.86	-3.85	-2.73	-1.47	-1.52	-4.21	-0.33	0.44
		GEOS-Chem ^e	-0.19	-0.33	-0.44	-2.04	-2.84	-4.54	-3.29	-2.17	-2.39	-5.16	-1.37	-0.33
	Ka	BASE	-0.64	-0.41	-1.54	-2.4	-2.42	-3.02	-1.3	-1.52	-1.13	-1.47	-2.53	-1.27
		BIONO	-0.03	0.19	-0.74	-1.26	-1.03	-1.06	2.25	2.72	1.28	0.08	-1.36	-0.63
		Red/Inc	-95.2	-54.71	-51.67	-47.51	-57.57	-65.08	73.2	79.12	13.22	-94.44	-46.41	-50.69
		CAMS	-0.2	-0.21	-1.4	-2.34	-2.4	-3.06	-1.38	-1.58	-1.18	-1.82	-2.45	-0.88
		GEOS-Chem	0.50	0.24	-1.30	-2.29	-2.47	-3.08	-1.40	-1.66	-1.33	-1.96	-2.31	-0.25
Wet Savannas	La	BASE	0.25	-0.84	-1.07	-0.76	-0.31	-0.36	-0.22	-0.35	-0.35	-0.27	0.21	0.51
		BIONO	0.95	-0.13	-0.46	-0.09	0.35	0.27	0.26	0.12	0.28	0.64	1.05	1.26
		Red/Inc	286.37	-84.14	-57.09	-87.57	11.55	-24.72	20.15	-64.49	-18.37	137.2	406.76	146.79
		CAMS	0.16	-0.60	-0.83	-0.65	-0.26	-0.31	-0.17	-0.27	-0.24	-0.31	0.05	0.00
		GEOS-Chem	-0.15	-0.69	-0.97	-0.80	-0.34	-0.38	-0.23	-0.28	-0.24	-0.36	-0.02	-0.04
	Dj	BASE	1.59	-0.16	-0.54	-0.64	-0.4	-0.45	-0.2	0.4	0.66	0.95	-0.09	0.84
		BIONO	2.86	1.18	0.58	0.48	0.77	1	1.62	2.06	2.4	2.15	0.99	2.28
		Red/Inc	79.95	656.78	8.14	-25.51	91.97	121.09	716.21	410.01	264	126.18	1052.96	171.61
		CAMS	-0.32	-1.41	-1.56	-1.62	-1.31	-1.23	-1.23	-0.54	-0.56	-0.55	-1.76	-0.90
		GEOS-Chem	0.99	-1.22	-1.43	-1.55	-1.22	-1.13	-1.13	-0.47	-0.56	-0.55	-0.87	1.02
Forests	Bo	BASE	-0.80	-1.37	-1.17	-1.33	-1.64	-1.56	-0.98	-1.15	-1.12	-0.82	-0.55	0.16
		BIONO	0.20	-0.41	-0.23	-0.45	-0.77	-0.71	-0.13	-0.35	-0.39	-0.08	0.41	1.19
		Red/Inc	-75.32	-69.82	-80.71	-66.58	-52.96	-54.28	-86.47	-69.38	-65.42	-90.82	-24.59	649.99
		CAMS	-2.15	-2.04	-1.65	-1.64	-1.88	-1.86	-1.34	-1.41	-1.18	-0.91	-0.98	-1.26
		GEOS-Chem	-1.94	-1.93	-1.54	-1.57	-1.82	-1.78	-1.20	-1.28	-1.12	-0.85	-0.90	-0.97
	Zo	BASE	0.88	-1.04	-0.82	-0.74	-0.54	-0.45	0.03	-0.30	-0.36	-0.37	0.05	1.14
		BIONO	1.65	-0.19	0.13	0.21	0.35	0.26	0.60	0.18	0.30	0.40	1.00	1.99
		Red/Inc	87.84	-81.28	-83.92	-71.35	-35.02	-41.79	2046.86	-41.26	-17.48	7.11	1769.01	74.47
		CAMS	-0.53	-1.79	-1.25	-0.93	-0.67	-0.66	-0.25	-0.47	-0.5	-0.51	-0.45	-0.59
		GEOS-Chem	2.12	-0.87	-0.77	-0.78	-0.57	-0.52	-0.07	-0.32	-0.39	-0.45	-0.30	0.80

^a Bias with BASE simulation. ^b Bias with BIONO simulation. ^c Reduction/Increase Bias by BioNO emissions. ^d Bias with CAMS reanalysis. ^e Bias with GEOS-Chem model.

peaks occurring for rainfall events consecutive to a dry period, which are more likely at the beginning and end of the rainy season (Gasche and Papen, 1999; Hickman et al., 2018; Johansson et al., 1988; Jaeglé et al., 2005; Yienger and Levy, 1995).

For wet savannas, the model is consistent with observed measurements for the BASE simulation. During the dry season, positive biases are present in the BASE run for wet savannas (unlike dry savannas), and range between 0.2 and 1.6 ppb. The highest NO₂ surface concentrations in the dry season are linked to biomass burning emissions (Oppenheimer et al., 2004; van Marle et al., 2017). Moreover, Ossohou et al. (2019) suggest that NO₂ concentrations in the dry season could be due to the intensity of biomass burning sources in all of the six sites except Banizoumbou and Katibougou. This helps to explain the observed positive biases, which may be enhanced by including BioNO emissions in the model. While including BioNO emissions leads to a small improvement in simulation results, especially for the Lamto station, they tend to worsen biases at wet savanna

sites. For instance, the maximum positive bias is increased by ~ 1.2 ppb in January at the Djougou site (~ 79.9 % increase in bias). The BioNO emissions are possibly overestimated due to a larger and excessive response of the ANN to soil moisture in wet savanna compared to dry savanna in both seasons (Fig. 5), and which may be accentuated by a smaller canopy reduction factor when compared to forested regions. Similarly, GEOS-Chem model also displays positive biases in the dry season of wet savannas, particularly in Djougou, where the bias reaches 0.99 ppb in January. This suggests that the overestimation could be a systematic issue across models, potentially due to uncertainties in emissions or local photochemistry.

For tropical/transition forest ecosystems, both the BASE simulation and CAMS reanalysis show a notable NO₂ underestimation compared to INDAAF measurements. The discrepancies observed in the BASE and CAMS simulations could be due to several factors, including the representation of NO_x sources, such as anthropogenic emissions, near the surface and regional chemical processes. GEOS-Chem also

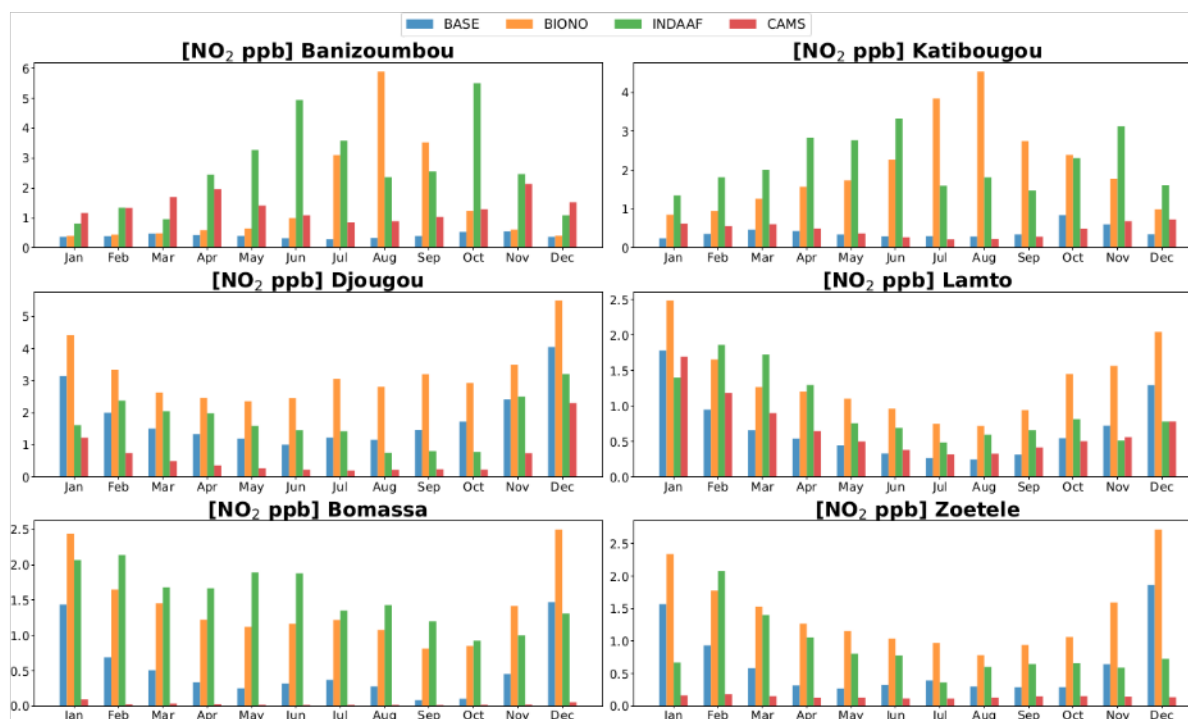


Figure 10. Simulated monthly-averaged concentrations of NO_2 by BASE, BIONO runs and the CAMS reanalysis in comparison with INDAAF observation at representative remote sites.

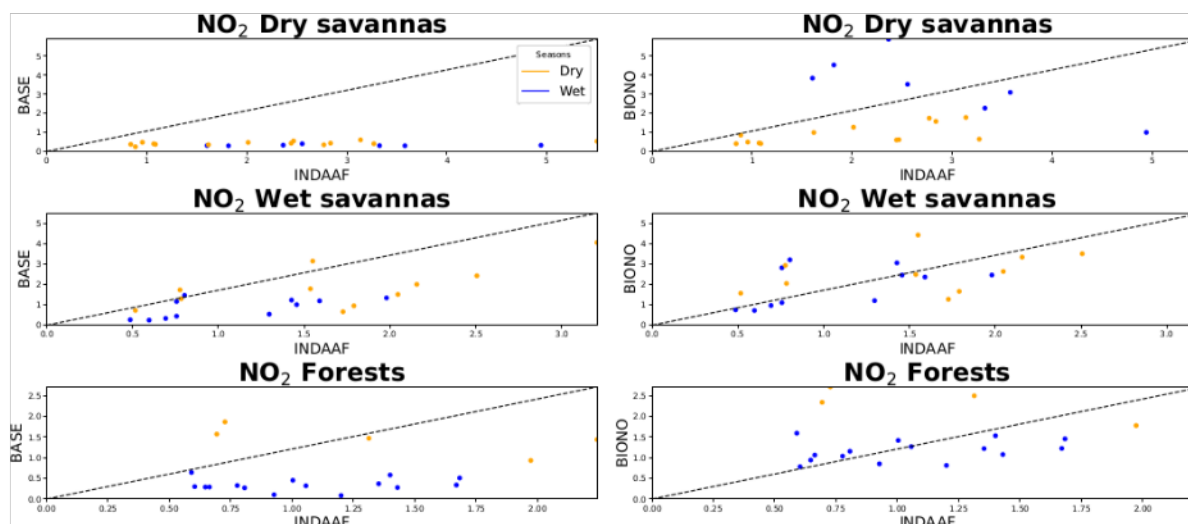


Figure 11. Surface observed NO_2 concentrations (INDAAF) vs. simulated with RegCM5. BioNO emissions are considered in the right panel.

underestimates NO₂ concentrations in these sites, with biases reaching -1.94 ppb in January at Bomassa, which are comparable to the BASE (-0.80 ppb) and CAMS (-2.15 ppb) biases. Furthermore, INDAAF stations are often located in areas with strong simulated NO₂ gradients (Fig. 6b and f), particularly in DJF, where even slight spatial discrepancies could lead to notable differences between simulated and observed levels (this is the challenge of regional representativity of the INDAAF stations). The inclusion of BioNO emissions in the simulation helps to reduce these discrepancies by increasing NO_x concentrations, which in turn brings the simulated ozone levels closer to observed levels (Figs. 10 and 11).

Overall, our results from Fig. 10 show that the inclusion of BioNO emissions leads to a noticeable improvement in modeled surface NO₂ concentrations at specific INDAAF stations, especially in semi-arid locations. This indicates that the ANN-based parameterization reasonably captures local soil NO emissions where soil and climatic conditions align with the training data. However, we emphasize that these local-scale improvements do not straightforwardly translate into a reliable representation at the regional or continental scale. Indeed, the relatively large increase in NO₂ concentrations observed in some regions when adding BioNO reflects the episodic and spatially heterogeneous nature of soil NO pulses, especially in semi-arid areas following soil wetting events. Thus, these increases do not imply that total BioNO emissions systematically exceed anthropogenic or BB emissions at the continental scale. Rather, the large relative impact observed locally reflects the high sensitivity of NO₂ concentrations to episodic BioNO pulses.

Furthermore, our parameterization currently excludes other major natural NO_x sources: the lightning NO_x emissions, which contribute substantially to tropical tropospheric NO_x (Jaeglé et al., 2005). Their omission likely leads to an underestimation of total natural NO_x and may cause an artificial amplification of BioNO's relative impact in our model results. Similarly, BB emissions from the GFED4 inventory, while widely used, are known to have uncertainties and likely underestimations over Africa (e.g., van Wees and van der Werf, 2019; Giglio et al., 2013). Moreover, since BB and BioNO emissions may be seasonally correlated, part of the improvement observed when including BioNO might compensate for underrepresented BB or unrepresented lightning NO_x emissions.

Extrapolating the ANN-based BioNO parameterization to regions with land cover and meteorological conditions not well represented in the training data, such as dense tropical forests, also introduces further uncertainty in the regional-scale simulations. Finally, recent TROPOMI-based inversion studies (Opacka et al., 2025) independently suggest that current bottom-up inventories underestimate natural NO_x sources in Africa. Their findings indicate that soil NO emissions should be increased by approximately 26%, while lightning NO_x emissions may be underestimated by a fac-

tor of 4. These conclusions align with our results and support the importance of improving natural NO_x source representations, including process-based BioNO emissions, to better simulate atmospheric NO₂ over Africa.

6.1.2 HNO₃ concentration

Simulations exhibit a consistent representation of HNO₃ spatial distributions between the different models (Fig. 12). While RegCM5 concentrations are quite close to CAMS in magnitude, both are substantially smaller than GEOS-Chem, in relation to the O₃ fields as discussed later.

Over the Sahel, the lower simulated HNO₃ concentrations for JJA (BASE run) are likely associated with the previously discussed underestimation of modelled NO₂ in the regions (5 – 20° N), since HNO₃ is a product of NO₂ oxidation. In general, including BioNO emissions results in increased spatial concentrations of HNO₃, bringing RegCM5 simulation results closer to CAMS and GEOS-Chem (Fig. 12).

When BioNO emissions are included in the model, the lower troposphere HNO₃ values increase by up to 0.3 ppb (Fig. 7), and are correlated with large BioNO emissions (Fig. 5a and d), as for NO₂. The effect of BioNO on HNO₃ is smaller compared to NO₂. This sensitivity difference is likely due to chemical controls occurring through OH and O₃ formation (Steinkamp et al., 2009). HNO₃ formation pathways from NO₂ involve the presence of oxidants such as OH and O₃, which are controlled by regional photo-oxidant chemistry and emissions. As a result, the impact of BioNO on simulated HNO₃ is not as straightforward as for NO₂.

As for NO₂, both RegCM5 and CAMS show an overall large underestimation of HNO₃ concentrations compared to available measurements for nearly all INDAAF stations (Fig. 13). The corresponding biases are large in the wet season and small in the dry season, when the contribution of biomass burning is more important relative to BioNO emissions (Fig. 13/Table 6). The maximum bias, also obtaining in late June for wet season over dry savannas, is likely due, at least in part, to the same reasons discussed previously for the monthly-averaged NO₂ concentrations. Lin et al. (2013) argue that enhanced soil emissions and higher NO_x oxidation rates under warm conditions can generate high atmospheric HNO₃. Despite the remaining large underestimation, due to smaller changes improvement across all ecosystems, the addition of BioNO emissions in RegCM5 helps reduce the biases and brings the model results closer to the observed data (Fig. 13). Figure 13 indicates an overall increase at all study sites and a reduction in negative bias: a maximum of -1.67 ppb vs. -1.73 ppb in June (3.51% reduction in negative bias) in dry savannas. This underestimation is also observed in CAMS and GEOS-Chem models, particularly for June, where CAMS and GEOS-Chem biases reach -1.67 and -1.11 ppb, respectively, in Katibougou. In wet savannas, we obtain a maximum negative bias of -0.77 ppb

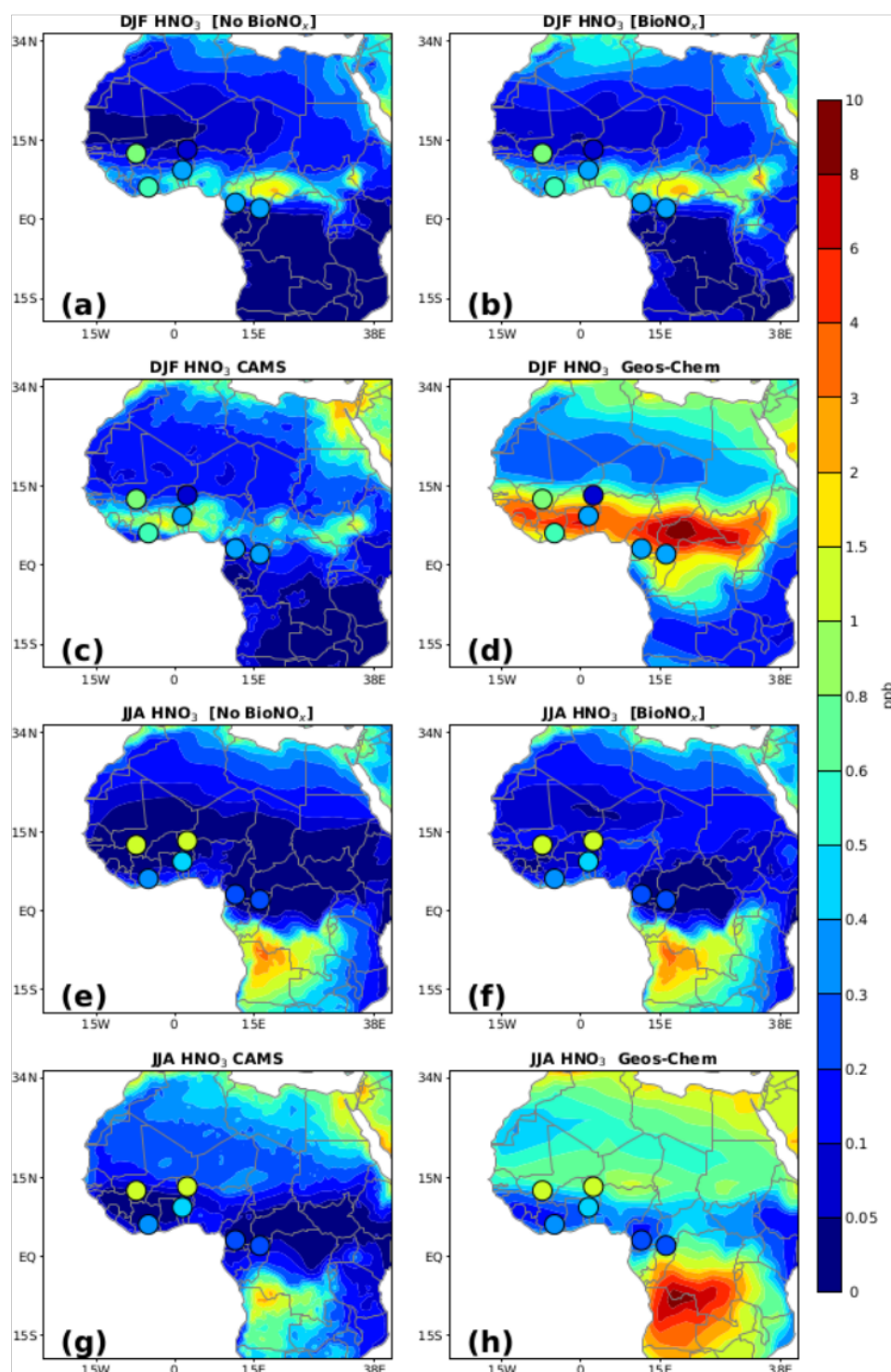


Figure 12. Comparison of BASE and BioNO simulations of surface HNO_3 concentrations (in ppb) against the CAMS reanalysis and the model GEOS-Chem for DJF and JJA season. The INDAAF measurement values are overlotted and represented by small circles on the map.

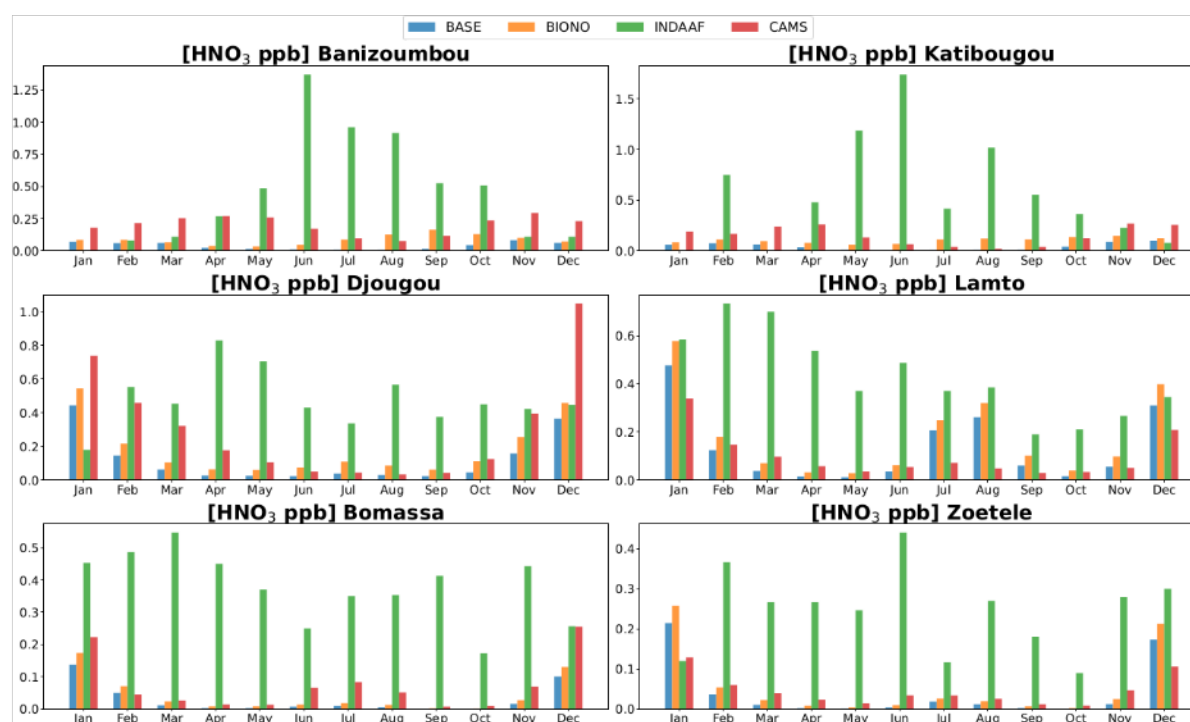


Figure 13. Simulated monthly-averaged concentrations of HNO_3 by BASE, BIONO runs and the CAMS reanalysis in comparison with INDAAF observation at its representative remote sites.

vs. -0.8 ppb in April (4.56 % reduction in negative bias), and a 2.27% reduction in negative bias over forests.

In addition to improving the magnitude of surface concentrations at the six remote sites and across the region, the introduction of ANN on-line emissions also improves the spatial correlation between the simulated (RegCM5) and observed (INDAAF) concentrations. The BioNO induced enhancement is also associated with a more realistic seasonal evolution of NO_2 and HNO_3 surface levels when compared to INDAAF observations (Figs. 11 and 14).

6.2 Regional and local ozone

Together with transport, emission and deposition processes, ozone photo-chemistry regulates the content of nitrogen compounds in the atmosphere. Tropospheric Ozone simulation is very challenging due to numerous sources of variability and uncertainty (Young et al., 2018). Such simulations involve complex and interrelated factors, including precursor emissions, meteorological variability, ozone photochemical production and loss, surface deposition, long-range transport influence and stratosphere-troposphere exchange (Lelieveld and Dentener, 2000). In this section we discuss the ability of the model to represent regional ozone and the subsequent impact of BioNO emissions on regional ozone production.

Figure 15 displays the regional surface ozone simulated by RegCM5 for BASE and BioNO runs, compared to the CAMS chemical reanalysis and the GEOS-Chem model.

A strong seasonality of surface ozone concentrations (winter vs. summer) can be observed (Fig. 15). In the DJF season, strong ozone production occurs between 5 and 15°N as a result of biomass burning activities (Fig. 1). RegCM5 shows spatial patterns consistent with CAMS and GEOS-Chem in terms of simulated surface concentrations, but with lower values in the source zones (with GEOS-Chem showing the largest concentrations among them). In areas where local chemical production is low, such as over the Sahara, long range and vertical ozone transport primarily determines the background ozone level (e.g., Sauvage et al., 2005). We can outline here the added value of improved chemical boundary conditions, which set up more realistic and climatically relevant seasonal ozone background when benchmarked against the default approach, and also better account for long range transport events at shorter time scale.

During summer months (JJA), we also observe consistency between the continental-scale surface ozone gradients simulated by RegCM5 and those from CAMS and GEOS-Chem. In northern Africa, there is a slight overestimation of ozone, which can be attributed to greater vertical transport and mixing during the African monsoon. It can also be

Table 6. BASE, BIONO, CAMS and GEOS-Chem Biases (ppb) for HNO₃. The Reduced/Increased (Red/Inc) biases given by BIONO run is in %. Ba: Banizoumbou, Ka: Katibougou, La: Lamto, Dj: Djougou, Bo: Bomassa, Zoéfé: Zo.

		Month											
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec
Dry Savannas	Ba	BASE ^a	−0.02	−0.05	−0.25	−0.47	−1.36	−0.95	−0.91	−0.51	−0.46	−0.03	−0.05
		BIONO ^b	0.01	−0.04	−0.23	−0.45	−1.32	−0.87	−0.79	−0.36	−0.38	−0.01	−0.04
		Red/Inc ^c	−67.9	−12.35	−6.06	−4.02	−2.75	−8.47	−13.07	−29.26	−18.24	−68.23	−22.09
		CAMS ^d	0.14	0.00	−0.23	−1.20	−0.86	−0.84	−0.41	−0.27	0.18	0.12	
		GEOS-Chem ^e	0.95	0.43	0.74	0.71	−0.24	−0.32	−0.48	−0.02	0.41	0.91	0.49
	Ka	BASE	−0.68		−0.45	−1.18	−1.73	−0.41	−1.01	−0.54	−0.32	−0.14	0.02
		BIONO	−0.64		−0.40	−1.13	−1.67	−0.30	−0.90	−0.44	−0.23	−0.08	0.05
		Red/Inc	−5.75		−10.28	−4.31	−3.51	−25.82	−11.12	−19.24	−29.46	−43.56	148.94
		CAMS	−0.58		−0.22	−1.05	−1.67	−0.38	−1.00	−0.52	−0.24	0.04	0.18
		GEOS-Chem	0.20		0.99	−0.23	−1.11	−0.12	−0.85	−0.30	0.30	1.04	0.95
Wet Savannas	La	BASE	−0.07	−0.53	−0.66	−0.52	−0.36	−0.45	−0.16	−0.12	−0.13	−0.19	−0.03
		BIONO	0.03	−0.47	−0.63	−0.51	−0.34	−0.42	−0.12	−0.06	−0.09	−0.17	0.05
		Red/Inc	−62.64	−10.56	−4.79	−3.34	−4.56	−5.77	−25.28	−47.81	−31.76	−12.32	−20.27
		CAMS	−0.21	−0.50	−0.60	−0.48	−0.33	−0.43	−0.30	−0.34	−0.16	−0.18	−0.22
		GEOS-Chem	1.50	0.18	−0.14	−0.18	−0.15	−0.32	−0.17	−0.21	−0.06	−0.05	0.14
	Dj	BASE	0.26	−0.27	−0.39	−0.80	−0.68	−0.41	−0.30	−0.54	−0.35	−0.41	−0.27
		BIONO	0.36	−0.20	−0.35	−0.77	−0.65	−0.36	−0.23	−0.48	−0.31	−0.34	−0.17
		Red/Inc	38.57	−26.36	−10.94	−4.56	−5.10	−12.64	−23.90	−10.38	−11.09	−16.50	−37.03
		CAMS	0.56	0.04	−0.13	−0.65	−0.60	−0.38	−0.29	−0.53	−0.33	−0.32	−0.03
		GEOS-Chem	3.71	1.74	0.91	0.03	−0.04	0.06	−0.06	−0.34	−0.09	0.15	1.25
Forests	Bo	BASE	−0.27	−0.42	−0.54	−0.45	−0.37	−0.24	−0.34	−0.35	−0.41	−0.17	−0.43
		BIONO	−0.23	−0.40	−0.52	−0.44	−0.36	−0.24	−0.33	−0.34	−0.41	−0.17	−0.42
		Red/Inc	−13.69	−4.99	−2.27	−1.25	−1.57	−2.68	−2.60	−1.98	−0.43	−0.52	−2.67
		CAMS	−0.18	−0.42	−0.52	−0.44	−0.36	−0.18	−0.27	−0.30	−0.41	−0.16	−0.37
		GEOS-Chem	1.64	0.16	−0.14	−0.20	−0.16	0.14	0.29	0.04	−0.22	−0.05	−0.02
	Zo	BASE	0.05	−0.38	−0.26	−0.26	−0.25	−0.44	−0.10	−0.26	−0.18	−0.09	−0.27
		BIONO	0.09	−0.36	−0.24	−0.26	−0.24	−0.43	−0.09	−0.25	−0.17	−0.09	−0.26
		Red/Inc	84.56	−4.46	−4.67	−2.39	−1.46	−1.22	−7.70	−2.93	−2.48	−1.86	−4.61
		CAMS	−0.03	−0.36	−0.23	−0.24	−0.23	−0.41	−0.08	−0.24	−0.17	−0.08	−0.23
		GEOS-Chem	2.67	0.58	0.24	−0.01	−0.07	−0.25	0.03	−0.13	−0.07	0.04	0.38

^a Bias with BASE simulation. ^b Bias with BIONO simulation. ^c Reduction/Increase Bias by BioNO emissions. ^d Bias with CAMS reanalysis. ^e Bias with GEOS-Chem model.

linked to the south-to-north transport being more effective during JJA (Sauvage et al., 2007), potentially combined with an overrepresentation of stratosphere-troposphere exchange and local photochemical production under strong solar radiation (Li et al., 2019). However, in the southern biomass burning regions, where ozone “hot-spots” are found (Sauvage et al., 2007), RegCM5 tends to simulate lower surface ozone concentrations compared to CAMS and more noticeably, to GEOS-Chem.

Focusing on surface concentration offers a limited view of actual model to model differences, and a deeper tropospheric ozone budget assessment would be required for a more systematic quantitative analysis, but this is beyond the scope of this paper. Studies have shown that discrepancies in model ozone simulations tend to be large in tropical regions. For example, a comprehensive comparison between GEOS-Chem and CAM-chem (Community Atmosphere Model-chemistry) (e.g., Lin et al., 2024) highlighted important differences in ozone budgets and vertical profiles due to variations in photolysis schemes, aerosol interactions, and convec-

tive transport processes. These differences can lead to variations in how ozone is transported vertically, impacting surface concentrations (e.g., Li et al., 2019). Recent comparative studies focusing on tropospheric ozone in various tropical regions, including Africa, confirm that such discrepancies are common and often linked to model-specific handling of emissions, injection heights and vertical dynamics (Huijnen et al., 2020; Lin et al., 2024). Tsvilidou et al. (2023) argue that it is essential to consider the combination of injection height of ozone precursors and the strong vertical mixing in the tropics which largely determine the surface ozone values. These factors, together with non-linear interactions between NO_x and VOCs, including uncertain biogenic emissions, must be carefully analysed when assessing model outputs.

Figure 16c and f illustrates the influence of BioNO emissions on the RegCM5 simulated surface O₃ field. The consecutive production or depletion of O₃ is not solely dependent on NO_x concentrations but also on the NO_x / VOCs ratio, which determines the ozone chemical regime in differ-

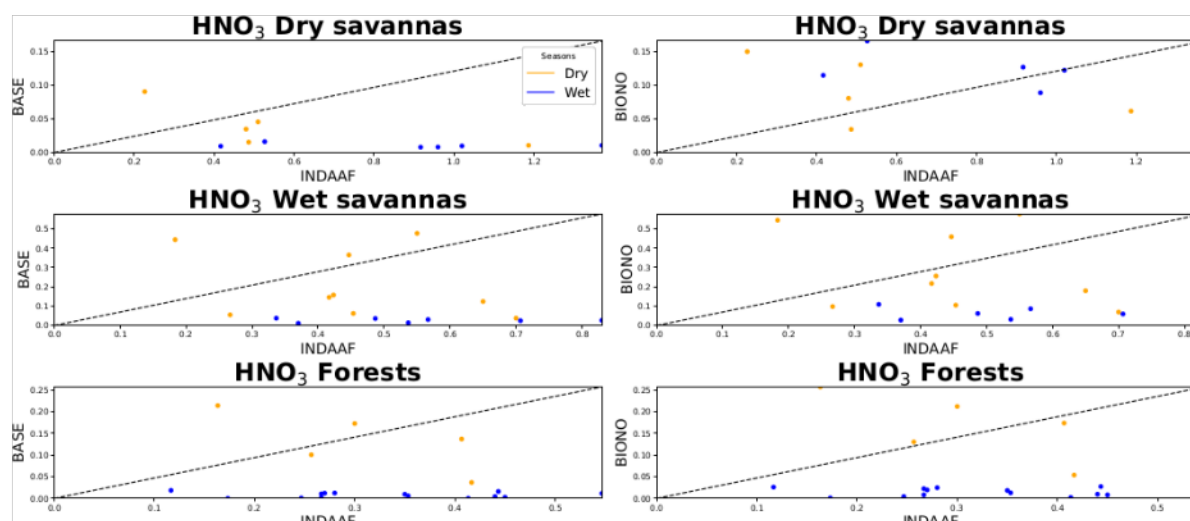


Figure 14. Surface observed HNO_3 concentrations (INDAAF) vs. simulated with RegCM5. BioNO emissions are considered in the right panel.

ent subregions of the domain. At the regional to continental scale, and for both seasons, the introduction of BioNO leads to both an increase and a decrease in surface ozone production, with a predominantly increasing effect in the lower troposphere (Figs. 7c, f and 16c, f). In regions coinciding with large BioNO emissions, for both seasons there is, however, a notable negative impact on surface O_3 . This reduction in ozone levels, which can reach up to ~ 2 ppb, is likely due to ozone titration processes, characteristic of VOC-limited conditions. In areas with large NO_x emissions (here BioNO source areas), O_3 formation can be VOC-limited or may shift between chemical regimes depending on, for example, the time of the day (Kleinman, 1994; Sillman and He, 2002).

As one moves away from these intense sources of NO_x , the average ozone response shifts to being positive, reflecting the classical change in chemical regime downwind of the sources. An illustration of this process can be seen in JJA in the vertical wind (wa) monsoon region where intense Sahelian BioNO sources locally decrease surface ozone but contribute to an increase in downwind surface ozone in northern Sahel/southern Sahara (dipole pattern on Fig. 16f). For this situation, the NO_x / VOC ratio decreases and the chemical regime becomes more NO_x -limited (Delon et al., 2008; Stewart et al., 2008). In DJF, the increase in surface ozone can reach up to 4 ppb in the southern part of the domain, while in JJA, we observe increases of up to 3 ppb over the Sahel region and in eastern Africa. Over West Africa, the effects of the NO_x -limited extend to the lower troposphere, where an average increase in ozone concentration of up to 4 ppb is noted (Fig. 7c and f). This pattern agrees with findings by Delon et al. (2008), who observed that a moderate increase in NO_x concentrations leads to a small increase in simulated

ozone across all altitudes (0–15 km), characteristic of a NO_x -limited regime. Several studies have shown that throughout much of the troposphere in a variety of tropical regions, including Africa, O_3 formation is predominantly NO_x -limited (e.g., Li et al., 2021; Tadic et al., 2021).

A comparison with INDAAF ground measurements shows that the inclusion of BioNO emissions results in very little improvement in simulated ozone concentrations at the local scale, in contrast to the better performance observed for other species (see Sect. 6.1) (Fig. 17). However, a general reduction in bias, leading to better alignment between simulated and observed values, is observed for nearly all of the sites during the period from June to August. For example, in dry savannas the maximum negative bias is reduced by 83.38 % in June in Banizoumbou (Table 7). Nevertheless, BioNO emissions in some cases lead to an increased positive bias, for example +2.4 % in March at Banizoumbou. For the JJA period, in wet savannas and equatorial forests we observe an overall slight decrease in O_3 concentrations when BioNO is included, corresponding to a very slight improvement in the simulated results. Over tropical forests, surface ozone concentrations are influenced by regional transport from burning areas, as well as local vertical exchanges between the surface and the lower troposphere. A comparison with CAMS and GEOS-Chem shows that both models also struggle to accurately capture the observed ozone concentrations at INDAAF sites. For instance, in January over Zoétélé, CAMS and GEOS-Chem exhibit biases of 24.77 and 49.95 ppb, respectively, which are noticeably high despite the models' advanced chemistry and assimilation techniques. This suggests that the discrepancies could be the result of broader model limitations in representing regional ozone dynam-

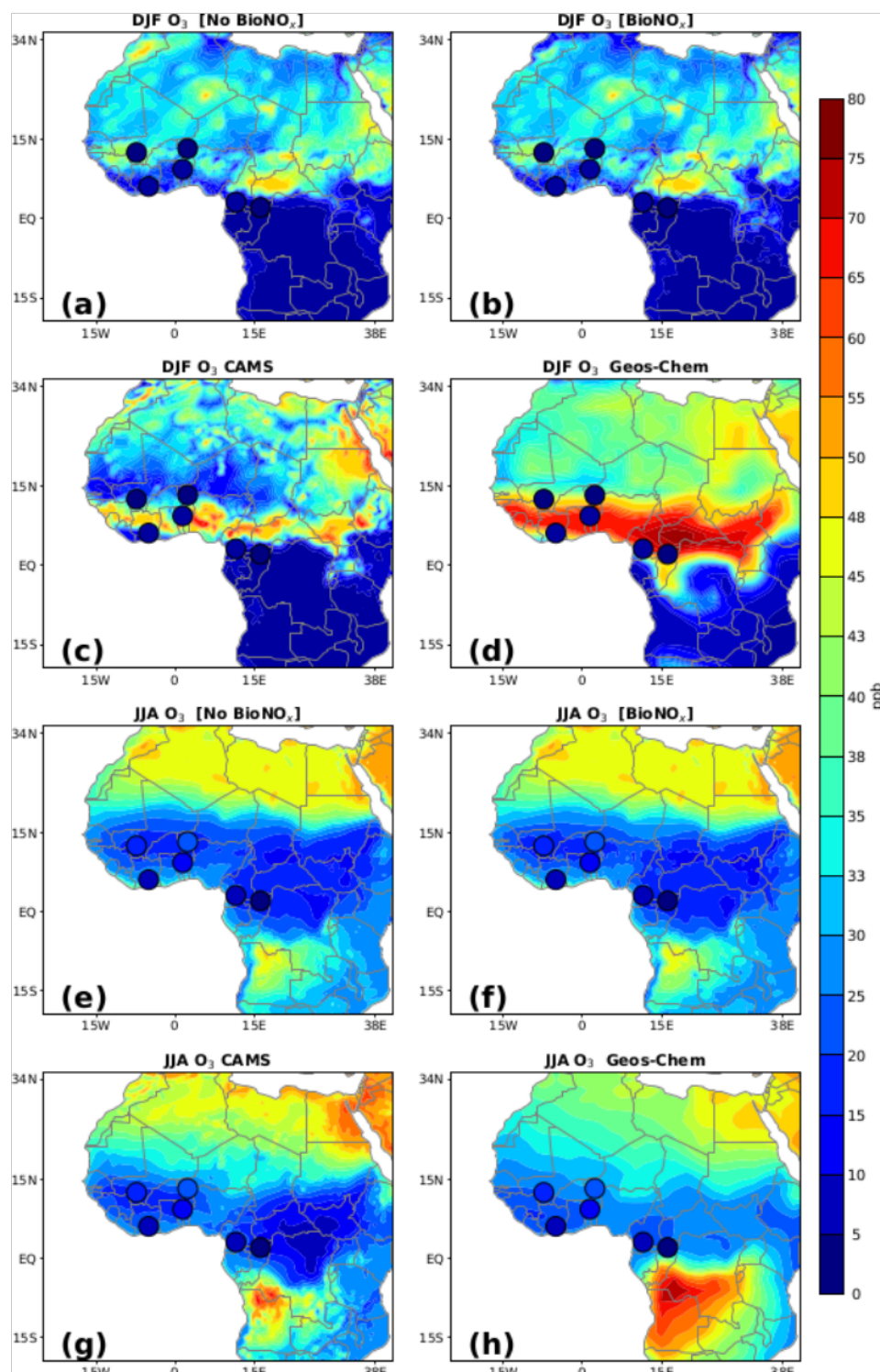


Figure 15. Comparison of BASE and BioNO simulations of surface O_3 concentrations (in ppb) against the CAMS reanalysis and the model GEOS-Chem for DJF and JJA season. The INDAAF measurement values are overlotted and represented by small circles on the map.

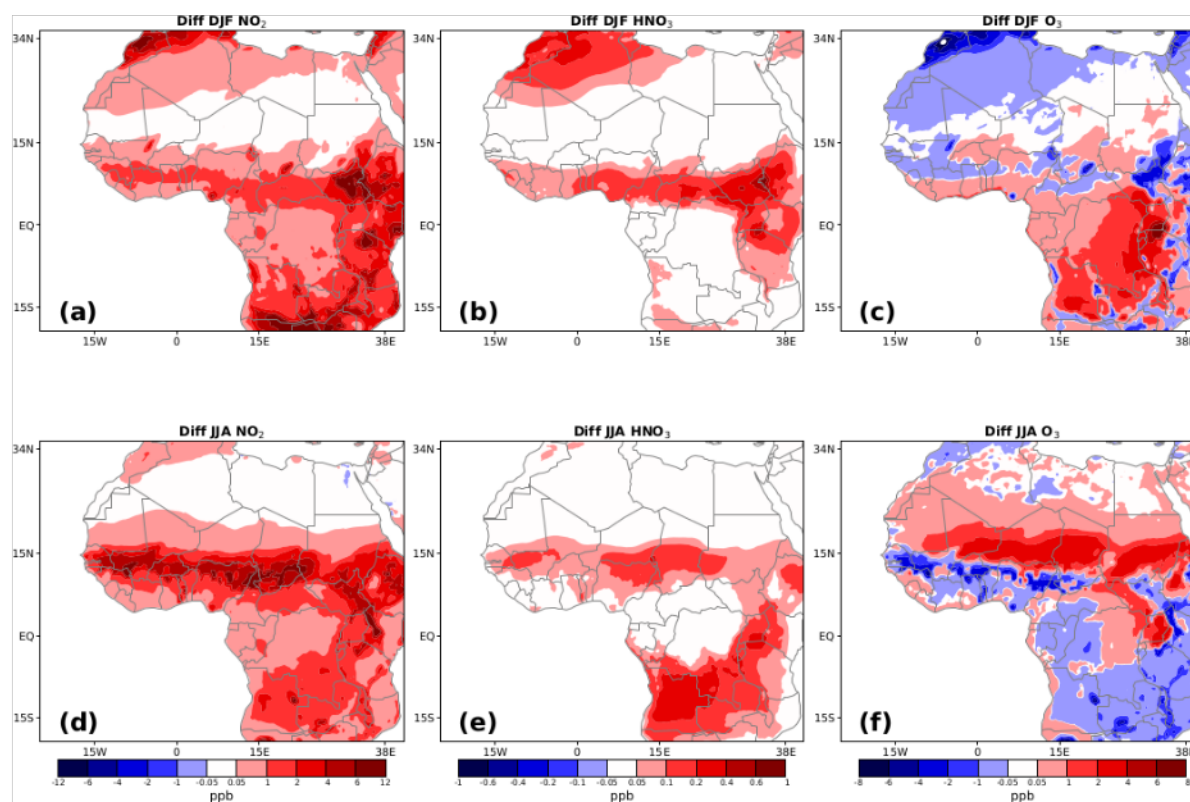


Figure 16. DJA and JJA differences (BIONO – BASE) in surface NO_2 (a, d), HNO_3 (b, e) and O_3 (c, f) concentrations. Units are in ppb.

ics. Comparing model O_3 results to on-site measurements is straight-forward due to the presence of an important tree canopy on measurement sites which can potentially affect both local dynamics and chemistry (e.g., Bryan and Steiner, 2013). Big leaf dry deposition schemes for ozone over tropical forests can only roughly represent deposition processes, and other chemical sinks within the canopy layer are not properly parametrized (Ganzeveld and Lelieveld, 2004; Sun et al., 2022). These deposition and chemical processes in the canopy should ideally be accounted for to better explain the discrepancy between the simulations and the in situ observations, in particular the fact that ozone observations are systematically much lower than model results (Figs. 17 and 18).

7 Conclusion

RegCM5 is the latest released version of the ICTP regional climate model designed to conduct high-resolution regional climate simulations. In the broader context of on-going programs targeting the regional nitrogen cycle over Africa, we more specifically use and assess the related atmospheric chemistry module (RegCM5), which has been substantially updated relative to previous versions. We also conduct a spe-

cific study targeting the impact of BioNO emissions on regional chemistry over Africa. This comparative study consists of simulating a coupled climate-chemistry model, with and without BioNO emissions. The simulation model is parameterized using an original method based on ANN and is run over a three year period. The model performance is evaluated by comparing the simulation outputs to various data, including satellite observations for climate, ground-based observations, reanalysis and alternative state-of-the-art model outputs for key atmospheric compounds.

The results obtained show evidence that RegCM5 can capture the main features of the regional climate over the region considered, for example the seasonal and daily mean temperature, precipitation and wind circulation relevant for regional atmospheric chemistry and emission processes.

Simulated NO_2 , HNO_3 and O_3 values show consistency with CAMS reanalysis and GEOS-Chem simulations in terms of spatio-temporal distribution and gradients. Local comparison with surface concentrations measured over the six INDAAF sites indicates that the coupled chemistry-climate model can reproduce the seasonal cycle of all species over all sites. However, these comparisons strikingly show an systematic overestimation of simulated O_3 and, to a

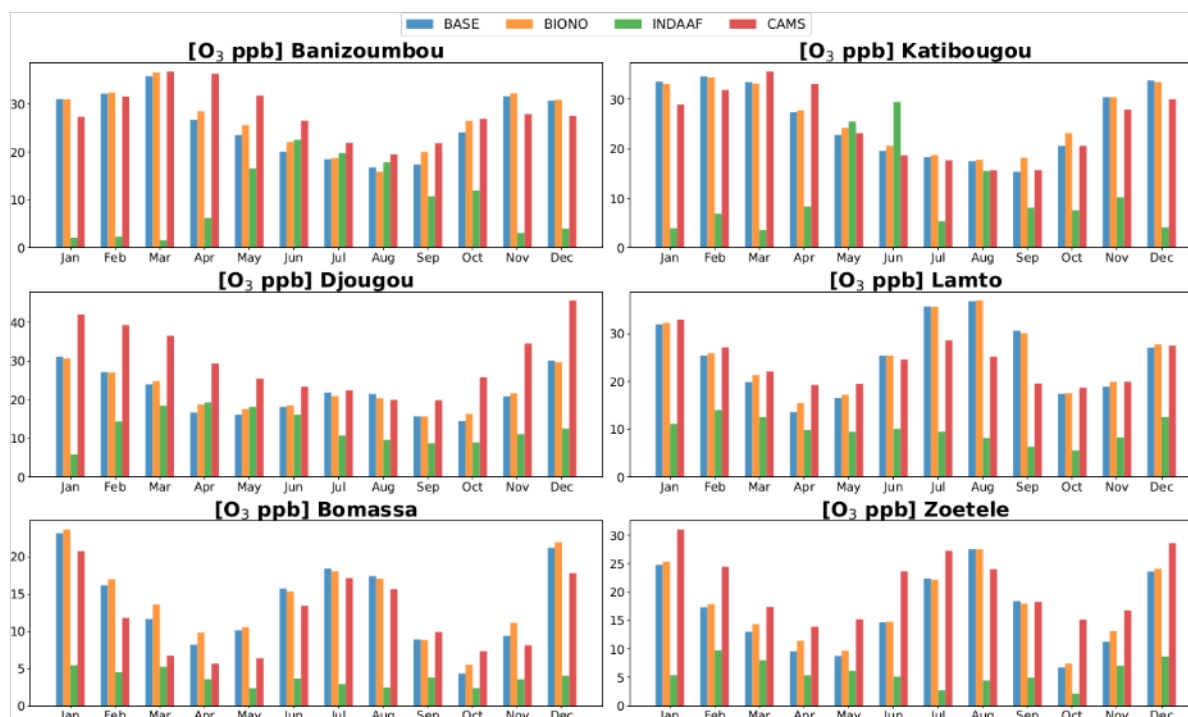


Figure 17. Simulated monthly-averaged concentrations of O_3 by BASE, BIONO runs and the CAMS reanalysis in comparison with INDAAF observation at its representative remote sites.

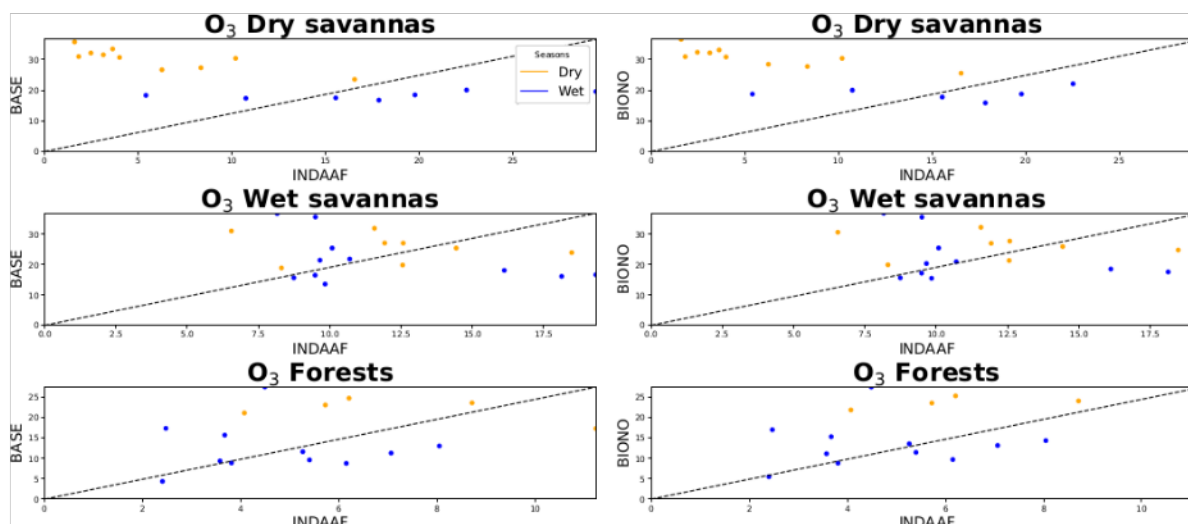


Figure 18. Surface observed O_3 concentrations (INDAAF) vs. simulated with RegCM5. BioNO emissions are considered in the right panel.

Table 7. BASE, BIONO, CAMS and GEOS-Chem Biases (ppb) for O₃. The Reduced/Increased (Red/Inc) biases given by BIONO run is in %. Ba: Banizoumbou, Ka: Katibougou, La: Lamto, Dj: Djougou, Bo: Bomassa, Zoétélé: Zo.

		Month												
		Jan	Feb	Mar	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec	
Dry Savannas	Ba	BASE ^a	29.19	29.69	34.20	20.44	7.01	-2.46	-1.29	-1.06	6.64	12.16	28.46	26.72
		BIONO ^b	29.15	29.94	35.02	22.24	9.04	-0.41	-1.00	-1.98	9.28	14.56	29.08	26.87
		Red/Inc ^c	-0.16	0.83	2.40	8.78	28.84	-83.38	-22.87	86.79	39.70	19.67	2.16	0.54
		CAMS ^d	25.22	29.07	35.16	30.02	15.19	3.99	2.12	1.69	11.05	14.96	24.78	23.53
		GEOS-Chem ^e	30.10	33.26	33.00	31.91	21.16	13.62	9.63	6.82	15.19	21.68	32.61	28.59
	Ka	BASE	30.44	26.04	29.86	19.01	-2.64	-9.84	12.94	1.97	7.22	13.00	20.23	29.63
		BIONO	29.93	25.80	29.53	19.42	-1.23	-8.80	13.35	2.25	10.11	15.59	20.23	29.34
		Red/Inc	-1.68	-0.93	-1.09	2.17	-53.40	-10.53	3.19	14.00	40.03	19.91	-0.03	-0.97
		CAMS	25.85	23.27	31.97	24.73	-2.33	-10.77	12.30	0.16	7.59	12.99	17.71	25.86
		GEOS-Chem	33.50	20.24	39.04	36.18	11.03	1.06	17.34	2.52	11.76	22.53	31.00	32.96
Wet savannas	La	BASE	20.45	11.04	7.34	3.78	7.05	15.40	26.23	28.72	24.33	11.89	10.63	14.54
		BIONO	20.77	11.56	8.83	5.70	7.74	15.43	26.18	28.83	23.80	12.02	11.66	15.22
		Red/Inc	1.56	4.72	20.40	50.89	9.80	0.19	-0.21	0.38	-2.17	1.15	9.68	4.65
		CAMS	21.40	12.74	9.60	9.48	10.08	14.54	19.02	17.06	13.27	13.14	11.67	14.96
		GEOS-Chem	32.79	18.14	14.09	14.23	10.85	11.18	14.53	14.41	12.81	12.16	15.58	27.52
	Dj	BASE	24.57	15.22	5.51	-2.63	-1.98	2.01	11.17	11.83	6.95	5.58	9.82	17.57
		BIONO	24.17	15.12	6.36	-0.58	-0.52	2.46	10.28	10.73	6.93	7.39	10.61	17.25
		Red/Inc	-1.64	-0.63	15.52	-78.09	-73.72	22.54	-7.94	-9.33	-0.25	32.48	8.10	-1.87
		CAMS	35.55	27.40	18.09	10.03	7.28	7.30	11.79	10.33	11.14	16.93	23.48	33.12
		GEOS-Chem	41.37	33.38	22.38	17.30	13.17	11.57	13.37	13.34	14.42	19.23	33.01	32.54
Forest	Bo	BASE	17.38	11.39	6.39	4.63	7.74	12.04	15.46	14.91	5.08	1.96	5.80	17.08
		BIONO	17.86	12.20	8.32	6.27	8.16	11.66	15.08	14.57	5.02	3.11	7.57	17.83
		Red/Inc	2.77	7.12	30.28	35.51	5.45	-3.15	-2.44	-2.30	-1.16	58.58	30.44	4.39
		CAMS	15.00	7.01	1.46	2.09	4.02	9.73	14.20	13.15	6.12	4.94	4.56	13.71
		GEOS-Chem	47.03	22.99	17.44	13.10	14.00	18.42	29.07	23.27	15.65	12.21	20.40	51.97
	Zo	BASE	18.57	6.10	5.01	4.23	2.64	9.56	19.67	23.05	13.45	4.61	4.24	14.92
		BIONO	19.14	6.69	6.31	6.08	3.57	9.65	19.40	23.04	13.02	5.33	6.11	15.39
		Red/Inc	3.09	9.70	26.07	43.94	35.60	0.91	-1.34	-0.07	-3.20	15.57	44.12	3.21
		CAMS	24.77	13.25	9.37	8.52	9.10	18.48	24.52	19.57	13.30	13.02	9.74	19.89
		GEOS-Chem	49.95	25.61	19.73	12.08	9.12	13.48	20.70	18.95	14.30	14.05	23.98	52.49

^a Bias with BASE simulation. ^b Bias with BIONO simulation. ^c Reduction/Increase Bias by BioNO emissions. ^d Bias with CAMS reanalysis. ^e Bias with GEOS-Chem model.

lesser extent, an underestimation of NO₂ and HNO₃, especially in the wet season over dry savanna stations. These large biases are present not only in RegCM5 simulations but also in CAMS reanalysis, and GEOS-Chem outputs. In the BASE simulation, the O₃ biases range from -2.64 to 34.2 ppb (dry savannas), -2.63 to 28.72 ppb (wet savannas) and 1.96 to 23.05 ppb (forests) while for NO₂, we obtained biases from -4.97 to -0.41 ppb (dry savannas), -0.84 to 1.59 ppb (wet savannas), -1.64 to 1.14 ppb (forests), and -1.73 to 0.02 ppb (dry savannas), -0.8 to 0.26 ppb (wet savannas) and -0.54 to 0.05 ppb (forests) for HNO₃. These differences are attributed to potential deficiencies in chemical emissions and mechanisms, deposition, boundary layer dynamics and transport from the upper layer, which are particularly challenging to reproduce for tropical regions. It is well known that regional models often struggle to accurately capture local-scale emissions and processes due to the coarse resolution (Valari and Menut, 2008; Wang et al., 2023) of

their grids (in this case, 30 km × 30 km), which can lead to discrepancies when comparing with point measurements. Nevertheless, despite room for improvement, our conclusion is that in regards to regional photo-oxidant chemistry, RegCM5 performance is consistent with both state-of-the-art chemical reanalysis and chemistry transport model.

When integrating BioNO emissions, we estimate that seasonal averaged BioNO fluxes range from 0.02 to 7 mg m⁻² y⁻¹, and that the total amount of nitrogen emitted from BioNO ranges between 0.01 and 4.4 Tg N per month, over the domain. The regional distribution of BioNO emissions is determined primarily from the environmental predictors considered in the ANN based parameterization, with soil moisture variability playing a particularly important role. Incorporating BioNO emissions leads to increased concentration levels of surface NO₂ (ranging from 0.05 to 4 ppb) and HNO₃ (from 0.05 to 0.3). A surface ozone decrease of up to 2 ppb is also observed over the Sahel, likely due to NO-

induced titration in the surface layer. Meanwhile, the O₃ concentrations show a relative increase in altitude, downwind from BioNO sources, and towards the regional scale (up to 4 ppb).

When comparing model performance to observations from INDAAF sites, the inclusion of BioNO emissions improves the representation of O₃, NO₂, and HNO₃ seasonal cycles and concentration values, and reduces biases in some cases. However, in certain conditions, it can also lead to an increase in biases, highlighting the complex interactions at play across different regions and ecosystems.

Overall, our study highlights an added value of including interactive BioNO emission representations, especially over the dry savannas of northern Sahel, since atmospheric nitrogen cycle and nitrogen deposition are particularly important for these ecosystems where N content is low and sensitive to small variations in deposition rates. These results also highlight the importance of accounting for surface processes such as biogenic soil NO emissions in coupled surface–atmosphere modeling frameworks. At the same time, they also emphasize the need to better constrain other natural sources, including biomass burning and lightning NO_x, to avoid misattribution or compensating biases in model evaluation. One limitation of the ANN approach is that it does not account for limitations in the nitrogen pool ready to be emitted, which could be an important factor in dry and unfertilized ecosystems. A deeper look at such limitations is anticipated, for example by using constraints from explicit soil nitrogen modules.

Perspectives of this work also include improving the representation of atmospheric chemistry processes important for the regional nitrogen budgets, such as lightning NO_x emissions and relevant heterogeneous chemistry processes (e.g. dust – HNO₃). This is likely to have a notable impact on deposition processes, while maintaining the numerical efficiency required for a climate scale simulation. In addition, future work should assess the uncertainties and limitations in other natural source inventories, particularly biomass burning and lightning NO_x emissions. Their seasonal covariation with BioNO and known underrepresentation in current inventories may influence the interpretation of model–observation comparisons and should be better constrained in future studies. It is also anticipated to perform multi-decadal simulations in order to investigate the impacts of regional climate variability and direct anthropogenic perturbations on the regional nitrogen cycle over Africa, which may provide deeper insight into future trends of these processes in Africa.

Code and data availability. The RegCM5 model code can be accessed at the web site: <https://zenodo.org/record/7548172#.Y8gVV7TM-KUK>. INDAAF measurement network data is available at <https://indaaf.obs-mip.fr> (last access: 13 June 2024). OMI TROPOMI-inferred ground-level NO₂ concentrations from 2010 to 2013 used in this study are available at

<https://doi.org/10.5281/zenodo.5424752> (Cooper, 2022). The GEOS-Chem model version 12.9.3 used in this work is available at <https://doi.org/10.5281/zenodo.3974569> (GEOS-Chem, 2020). The newly released V4.0 dataset of OMI/Aura-derived tropospheric NO₂ columns and detailed explanatory documentation is publicly accessible through the NASA Goddard Earth Sciences Data and Information Services Center at https://disc.gsfc.nasa.gov/datasets/OMNO2_V003/summary/ (last access: 26 September 2024). Data from these simulations can be freely shared upon request via email to fabien.solmon@univ-tlse3.fr.

Supplement. The supplement related to this article is available online at <https://doi.org/10.5194/acp-25-12101-2025-supplement>.

Author contributions. EMY designed and conducted the research under the supervision of FS and MA with CD, CGL, BS and GG acting as advisors. Methodology and original draft preparation were handled by EMY and FS. Writing, review, and editing were completed by MA, CD, CGL, BS and VY.

Competing interests. The contact author has declared that none of the authors has any competing interests.

Disclaimer. Publisher's note: Copernicus Publications remains neutral with regard to jurisdictional claims made in the text, published maps, institutional affiliations, or any other geographical representation in this paper. While Copernicus Publications makes every effort to include appropriate place names, the final responsibility lies with the authors. Also, please note that this paper has not received English language copy-editing. Views expressed in the text are those of the authors and do not necessarily reflect the views of the publisher.

Acknowledgements. The authors would like to acknowledge the INDAAF project (International Network to study Deposition and Atmospheric chemistry in Africa) supported by the INSU (Institut National des Sciences de l'Univers) /CNRS (Centre National de la Recherche Scientifique), IRD (Institut de Recherche pour le Développement) and the research infrastructure ACTRIS-FR registered on the Roadmap of the French Ministry of Research. We also express our gratitude to all INDAAF local technicians for their maintenance and sampling work. We also acknowledge the use of the CALMIP (CALcul du Midi-Pyrénées) computing resources, supported by CNRS, Toulouse INP, INSA Toulouse, ISAE Supaero, and UT3 Paul Sabatier (UAR 3667; <https://www.calmip.univ-toulouse.fr/node/1>, last access: 4 February 2024) for performing the numerical calculations presented in this paper.

Financial support. This research has been supported by the European Horizon 2020 project “Marie Skłodowska-Curie Actions Re-

search and Innovation Staff Exchange Integrated Nitrogen Studies in Africa” (H2020 MSCA-RISE INSA, grant no. 871944).

Review statement. This paper was edited by Maria Kanakidou and reviewed by three anonymous referees.

References

- Adon, M., Galy-Lacaux, C., Yoboué, V., Delon, C., Lacaux, J. P., Castera, P., Gardrat, E., Pienaar, J., Al Ourabi, H., Laouali, D., Diop, B., Sigha-Nkamdjou, L., Akpo, A., Tathy, J. P., Lavenue, F., and Mougin, E.: Long term measurements of sulfur dioxide, nitrogen dioxide, ammonia, nitric acid and ozone in Africa using passive samplers, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 7467–7487, <https://doi.org/10.5194/acp-10-7467-2010>, 2010.
- Adon, M., Galy-Lacaux, C., Delon, C., Yoboue, V., Solmon, F., and Kaptue Tchente, A.: Dry deposition of nitrogen compounds (NO₂, HNO₃, NH₃), sulfur dioxide and ozone in west and central African ecosystems using the inferential method, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 11351–11374, <https://doi.org/10.5194/acp-13-11351-2013>, 2013.
- Aghedo, A. M., Schultz, M. G., and Rast, S.: The influence of African air pollution on regional and global tropospheric ozone, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1193–1212, <https://doi.org/10.5194/acp-7-1193-2007>, 2007.
- Ainsworth, E. A., Yendrek, C. R., Sitch, S., Collins, W. J., and Emberson, L. D.: The Effects of Tropospheric Ozone on Net Primary Productivity and Implications for Climate Change, *Annu. Rev. Plant Biol.*, 63, 637–661, <https://doi.org/10.1146/annurev-arplant-042110-103829>, 2012.
- Akpo, A., Galy-Lacaux, C., Delon, C., Gardrat, E., Dias Alves, M., Lenoir, O., Halisson, J., Darakpa, C., and Darakpa, D.: Trace gases, Djougou, Benin, Aeris [data set], <https://doi.org/10.25326/605>, 2023.
- Austin, A. T., Yahdjian, L., Stark, J. M., Belnap, J., Porporato, A., Norton, U., Ravetta, D. A., and Schaeffer, S. M.: Water pulses and biogeochemical cycles in arid and semiarid ecosystems, *Oecologia*, 141, 221–235, <https://doi.org/10.1007/s00442-004-1519-1>, 2004.
- Bahino, J., Yoboué, V., Galy-Lacaux, C., Adon, M., Akpo, A., Keita, S., Liousse, C., Gardrat, E., Chiron, C., Ossouhou, M., Gnamien, S., and Djossou, J.: A pilot study of gaseous pollutants’ measurement (NO₂, SO₂, NH₃, HNO₃ and O₃) in Abidjan, Côte d’Ivoire: contribution to an overview of gaseous pollution in African cities, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 5173–5198, <https://doi.org/10.5194/acp-18-5173-2018>, 2018.
- Ban, N., Caillaud, C., Coppola, E., Pichelli, E., Sobolowski, S., Adinolfi, M., Ahrens, B., Alias, A., Anders, I., Bastin, S., Belušić, D., Berthou, S., Brisson, E., Cardoso, R. M., Chan, S. C., Christensen, O. B., Fernández, J., Fita, L., Frisius, T., Gašparac, G., Giorgi, F., Goergen, K., Haugen, J. E., Hodnebrog, Ø., Kartsios, S., Katragkou, E., Kendon, E. J., Keuler, K., Lavin-Gullon, A., Lenderink, G., Leutwyler, D., Lorenz, T., Maraun, D., Mercogliano, P., Milovac, J., Panitz, H.-J., Raffa, M., Reca Remedio, A., Schär, C., Soares, P. M. M., Srnec, L., Steensen, B. M., Stocchi, P., Tölle, M. H., Truhetz, H., Vergara-Temprado, J., de Vries, H., Warrach-Sagi, K., Wulfmeyer, V., and Zander, M. J.: The first multi-model ensemble of regional climate simulations at kilometer-scale resolution, part I: evaluation of precipitation, *Clim. Dynam.*, 57, 275–302, <https://doi.org/10.1007/s00382-021-05708-w>, 2021.
- Bretherton, C. S., McCaa, J. R., and Grenier, H.: A new parameterization for shallow cumulus convection and its application to marine subtropical cloud-topped boundary layers. Part I: Description and 1D results, *Mon. Weather Rev.*, 132, 864–882, [https://doi.org/10.1175/1520-0493\(2004\)132<0864:ANPFSC>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0493(2004)132<0864:ANPFSC>2.0.CO;2), 2004.
- Bryan, A. M. and Steiner, A. L.: Canopy controls on the forest-atmosphere exchange of biogenic ozone and aerosol precursors, *Michigan J. Sustainabil.*, 1, <https://doi.org/10.3998/mjs.12333712.0001.005>, 2013.
- Bucchignani, E., Mercogliano, P., Panitz, H.-J., and Monte-sarchio, M.: Climate change projections for the Middle East–North Africa domain with COSMO-CLM at different spatial resolutions, *Adv. Climate Change Res.*, 9, 66–80, <https://doi.org/10.1016/j.accre.2018.01.004>, 2018.
- Butterbach-Bahl, K., Kock, M., Willibald, G., Hewett, B., Buhagiar, S., Papen, H., and Kiese, R.: Temporal variations of fluxes of NO, NO₂, N₂O, CO₂, and CH₄ in a tropical rain forest ecosystem, *Global Biogeochem. Cy.*, 18, <https://doi.org/10.1029/2004GB002243>, 2004.
- Cao, L., Li, S., and Sun, L.: Study of different Carbon Bond 6 (CB6) mechanisms by using a concentration sensitivity analysis, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 12687–12701, <https://doi.org/10.5194/acp-21-12687-2021>, 2021.
- Carmichael, G. R., Feh, M., Thongboonchoo, N., Woo, J.-H., Chan, L., Murano, K., Viet, P. H., Mossberg, C., Bala, R., Boonjawat, J., Upatum, P., Mohan, M., Adhikary, S. P., Shrestha, A. B., Pienaar, J. J., Brunke, E. B., Chen, T., Jie, T., Guoan, D., Peng, L. C., Dhiharto, S., Harjanto, H., Jose, A. M., Kimani, W., Kirouane, A., Lacaux, J.-P., Richard, S., Barturen, O., Cerda, J. C., Athayde, A., Tavares, T., Cotrina, J. S., and Bilici, E.: Measurements of sulfur dioxide, ozone and ammonia concentrations in Asia, Africa, and South America using passive samplers, *Atmos. Environ.*, 37, 1293–1308, [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(02\)01009-9](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(02)01009-9), 2003.
- Carter, W. P. L.: Development of the SAPRC-07 chemical mechanism, *Atmos. Environ.*, 44, 5324–5335, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2010.01.026>, 2010.
- Charusombat, U., Niyogi, D., Kumar, A., Wang, X., Chen, F., Guenther, A., Turnipseed, A., and Alapaty, K.: Evaluating a new deposition velocity module in the Noah land-surface model, *Bound.-Lay. Meteorol.*, 137, 271–290, <https://doi.org/10.1007/s10546-010-9531-y>, 2010.
- Chauvin, F., Roehrig, R., and Lafore, J.-P.: Intraseasonal variability of the Saharan heat low and its link with midlatitudes, *J. Climate*, 23, 2544–2561, <https://doi.org/10.1175/2010JCLI3093.1>, 2010.
- Ciarlo, J., Aquilina, N., Strada, S., Shalaby, A., and Solmon, F.: A modified gas-phase scheme for advanced regional climate modelling with RegCM4, *Clim. Dynam.*, 57, 489–502, <https://doi.org/10.1007/s00382-021-05722-y>, 2021.
- Cooper, M.: Satellite-derived ground level NO₂ concentrations, 2005–2019, Zenodo [code], <https://doi.org/10.5281/zenodo.5424752> (last access: 24 September 2024), 2022.

- Cooper, M. J., Martin, R. V., McLinden, C. A., and Brook, J. R.: Inferring ground-level nitrogen dioxide concentrations at fine spatial resolution applied to the TROPOMI satellite instrument, *Environ. Res. Lett.*, 15, 104013, <https://doi.org/10.1088/1748-9326/aba3a5>, 2020a.
- Cooper, M. J., Martin, R. V., McLinden, C. A., and Brook, J. R.: Inferring ground-level nitrogen dioxide concentrations at fine spatial resolution applied to the TROPOMI satellite instrument, *Environ. Res. Lett.*, 15, 104013, <https://doi.org/10.1088/1748-9326/aba3a5>, 2020b.
- Cooper, M. J., Martin, R. V., Hammer, M. S., Levelt, P. F., Veeffkind, P., Lamsal, L. N., Krotkov, N. A., Brook, J. R., and McLinden, C. A.: Global fine-scale changes in ambient NO₂ during COVID-19 lockdowns, *Nature*, 601, 380–387, <https://doi.org/10.1038/s41586-021-04229-0>, 2022.
- Coppola, E., Sobolowski, S., Pichelli, E., Raffaele, F., Ahrens, B., Anders, I., Ban, N., Bastin, S., Belda, M., Belusic, D., Caldas-Alvarez, A., Cardoso, R. M., Davolio, S., Dobler, A., Fernández, J., Fita, L., Fumière, Q., Giorgi, F., Goergen, K., Gütler, I., Halenka, T., Heinzeller, D., Hodnebrog, Ø., Jacob, D., Kartsios, S., Katragkou, E., Kendon, E., Khodayar, S., Kunstmann, H., Knist, S., Lavín-Gullón, A., Lind, P., Lorenz, T., Maraun, D., Marelle, L., Van Meijgaard, E., Milovac, J., Myhre, G., Panitz, H.-J., Piazza, M., Raffa, M., Raub, T., Rockel, B., Schär, C., Sieck, K., Soares, P. M. M., Somot, S., Srncic, L., Stocchi, P., Tölle, M. H., Truhetz, H., Vautard, R., De Vries, H., and Warrach-Sagi, K.: A first-of-its-kind multi-model convection permitting ensemble for investigating convective phenomena over Europe and the Mediterranean, *Clim. Dynam.*, 55, 3–34, <https://doi.org/10.1007/s00382-018-4521-8>, 2020.
- Davidson, E. A. and Kinglerlee, W.: A global inventory of nitric oxide emissions from soils, *Nutr. Cycl. Agroecosyst.*, 48, 37–50, <https://doi.org/10.1023/A:1009738715891>, 1997.
- Davidson, E. A., Keller, M., Erickson, H. E., Verchot, L. V., and Veldkamp, E.: Testing a conceptual model of soil emissions of nitrous and nitric oxides: using two functions based on soil nitrogen availability and soil water content, the hole-in-the-pipe model characterizes a large fraction of the observed variation of nitric oxide and nitrous oxide emissions from soils, *Bioscience*, 50, 667–680, [https://doi.org/10.1641/0006-3568\(2000\)050\[0667:TACMOS\]2.0.CO;2](https://doi.org/10.1641/0006-3568(2000)050[0667:TACMOS]2.0.CO;2), 2000.
- Davolio, S., Malguzzi, P., Drofa, O., Mastrangelo, D., and Buzzi, A.: The Piedmont flood of November 1994: A testbed of forecasting capabilities of the CNR-ISAC meteorological model suite, *Bull. Atmos. Sci. Technol.*, 1, 263–282, 2020.
- Delmas, R., Peuch, V.-H., Mégie, G., and Brasseur, G. P.: Emissions anthropiques et naturelles et dépôts, in: *Physique et chimie de l'atmosphère*, chap. 5, Belin, ISBN 2-7011-3700-4, 1995.
- Delon, C., Serça, D., Boissard, C., Dupont, R., Dutot, A., Laville, P., De Rosnay, P., and Delmas, R.: Soil NO emissions modelling using artificial neural network, *Tellus B* 59, 502–513, <https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2007.00254.x>, 2007.
- Delon, C., Reeves, C., Stewart, D., Serça, D., Dupont, R., Mari, C., Chaboureaud, J.-P., and Tulet, P.: Biogenic nitrogen oxide emissions from soils—impact on NO_x and ozone over West Africa during AMMA (African Monsoon Multidisciplinary Experiment): modelling study, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 2351–2363, <https://doi.org/10.5194/acp-8-2351-2008>, 2008.
- Delon, C., Galy-Lacaux, C., Boone, A., Lioussé, C., Serça, D., Adon, M., Diop, B., Akpo, A., Lavenu, F., Mougin, E., and Timouk, F.: Atmospheric nitrogen budget in Sahelian dry savannas, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 2691–2708, <https://doi.org/10.5194/acp-10-2691-2010>, 2010.
- Delon, C., Galy-Lacaux, C., Adon, M., Lioussé, C., Serça, D., Diop, B., and Akpo, A.: Nitrogen compounds emission and deposition in West African ecosystems: comparison between wet and dry savanna, *Biogeosciences*, 9, 385–402, <https://doi.org/10.5194/bg-9-385-2012>, 2012.
- Delon, C., Mougin, E., Serça, D., Grippa, M., Hiernaux, P., Diawara, M., Galy-Lacaux, C., and Kergoat, L.: Modelling the effect of soil moisture and organic matter degradation on biogenic NO emissions from soils in Sahel rangeland (Mali), *Biogeosciences*, 12, 3253–3272, <https://doi.org/10.5194/bg-12-3253-2015>, 2015.
- Delon, C., Galy-Lacaux, C., Serça, D., Loubet, B., Camara, N., Gardrat, E., Saneh, I., Fensholt, R., Tagesson, T., Le Dantec, V., Sambou, B., Diop, C., and Mougin, E.: Soil and vegetation-atmosphere exchange of NO, NH₃, and N₂O from field measurements in a semi arid grazed ecosystem in Senegal, *Atmos. Environ.*, 156, 36–51, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2017.02.024>, 2017.
- Dickinson, R. E.: Biosphere/atmosphere transfer scheme (BATS) for the NCAR community climate model, Technical report, National Center for Research, <https://cir.nii.ac.jp/crid/1574231873842566272> (last access: 23 November 2023), 1986.
- Dickinson, R. E., Errico, R. M., Giorgi, F., and Bates, G. T.: A regional climate model for the Western United States, *Climate Change*, 15, 383–422, <https://doi.org/10.1007/bf00240465>, 1989.
- Emmons, L. K., Walters, S., Hess, P. G., Lamarque, J.-F., Pfister, G. G., Fillmore, D., Granier, C., Guenther, A., Kinnison, D., Laepple, T., Orlando, J., Tie, X., Tyndall, G., Wiedinmyer, C., Baughcum, S. L., and Kloster, S.: Description and evaluation of the Model for Ozone and Related chemical Tracers, version 4 (MOZART-4), *Geosci. Model Dev.*, 3, 43–67, <https://doi.org/10.5194/gmd-3-43-2010>, 2010.
- Evan, A. T., Flamant, C., Lavaysse, C., Kocha, C., and Saci, A.: Water vapor–forced greenhouse warming over the Sahara Desert and the recent recovery from the Sahelian drought, *J. Climate*, 28, 108–123, <https://doi.org/10.1175/JCLI-D-14-00039.1>, 2015.
- *FAAM: FAAM Airborne Laboratory, <https://www.faam.ac.uk> (last access: 26 February 2025), 2018.
- Feig, G., Mamtimin, B., and Meixner, F.: Soil biogenic emissions of nitric oxide from a semi-arid savanna in South Africa, *Biogeosciences*, 5, 1723–1738, <https://doi.org/10.5194/bg-5-1723-2008>, 2008.
- Ferm, M. and Rodhe, H.: Measurements of air concentrations of SO₂, NO₂ and NH₃ at rural and remote sites in Asia, *J. Atmos. Chem.*, 27, 17–29, <https://doi.org/10.1023/A:1005816621522>, 1997.
- Ferm, M., Lindskog, A., Svanberg, P., and Boström, C.: New measurement technique for air pollutants, *Kemisk Tidskrift*, 1, 30–32, 1994.
- Flechar, C. R., Simpson, D., Skjøth, C. A., Rees, R. M., Erisman, J. W., Nemitz, E., Milford, C., Sutton, M. A., Hertel, O., Hensen, A., Fowler, D., Fagerli, H., Dore, A. J., Davidson, E. A., Butterbach-Bahl, K., Amman, C., and Agrawal, M.: Dry de-

- position of reactive nitrogen to European ecosystems: a comparison of inferential models across the NitroEurope network, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 2703–2728, <https://doi.org/10.5194/acp-11-2703-2011>, 2011.
- Fountoukis, C. and Nenes, A.: ISORROPIA II: a computationally efficient thermodynamic equilibrium model for K^+ – Ca^{2+} – Mg^{2+} – NH_4^+ – Na^+ – SO_4^{2-} – NO_3^- – Cl^- – H_2O aerosols, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 4639–4659, <https://doi.org/10.5194/acp-7-4639-2007>, 2007.
- Fudjoe, S. K., Li, L., Anwar, S., Shi, S., Xie, J., Wang, L., Xie, L., and Yongjie, Z.: Nitrogen fertilization promoted microbial growth and N_2O emissions by increasing the abundance of nirS and nosZ denitrifiers in semiarid maize field, *Front. Microbiol.*, 14, 1265562, <https://doi.org/10.3389/fmicb.2023.1265562>, 2023.
- Galloway, J. N., Townsend, A. R., Erisman, J. W., Bekunda, M., Cai, Z., Freney, J. R., Martinelli, L. A., Seitzinger, S. P., and Sutton, M. A.: Transformation of the nitrogen cycle: recent trends, questions, and potential solutions, *Science*, 320, 889–892, <https://doi.org/10.1126/science.113667>, 2008.
- Galy-Lacaux, C. and Modi, A.: Precipitation chemistry in the Sahelian savanna of Niger, Africa, *J. Atmos. Chem.*, 30, 319–343, <https://doi.org/10.1023/A:1006027730377>, 1998.
- Galy-Lacaux, C., Laouali, D., Descroix, L., Gobron, N., and Liousse, C.: Long term precipitation chemistry and wet deposition in a remote dry savanna site in Africa (Niger), *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 1579–1595, <https://doi.org/10.5194/acp-9-1579-2009>, 2009.
- Galy-Lacaux, C., Diop, B., Orange, D., Sanogo, S., Soumaguel, N., Kanouté, C., Gardrat, E., Dias Alves, M., Lenoir, O., Ossouhou, M., Adon, M., and Al-Ourabi, H.: Trace gases, Katibougou, Mali, AERIS [data set], <https://doi.org/10.25326/604>, 2023a.
- Galy-Lacaux, C., Yoboué, V., Ossouhou, M., Gardrat, E., Dias Alves, M., Lenoir, O., Konaté, I., Ki, A., Ouattara, A., Adon, M., Al-Ourabi, H., and Zouzou, R.: Trace gases, Lamto, Côte d'Ivoire, AERIS [data set], <https://doi.org/10.25326/275>, 2023e.
- Galy-Lacaux, C., Tathy, J.-P., Opepa, C., Brncic, T., Gardrat, E., Dias Alves, M., and Lenoir, O.: Trace gases, Bomassa, Congo, AERIS [data set], <https://doi.org/10.25326/607>, 2023f.
- Ganzeveld, L. and Lelieveld, J.: Impact of Amazonian deforestation on atmospheric chemistry, *Geophys. Res. Lett.*, 31, <https://doi.org/10.1029/2003GL019205>, 2004.
- Ganzeveld, L., Lelieveld, J., Dentener, F., Krol, M., Bouwman, A., and Roelofs, G.-J.: Global soil-biogenic NO_x emissions and the role of canopy processes, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 107, ACH-9, <https://doi.org/10.1029/2001JD000684>, 2002.
- Gasche, R. and Papen, H.: A 3-year continuous record of nitrogen trace gas fluxes from untreated and limed soil of a N-saturated spruce and beech forest ecosystem in Germany: 2. NO and NO_2 fluxes, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 104, 18505–18520, <https://doi.org/10.1029/1999JD900294>, 1999.
- GEOS-Chem: GEOS-Chem 12.9.3, Zenodo [code], <https://doi.org/10.5281/zenodo.3974569>, 2020.
- Gery, M. W., Whitten, G. Z., Killus, J. P., and Dodge, M. C.: A photochemical kinetics mechanism for urban and regional scale computer modeling, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 94, 12925–12956, <https://doi.org/10.1029/JD094iD10p12925>, 1989.
- Giglio, L., Randerson, J. T., and van der Werf, G. R.: Analysis of daily, monthly, and annual burned area using the fourth generation global fire emissions database (GFED4), *J. Geophys. Res.-Biogeophys.*, 118, 317–328, <https://doi.org/10.1002/jgrg.20042>, 2013.
- Giorgi, F. and Bates, G. T.: The climatological skill of a regional model over complex terrain, *Mon. Weather Rev.*, 117, 2325–2347, [https://doi.org/10.1175/1520-0493\(1989\)117<2325:tcsoar>2.0.co;2](https://doi.org/10.1175/1520-0493(1989)117<2325:tcsoar>2.0.co;2), 1989.
- Giorgi, F. and Mearns, L. O.: Introduction to special section: Regional climate modeling revisited, *J. Geophys. Res.*, 104, 6335–6352, <https://doi.org/10.1029/98jd02072>, 1999.
- Giorgi, F., Coppola, E., Solmon, F., Mariotti, L., Sylla, M., Bi, X., Elguindi, N., Diro, G. T., Nair, V., Giuliani, G., Turuncoglu, U. U., Cozzini, S., Guttler, I., O'Brien, T. A., Tawfik, A. B., Shalaby, A., Zakey, A. S., Steiner, A. L., Stordal, F., Sloan, L. C., and Brankovic, C.: RegCM4: Model description and preliminary tests over multiple CORDEX domains, *Clim. Res.*, 52, 31–48, <https://doi.org/10.3354/cr01018>, 2012.
- Giorgi, F., Coppola, E., Giuliani, G., Ciarlo, J. M., Pichelli, E., Nogherotto, R., Raffaele, F., Malguzzi, P., Davolio, S., Stocchi, P., and Drofa, O.: The fifth generation regional climate modeling system, RegCM5: Description and illustrative examples at parameterized convection and convection-permitting resolutions, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 128, e2022JD038199, <https://doi.org/10.1029/2022JD038199>, 2023.
- Granier, C., Pétron, G., Müller, J.-F., and Brasseur, G.: The impact of natural and anthropogenic hydrocarbons on the tropospheric budget of carbon monoxide, *Atmos. Environ.*, 34, 5255–5270, [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(00\)00299-5](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(00)00299-5), 2000.
- Granier, C., Guenther, A., Lamarque, J. F., Mieville, A., Muller, J. F., Olivier, J., Orlando, J., Peters, J., Petron, G., Tyndall, G., and Wallens, S.: POET, a database of surface emissions of ozone precursors, <http://www.aero.jussieu.fr/projet/ACCENT/POET.php> (last access: 25 March 2025), 2005.
- Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P. I., and Geron, C.: Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3181–3210, <https://doi.org/10.5194/acp-6-3181-2006>, 2006.
- Harris, I., Osborn, T. J., Jones, P., and Lister, D.: Version 4 of the CRU TS monthly high-resolution gridded multivariate climate dataset, *Sci. Data*, 7, 109, <https://doi.org/10.1038/s41597-020-0453-3>, 2020.
- Hersbach, H., Bell, B., Berrisford, P., Hirahara, S., Horányi, A., Muñoz-Sabater, J., Nicolas, J., Peubey, C., Radu, R., Schepers, D., Simmons, A., Soci, C., Abdalla, S., Abellan, X., Balsamo, G., Bechtold, P., Biavati, G., Bidlot, J., Bonavita, M., De Chiara, G., Dahlgren, P., Dee, D., Diamantakis, M., Dragani, R., Flemming, J., Forbes, R., Fuentes, M., Geer, A., Haimberger, L., Healy, S., Hogan, R. J., Hólm, E., Janisková, M., Keeley, S., Laloyaux, P., Lopez, P., Lupu, C., Radnoti, G., De Rosnay, P., Rozum, I., Vamborg, F., Villaume, S., and Thépaut, J.-N.: The ERA5 global reanalysis, *Q. J. Roy. Meteorol. Soc.*, 146, 1999–2049, <https://doi.org/10.1002/qj.3803>, 2020.
- Hickman, J. E., Dammers, E., Galy-Lacaux, C., and Van der Werf, G. R.: Satellite evidence of substantial rain-induced soil emissions of ammonia across the Sahel, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 16713–16727, <https://doi.org/10.5194/acp-18-16713-2018>, 2018.

- Horowitz, L. W., Walters, S., Mauzerall, D. L., Emmons, L. K., Rasch, P. J., Granier, C., Tie, X., Lamarque, J.-F., Schultz, M. G., Tyndall, G. S., Orlando, J. J., and Brasseur, G. P.: A global simulation of tropospheric ozone and related tracers: Description and evaluation of MOZART, version 2, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 108, <https://doi.org/10.1029/2002JD002853>, 2003.
- Hourdin, F., Musat, I., Guichard, F. S., Ruti, P. M., Favot, F., Filiberti, M.-A., Pham, M., Grandpeix, J.-Y., Polcher, J., Marquet, P., Boone, A., Lafore, J.-P., Redelsperger, J.-L., Dell'Aquila, A., Doval, T. L., Traore, A. K., and Gallée, H.: AMMA-model intercomparison project, *B. Am. Meteorol. Soc.*, 91, 95–104, <https://doi.org/10.1175/2009BAMS2791.1>, 2010.
- Hudman, R., Moore, N., Mebust, A., Martin, R., Russell, A., Valin, L., and Cohen, R.: Steps towards a mechanistic model of global soil nitric oxide emissions: implementation and space based-constraints, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 7779–7795, <https://doi.org/10.5194/acp-12-7779-2012>, 2012.
- Huffman, G. J., Bolvin, D. T., Nelkin, E. J., Wolff, D. B., Adler, R. F., Gu, G., Hong, Y., Bowman, K. P., and Stocker, E. F.: The TRMM multisatellite precipitation analysis (TMPA): Quasi-global, multiyear, combined-sensor precipitation estimates at fine scales, *J. Hydrometeorol.*, 8, 38–55, <https://doi.org/10.1175/JHM560.1>, 2007.
- Huijnen, V., Pozzer, A., Arteta, J., Brasseur, G., Bouarar, I., Chabrilat, S., Christophe, Y., Doumbia, T., Flemming, J., Guth, J., Josse, B., Karydis, V. A., Maréchal, V., and Pelletier, S.: Quantifying uncertainties due to chemistry modelling – evaluation of tropospheric composition simulations in the CAMS model (cycle 43R1), *Geosci. Model Dev.*, 12, 1725–1752, <https://doi.org/10.5194/gmd-12-1725-2019>, 2019.
- Huijnen, V., Miyazaki, K., Flemming, J., Inness, A., Sekiya, T., and Schultz, M. G.: An intercomparison of tropospheric ozone reanalysis products from CAMS, CAMS interim, TCR-1, and TCR-2, *Geosci. Model Dev.*, 13, 1513–1544, <https://doi.org/10.5194/gmd-13-1513-2020>, 2020.
- Igbb-Dis: A program for creating global soil-property databases, IGBP Global Soils Data Task, France, <https://sage.nelson.wisc.edu/data-and-models/atlas-of-the-biosphere/mapping-the-biosphere/land-use/soil-ph/> (last access: 23 November 2023), 1998.
- INDAAF: International Network to study Deposition and Atmospheric chemistry in Africa, <https://indaaf.obs-mip.fr> (last access: 26 February 2025), 2021.
- Inness, A., Ades, M., Agustí-Panareda, A., Barré, J., Benedictow, A., Blechschmidt, A.-M., Dominguez, J. J., Engelen, R., Eskes, H., Flemming, J., Huijnen, V., Jones, L., Kipling, Z., Massart, S., Parrington, M., Peuch, V.-H., Razinger, M., Remy, S., Schulz, M., and Suttie, M.: The CAMS reanalysis of atmospheric composition, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 3515–3556, <https://doi.org/10.5194/acp-19-3515-2019>, 2019.
- Jaeglé, L., Martin, R. V., Chance, K., Steinberger, L., Kurosu, T. P., Jacob, D. J., Modi, A., Yoboué, V., Sigha-Nkamdjou, L., and Galy-Lacaux, C.: Satellite mapping of rain-induced nitric oxide emissions from soils, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 109, <https://doi.org/10.1029/2004JD004787>, 2004.
- Jaeglé, L., Steinberger, L., Martin, R. V., and Chance, K.: Global partitioning of NO_x sources using satellite observations: Relative roles of fossil fuel combustion, biomass burning and soil emissions, *Faraday Discuss.*, 130, 407–423, <https://doi.org/10.1039/B502128F>, 2005.
- Johansson, C., Rodhe, H., and Sanhueza, E.: Emission of NO in a tropical savanna and a cloud forest during the dry season, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 93, 7180–7192, <https://doi.org/10.1029/JD093iD06p07180>, 1988.
- KhayatyanYazdi, F., Kamali, G., Mirrokni, S. M., and Memarian, M. H.: Sensitivity evaluation of the different physical parameterizations schemes in regional climate model RegCM4.5 for simulation of air temperature and precipitation over North and West of Iran, *Dynam. Atmos. Oceans*, 93, 101199, <https://doi.org/10.1016/j.dynatmoce.2020.101199>, 2021.
- Kleinman, L. I.: Low and high NO_x tropospheric photochemistry, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 99, 16831–16838, <https://doi.org/10.1029/94JD01028>, 1994.
- Koné, B., Diedhiou, A., Diawara, A., Anquetin, S., Touré, N. E., Bamba, A., and Koba, A. T.: Influence of initial soil moisture in a regional climate model study over West Africa – Part 2: Impact on the climate extremes, *Hydrol. Earth Syst. Sci.*, 26, 731–754, <https://doi.org/10.5194/hess-26-731-2022>, 2022.
- Lamsal, L. N., Krotkov, N. A., Vasilkov, A., Marchenko, S., Qin, W., Yang, E.-S., Fasnacht, Z., Joiner, J., Choi, S., Haffner, D., Swartz, W. H., Fisher, B., and Bucseles, E.: Ozone Monitoring Instrument (OMI) Aura nitrogen dioxide standard product version 4.0 with improved surface and cloud treatments, *Atmos. Meas. Tech.*, 14, 455–479, <https://doi.org/10.5194/amt-14-455-2021>, 2021.
- Laouali, D., Galy-Lacaux, C., Gardrat, E., Dias Alves, M., Lenoir, O., Zakou, A., Ossouhou, M., Adon, M., and Al-Ourabi, H.: Trace gases, Banizoumbou, Niger, AERIS [data set], <https://doi.org/10.25326/608>, 2023.
- Lathiere, J., Hauglustaine, D., Friend, A., De Noblet-Ducoudré, N., Viovy, N., and Folberth, G.: Impact of climate variability and land use changes on global biogenic volatile organic compound emissions, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 2129–2146, <https://doi.org/10.5194/acp-6-2129-2006>, 2006.
- Lavaysse, C., Flamant, C., Janicot, S., Parker, D. J., Lafore, J.-P., Sultan, B., and Pelon, J.: Seasonal evolution of the West African heat low: a climatological perspective, *Clim. Dynam.*, 33, 313–330, <https://doi.org/10.1007/s00382-009-0553-4>, 2009.
- Lavaysse, C., Flamant, C., and Janicot, S.: Regional-scale convection patterns during strong and weak phases of the Saharan heat low, *Atmos. Sci. Lett.*, 11, 255–264, <https://doi.org/10.1002/asl.284>, 2010.
- Lavaysse, C., Chaboureaud, J.-P., and Flamant, C.: Dust impact on the West African heat low in summertime, *Q. J. Roy. Meteorol. Soc.*, 137, 1227–1240, <https://doi.org/10.1002/qj.844>, 2011.
- Lelieveld, J. and Dentener, F. J.: What controls tropospheric ozone?, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 105, 3531–3551, <https://doi.org/10.1029/1999JD901011>, 2000.
- Li, J., Nagashima, T., Kong, L., Ge, B., Yamaji, K., Fu, J. S., Wang, X., Fan, Q., Itahashi, S., Lee, H.-J., Kim, C.-H., Lin, C.-Y., Zhang, M., Tao, Z., Kajino, M., Liao, H., Li, M., Woo, J.-H., Kurokawa, J., Wang, Z., Wu, Q., Akimoto, H., Carmichael, G. R., and Wang, Z.: Model evaluation and intercomparison of surface-level ozone and relevant species in East Asia in the context of MICS-Asia Phase III – Part 1: Overview, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 12993–13015, <https://doi.org/10.5194/acp-19-12993-2019>, 2019.

- Li, R., Xu, M., Li, M., Chen, Z., Zhao, N., Gao, B., and Yao, Q.: Identifying the spatiotemporal variations in ozone formation regimes across China from 2005 to 2019 based on polynomial simulation and causality analysis, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 15631–15646, <https://doi.org/10.5194/acp-21-15631-2021>, 2021.
- Li, X., Yan, Y., Lu, X., Fu, L., and Liu, Y.: Responses of soil bacterial communities to precipitation change in the semi-arid alpine grassland of Northern Tibet, *Front. Plant Sci.*, 13, 1036369, <https://doi.org/10.3389/fpls.2022.1036369>, 2022.
- Lin, H., Emmons, L. K., Lundgren, E. W., Yang, L. H., Feng, X., Dang, R., Zhai, S., Tang, Y., Kelp, M. M., Colombi, N. K., Eastham, S. D., Fritz, T. M., and Jacob, D. J.: Inter-comparison of GEOS-Chem and CAM-chem tropospheric oxidant chemistry within the Community Earth System Model version 2 (CESM2), *Atmos. Chem. Phys.*, 24, 8607–8624, <https://doi.org/10.5194/acp-24-8607-2024>, 2024.
- Lin, W., Xu, X., Yu, X., Zhang, X., and Huang, J.: Observed levels and trends of gaseous SO₂ and HNO₃ at Mt. Waliguan, China: Results from 1997 to 2009, *J. Environ. Sci.*, 25, 726–734, [https://doi.org/10.1016/S1001-0742\(12\)60143-0](https://doi.org/10.1016/S1001-0742(12)60143-0), 2013.
- Liu, W., Zhang, Z., and Wan, S.: Predominant role of water in regulating soil and microbial respiration and their responses to climate change in a semiarid grassland, *Global Change Biol.*, 15, 184–195, <https://doi.org/10.1111/j.1365-2486.2008.01728.x>, 2009.
- Liu, X., Xu, W., Du, E., Tang, A., Zhang, Y., Zhang, Y., Wen, Z., Hao, T., Pan, Y., Zhang, L., Gu, B. J., Zhao, Y., Shen, J. L., Zhou, F., Gao, Z. L., Feng, Z. Z., Chang, Y. H., Goulding, K., Collett Jr, J. L., Vitousek, P. M., and Zhang, F. S.: Environmental impacts of nitrogen emissions in China and the role of policies in emission reduction, *Philos. T. Roy. Soc. A*, 378, 20190324, <https://doi.org/10.1098/rsta.2019.0324>, 2020.
- Lucas-Picher, P., Argüeso, D., Brisson, E., Trambly, Y., Berg, P., Lemonsu, A., Kotlarski, S., and Caillaud, C.: Convection-permitting modeling with regional climate models: Latest developments and next steps, *Wiley Interdisciplin. Rev.: Clim. Change*, 12, e731, <https://doi.org/10.1002/wcc.731>, 2021.
- Ludwig, J., Meixner, F. X., Vogel, B., and Förstner, J.: Soil-air exchange of nitric oxide: An overview of processes, environmental factors, and modeling studies, *Biogeochemistry*, 52, 225–257, <https://doi.org/10.1023/A:1006424330555>, 2001.
- Marais, E. A., Jacob, D. J., Guenther, A., Chance, K., Kurosu, T. P., Murphy, J. G., Reeves, C. E., and Pye, H. O. T.: Improved model of isoprene emissions in Africa using Ozone Monitoring Instrument (OMI) satellite observations of formaldehyde: implications for oxidants and particulate matter, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 7693–7703, <https://doi.org/10.5194/acp-14-7693-2014>, 2014.
- Mbienda, A. K., Guenang, G., Kaissassou, S., Tanessong, R., Choumbou, P., and Giorgi, F.: Enhancement of RegCM4.7-CLM precipitation and temperature by improved bias correction methods over Central Africa, *Meteorol. Appl.*, 30, e2116, <https://doi.org/10.1002/met.2116>, 2023.
- McNally, A., Arsenaault, K., Kumar, S., Shukla, S., Peterson, P., Wang, S., Funk, C., Peters-Lidard, C. D., and Verdin, J. P.: A land data assimilation system for sub-Saharan Africa food and water security applications, *Sci. Data*, 4, 1–19, <https://doi.org/10.1038/sdata.2017.12>, 2017.
- McNally, A.: FLDAS noah land surface model L4 global monthly 0.1 × 0.1 degree (MERRA-2 and CHIRPS), *Atmos. Compos. Water Energy Cycles Clim. Var.*, <https://doi.org/10.5067/5NHC22T9375G>, 2018.
- McNeill, A. and Unkovich, M.: The nitrogen cycle in terrestrial ecosystems, in: *Nutrient cycling in terrestrial ecosystems*, Springer, 37–64, https://doi.org/10.1007/978-3-540-68027-7_2, 2007.
- Medinets, S., Skiba, U., Rennenberg, H., and Butterbach-Bahl, K.: A review of soil NO transformation: associated processes and possible physiological significance on organisms, *Soil Biol. Biochem.*, 80, 92–117, <https://doi.org/10.1016/j.soilbio.2014.09.025>, 2015.
- Meixner, F. X. and Yang, W. X.: Biogenic emissions of nitric oxide and nitrous oxide from arid and semi-arid land, *Dryland Ecohydrol.*, 233–255, https://doi.org/10.1007/1-4020-4260-4_14, 2006.
- Mosier, A. R.: Exchange of gaseous nitrogen compounds between agricultural systems and the atmosphere, *Plant Soil*, 228, 17–27, <https://doi.org/10.1023/A:1004821205442>, 2001.
- Mostafa, A. N., Zakey, A. S., Alfaro, S. C., Wheida, A. A., Monem, S. A., and Abdul Wahab, M. M.: Validation of RegCM-CHEM4 model by comparison with surface measurements in the Greater Cairo (Egypt) megacity, *Environ. Sci. Pollut. Res.*, 26, 23524–23541, <https://doi.org/10.1007/s11356-019-05370-0>, 2019.
- Müller, J.-F.: Geographical distribution and seasonal variation of surface emissions and deposition velocities of atmospheric trace gases, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 97, 3787–3804, <https://doi.org/10.1029/91JD02757>, 1992.
- Nenes, A., Pandis, S. N., and Pilinis, C.: ISORROPIA: A new thermodynamic equilibrium model for multiphase multicomponent inorganic aerosols, *Aquat. Geochem.*, 4, 123–152, <https://doi.org/10.1023/A:1009604003981>, 1998.
- Nikulin, G., Kjellström, E., Hansson, U., Strandberg, G., and Ullerstig, A.: Evaluation and future projections of temperature, precipitation and wind extremes over Europe in an ensemble of regional climate simulations, *Tellus A*, 63, 41–55, <https://doi.org/10.1111/j.1600-0870.2010.00466.x>, 2011.
- Nikulin, G., Jones, C., Giorgi, F., Asrar, G., Büchner, M., Cerezota, R., Christensen, O. B., Déqué, M., Fernandez, J., Hänsler, A., van Meijgaard, E., Samuelsson, P., Sylla, M. B., and Sushama, L.: Precipitation climatology in an ensemble of CORDEX-Africa regional climate simulations, *J. Climate*, 25, 6057–6078, <https://doi.org/10.1175/JCLI-D-11-00375.1>, 2012.
- Nogherotto, R., Tompkins, A. M., Giuliani, G., Coppola, E., and Giorgi, F.: Numerical framework and performance of the new multiple-phase cloud microphysics scheme in RegCM4.5: precipitation, cloud microphysics, and cloud radiative effects, *Geosci. Model Dev.*, 9, 2533–2547, <https://doi.org/10.5194/gmd-9-2533-2016>, 2016.
- Oleson, K. W., Lawrence, D. M., Bonan, G. B., Fisher, R. A., and Lawrence, P. J.: Technical description of version 4.5 of the Community Land Model (CLM), Tech. rep., Technical description of version 4.5 of the Community Land Model (CLM) (2013) NCAR/TN-503+STR, <https://doi.org/10.5065/D6RR1W7M>, 2013.
- Opacka, B., Stavrakou, T., Müller, J. F., Smedt, I. D., van Geffen, J., Marais, E. A., Horner, R. P., Millet, D. B., Wells, K. C., and Guenther, A. B.: Natural emissions of VOC and NO_x over

- Africa constrained by TROPOMI HCHO and NO₂ data using the MAGRITTEv1.1 model, *Atmos. Chem. Phys.*, 25, 2863–2894, <https://doi.org/10.5194/acp-25-2863-2025>, 2025.
- Oppenheimer, C., Tsanev, V. I., Allen, A. G., McGonigle, A. J., Cardoso, A. A., Wiatr, A., Paterlini, W., and de Mello Dias, C.: NO₂ emissions from agricultural burning in Sao Paulo, Brazil, *Environ. Sci. Technol.*, 38, 4557–4561, <https://doi.org/10.1021/es0496219>, 2004.
- Ormeci, B., Sanin, S. L., and Peirce, J. J.: Laboratory study of NO flux from agricultural soil: Effects of soil moisture, pH, and temperature, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 104, 1621–1629, <https://doi.org/10.1029/98JD02834>, 1999.
- Ossouhou, M., Galy-Lacaux, C., Yoboué, V., Hickman, J., Gardrat, E., Adon, M., Darras, S., Laouali, D., Akpo, A., Ouafo, M., Diop, B., and Opepa, C.: Trends and seasonal variability of atmospheric NO₂ and HNO₃ concentrations across three major African biomes inferred from long-term series of ground-based and satellite measurements, *Atmos. Environ.*, 207, 148–166, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.03.027>, 2019.
- Ossouhou, M., Galy-Lacaux, C., Yoboué, V., Adon, M., Delon, C., Gardrat, E., Konaté, I., Ki, A., and Zouzou, R.: Long-term atmospheric inorganic nitrogen deposition in West African savanna over 16 year period (Lamto, Côte d'Ivoire), *Environ. Res. Lett.*, 16, 015004, <https://doi.org/10.1088/1748-9326/abd065>, 2021.
- Ossouhou, M., Hickman, J. E., Clarisse, L., Coheur, P.-F., Van Damme, M., Adon, M., Yoboué, V., Gardrat, E., Alvès, M. D., and Galy-Lacaux, C.: Trends and seasonal variability in ammonia across major biomes in western and central Africa inferred from long-term series of ground-based and satellite measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 23, 9473–9494, <https://doi.org/10.5194/acp-23-9473-2023>, 2023.
- Ouafo-Leumbe, M.-R., Galy-Lacaux, C., Sigha-Nkamdjou, L., Gardrat, E., Dias Alves, M., Lenoir, O., Meka, M., and Amougou, M.: Trace gases, Zoétélé, Cameroon, Aeris [data set], <https://doi.org/10.25326/603>, 2023.
- Pacifico, F., Delon, C., Jambert, C., Durand, P., Morris, E., Evans, M. J., Lohou, F., Derrien, S., Donnou, V. H. E., Houeto, A. V., Reinares Martínez, I., and Brilouet, P.-E.: Measurements of nitric oxide and ammonia soil fluxes from a wet savanna ecosystem site in West Africa during the DACCIWA field campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, 19, 2299–2325, <https://doi.org/10.5194/acp-19-2299-2019>, 2019.
- Padro, J., Den Hartog, G., and Neumann, H.: An investigation of the ADOM dry deposition module using summertime O₃ measurements above a deciduous forest, *Atmos. Environ. A*, 25, 1689–1704, [https://doi.org/10.1016/0960-1686\(91\)90027-5](https://doi.org/10.1016/0960-1686(91)90027-5), 1991.
- Pal, J. S. and Coauthors: The ICTP RegCM3 and RegCM3.2: Regional climate modeling for the developing World, *B. Am. Meteorol. Soc.*, 88, 1395–1409, 2007.
- Peyrillé, P., Lafore, J.-P., and Redelsperger, J.-L.: An idealized two-dimensional framework to study the West African monsoon. Part I: Validation and key controlling factors, *J. Atmos. Sci.*, 64, 2765–2782, <https://doi.org/10.1175/JAS3919.1>, 2007.
- Philippon, N., Cornu, G., Montéil, L., Gond, V., Moron, V., Pergaud, J., Sèze, G., Bigot, S., Camberlin, P., Doumenge, C., Fayolle, A., and Ngomanda, A.: The light-deficient climates of western Central African evergreen forests, *Environ. Res. Lett.*, 14, 034007, <https://doi.org/10.1088/1748-9326/aaf5d8>, 2019.
- Pichelli, E., Coppola, E., Sobolowski, S., Ban, N., Giorgi, F., Stocchi, P., Alias, A., Belušić, D., Berthou, S., Caillaud, C., Cardoso, R. M., Chan, S., Christensen, O. B., Dobler, A., de Vries, H., Goergen, K., Kendon, E. J., Keuler, K., Lenderink, G., Lorenz, T., Mishra, A. N., Panitz, H.-J., Schär, C., Soares, P. M. M., Truhetz, H., and Vergara-Temprado, J.: The first multi-model ensemble of regional climate simulations at kilometer-scale resolution part 2: historical and future simulations of precipitation, *Clim. Dynam.*, 56, 3581–3602, <https://doi.org/10.1007/s00382-021-05657-4>, 2021.
- Pilegaard, K.: Processes regulating nitric oxide emissions from soils, *Philos. T. Roy. Soc. B*, 368, 20130126, <https://doi.org/10.1098/rstb.2013.0126>, 2013.
- Potter, P., Ramankutty, N., Bennett, E. M., and Donner, S. D.: Characterizing the spatial patterns of global fertilizer application and manure production, *Earth Interact.*, 14, 1–22, <https://doi.org/10.1175/2009EI288.1>, 2010.
- Prein, A. F., Langhans, W., Fossler, G., Ferrone, A., Ban, N., Goergen, K., Keller, M., Tölle, M., Gutjahr, O., Feser, F., Brisson, E., Kollet, S., Schmidli, J., Van Lipzig, N. P. M., and Leung, R.: A review on regional convection-permitting climate modeling: Demonstrations, prospects, and challenges, *Rev. Geophys.*, 53, 323–361, <https://doi.org/10.1002/2014RG000475>, 2015.
- QA/SAC – Americas: Quality Assurance/Science Activity Centre – Americas (QA/SAC-Americas), <https://qasac-americas.org> (last access: 26 February 2025), 2025.
- Randerson, J., Van Der Werf, G., Giglio, L., Collatz, G., and Kasibhatla, P.: Global Fire Emissions Database, Version 4.1 (GFEDv4), ORNL DAAC, Oak Ridge, Tennessee, USA, <https://doi.org/10.3334/ORNLDAAAC/1293>, 2018.
- Rao, P., Wang, Y., Wang, F., Liu, Y., Wang, X., and Wang, Z.: Daily soil moisture mapping at 1 km resolution based on SMAP data for desertification areas in northern China, *Earth Syst. Sci. Data*, 14, 3053–3073, <https://doi.org/10.5194/essd-14-3053-2022>, 2022.
- Roelle, P. A., Aneja, V. P., Gay, B., Geron, C., and Pierce, T.: Biogenic nitric oxide emissions from cropland soils, *Atmos. Environ.*, 35, 115–124, [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(00\)00279-X](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(00)00279-X), 2001.
- Sanhueza, E., Hao, W. M., Scharffe, D., Donoso, L., and Crutzen, P. J.: N₂O and NO emissions from soils of the northern part of the Guayana Shield, Venezuela, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 95, 22481–22488, <https://doi.org/10.1029/JD095iD13p22481>, 1990.
- Sauvage, B., Thouret, V., Cammas, J.-P., Gheusi, F., Athier, G., and Nédélec, P.: Tropospheric ozone over Equatorial Africa: regional aspects from the MOZAIC data, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 311–335, <https://doi.org/10.5194/acp-5-311-2005>, 2005.
- Sauvage, B., Martin, R. V., Van Donkelaar, A., and Ziemke, J.: Quantification of the factors controlling tropical tropospheric ozone and the South Atlantic maximum, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 112, <https://doi.org/10.1029/2006JD008008>, 2007.
- Schreiber, F., Wunderlin, P., Udert, K. M., and Wells, G. F.: Nitric oxide and nitrous oxide turnover in natural and engineered microbial communities: biological pathways, chemical reactions, and novel technologies, *Front. Microbiol.*, 3, 372, <https://doi.org/10.3389/fmicb.2012.00372>, 2012.
- Serca, D., Delmas, R., Jambert, C., and Labroue, L.: Emissions of nitrogen oxides from equatorial rain forest in central Africa, Tel-

- lus B, 46, 243–254, <https://doi.org/10.3402/tellusb.v46i4.15795>, 1994.
- Shalaby, A., Zakey, A., Tawfik, A., Solmon, F., Giorgi, F., Stordal, F., Sillman, S., Zaveri, R. A., and Steiner, A.: Implementation and evaluation of online gas-phase chemistry within a regional climate model (RegCM-CHEM4), *Geosci. Model Dev.*, 5, 741–760, <https://doi.org/10.5194/gmd-5-741-2012>, 2012.
- Sillman, S. and He, D.: Some theoretical results concerning O_3 - NO_x -VOC chemistry and NO_x -VOC indicators, *J. Geophys. Res. Atmos.*, 107, ACH-26, <https://doi.org/10.1029/2001JD001123>, 2002.
- Simpson, D. and Darras, S.: Global soil NO emissions for Atmospheric Chemical Transport Modelling: CAMS-GLOB-SOIL v2.2, *Earth Syst. Sci. Data Discuss.* [preprint], <https://doi.org/10.5194/essd-2021-221>, 2021.
- Skopp, J., Jawson, M., and Doran, J.: Steady-state aerobic microbial activity as a function of soil water content, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 54, 1619–1625, <https://doi.org/10.2136/sssaj1990.03615995005400060018x>, 1990.
- Solmon, F., Giorgi, F., and Liousse, C.: Aerosol modelling for regional climate studies: application to anthropogenic particles and evaluation over a European/African domain, *Tellus B*, 58, 51–72, <https://doi.org/10.1111/j.1600-0889.2005.00155.x>, 2006.
- Solmon, F., Elguindi, N., Mallet, M., Flamant, C., and Formenti, P.: West African monsoon precipitation impacted by the South Eastern Atlantic biomass burning aerosol outflow, *npj Clim. Atmos. Sci.*, 4, 54, <https://doi.org/10.1038/s41612-021-00210-w>, 2021.
- Soulie, A., Granier, C., Darras, S., Zilbermann, N., Doumbia, T., Guevara, M., Jalkanen, J.-P., Keita, S., Liousse, C., Crippa, M., Guizzardi, D., Hoesly, R., and Smith, S. J.: Global anthropogenic emissions (CAMS-GLOB-ANT) for the Copernicus Atmosphere Monitoring Service simulations of air quality forecasts and reanalyses, *Earth Syst. Sci. Data*, 16, 2261–2279, <https://doi.org/10.5194/essd-16-2261-2024>, 2024.
- Stehfest, E. and Bouwman, L.: N_2O and NO emission from agricultural fields and soils under natural vegetation: summarizing available measurement data and modeling of global annual emissions, *Nutr. Cycl. Agroecosyst.*, 74, 207–228, <https://doi.org/10.1007/s10705-006-9000-7>, 2006.
- Steinkamp, J. and Lawrence, M. G.: Improvement and evaluation of simulated global biogenic soil NO emissions in an AC-GCM, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 6063–6082, <https://doi.org/10.5194/acp-11-6063-2011>, 2011.
- Steinkamp, J., Ganzeveld, L., Wilcke, W., and Lawrence, M.: Influence of modelled soil biogenic NO emissions on related trace gases and the atmospheric oxidizing efficiency, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 2663–2677, <https://doi.org/10.5194/acp-9-2663-2009>, 2009.
- Stewart, D., Taylor, C., Reeves, C., and McQuaid, J.: Biogenic nitrogen oxide emissions from soils: impact on NO_x and ozone over west Africa during AMMA (African Monsoon Multidisciplinary Analysis): observational study, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 2285–2297, <https://doi.org/10.5194/acp-8-2285-2008>, 2008.
- Stohl, A., Williams, E., Wotawa, G., and Kromp-Kolb, H.: A European inventory of soil nitric oxide emissions and the effect of these emissions on the photochemical formation of ozone, *Atmos. Environ.*, 30, 3741–3755, [https://doi.org/10.1016/1352-2310\(96\)00104-5](https://doi.org/10.1016/1352-2310(96)00104-5), 1996.
- Strada, S., Pozzer, A., Giuliani, G., Coppola, E., Solmon, F., Jiang, X., Guenther, A., Bourtsoukidis, E., Serça, D., Williams, J., and Giorgi, F.: Assessment of isoprene and near-surface ozone sensitivities to water stress over the Euro-Mediterranean region, *Atmos. Chem. Phys.*, 23, 13301–13327, <https://doi.org/10.5194/acp-23-13301-2023>, 2023.
- Sultan, B., Janicot, S., and Diedhiou, A.: The West African monsoon dynamics. Part I: Documentation of intraseasonal variability, *J. Climate*, 16, 3389–3406, [https://doi.org/10.1175/1520-0442\(2003\)016<3389:TWAMDP>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0442(2003)016<3389:TWAMDP>2.0.CO;2), 2003.
- Sun, S., Tai, A. P., Yung, D. H., Wong, A. Y., Ducker, J. A., and Holmes, C. D.: Influence of plant ecophysiology on ozone dry deposition: comparing between multiplicative and photosynthesis-based dry deposition schemes and their responses to rising CO_2 level, *Biogeosciences*, 19, 1753–1776, <https://doi.org/10.5194/bg-19-1753-2022>, 2022.
- Sylla, M., Giorgi, F., and Stordal, F.: Large-scale origins of rainfall and temperature bias in high-resolution simulations over southern Africa, *Clim. Res.*, 52, 193–211, <https://doi.org/10.3354/cr01044>, 2012.
- Sylla, M., Diallo, I., and Pal, J.: West African monsoon in state-of-the-art regional climate models, *INTECH*, <https://doi.org/10.5772/55140>, 2013.
- Tadic, I., Nussbaumer, C. M., Bohn, B., Harder, H., Marno, D., Martinez, M., Obersteiner, F., Parchatka, U., Pozzer, A., Rohloff, R., Zöger, M., Lelieveld, J., and Fischer, H.: Central role of nitric oxide in ozone production in the upper tropical troposphere over the Atlantic Ocean and western Africa, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 8195–8211, <https://doi.org/10.5194/acp-21-8195-2021>, 2021.
- Tadross, M., Gutowski, W., Hewitson, B., Jack, C., and New, M.: MM5 simulations of interannual change and the diurnal cycle of southern African regional climate, *Theor. Appl. Climatol.*, 86, 63–80, <https://doi.org/10.1007/s00704-005-0208-2>, 2006.
- Tiedtke, M.: A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in large-scale models, *Mon. Weather Rev.*, 117, 1779–1800, [https://doi.org/10.1175/1520-0493\(1989\)117<1779:ACMFSF>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0493(1989)117<1779:ACMFSF>2.0.CO;2), 1989.
- Tsivlidou, M., Sauvage, B., Bennouna, Y., Blot, R., Boulanger, D., Clark, H., Le Flochmoën, E., Nédélec, P., Thouret, V., Wolff, P., and Barret, B.: Tropical tropospheric ozone and carbon monoxide distributions: characteristics, origins, and control factors, as seen by IAGOS and IASI, *Atmos. Chem. Phys.*, 23, 14039–14063, <https://doi.org/10.5194/acp-23-14039-2023>, 2023.
- Valari, M. and Menut, L.: Does an increase in air quality models' resolution bring surface ozone concentrations closer to reality?, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 25, 1955–1968, <https://doi.org/10.1175/2008JTECHA1123.1>, 2008.
- Van Der A, R., Eskes, H., Boersma, K., Van Noije, T., Van Roozendael, M., De Smedt, I., Peters, D., and Meijer, E.: Trends, seasonal variability and dominant NO_x source derived from a ten year record of NO_2 measured from space, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 113, <https://doi.org/10.1029/2007JD009021>, 2008.
- van Marle, M. J. E., Kloster, S., Magi, B. I., Marlon, J. R., Daniou, A.-L., Field, R. D., Arneeth, A., Forrest, M., Hantson, S., Kehrwald, N. M., Knorr, W., Lasslop, G., Li, F., Mangeon, S., Yue, C., Kaiser, J. W., and van der Werf, G. R.: Historic global biomass burning emissions for CMIP6 (BB4CMIP) based on merging satellite observations with proxies and fire

- models (1750–2015), *Geosci. Model Dev.*, 10, 3329–3357, <https://doi.org/10.5194/gmd-10-3329-2017>, 2017.
- van Wees, D. and van der Werf, G. R.: Modelling biomass burning emissions and the effect of spatial resolution: a case study for Africa based on the Global Fire Emissions Database (GFED), *Geosci. Model Dev.*, 12, 4681–4703, <https://doi.org/10.5194/gmd-12-4681-2019>, 2019.
- Vinken, G., Boersma, K., Maasackers, J., Adon, M., and Martin, R.: Worldwide biogenic soil NO_x emissions inferred from OMI NO₂ observations, *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 10363–10381, <https://doi.org/10.5194/acp-14-10363-2014>, 2014.
- Vitousek, P. M., Aber, J. D., Howarth, R. W., Likens, G. E., Matson, P. A., Schindler, D. W., Schlesinger, W. H., and Tilman, D. G.: Human alteration of the global nitrogen cycle: sources and consequences, *Ecol. Appl.*, 7, 737–750, [https://doi.org/10.1890/1051-0761\(1997\)007\[0737:HAOTGN\]2.0.CO;2](https://doi.org/10.1890/1051-0761(1997)007[0737:HAOTGN]2.0.CO;2), 1997.
- Wagner, A., Bennouna, Y., Blechschmidt, A.-M., Brasseur, G., Chabrillat, S., Christophe, Y., Errera, Q., Eskes, H., Flemming, J., Hansen, K., Inness, A., Kapsomenakis, J., Lange-rock, B., Richter, A., Sudarchikova, N., Thouret, V., and Zerefos, C.: Comprehensive evaluation of the Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS) reanalysis against independent observations: Reactive gases, *Elem. Sci. Anth.*, 9, 00171, <https://doi.org/10.1525/elementa.2020.00171>, 2021.
- Wang, W., Sheng, L., Jin, H., and Han, Y.: Dust aerosol effects on cirrus and altocumulus clouds in Northwest China, *J. Meteorol. Res.*, 29, 793–805, <https://doi.org/10.1007/s13351-015-4116-9>, 2015.
- Wang, Y., Ma, Y.-F., Muñoz-Esparza, D., Dai, J., Li, C. W. Y., Lichtig, P., Tsang, R. C.-W., Liu, C.-H., Wang, T., and Brasseur, G. P.: Coupled mesoscale–microscale modeling of air quality in a polluted city using WRF-LES-Chem, *Atmos. Chem. Phys.*, 23, 5905–5927, <https://doi.org/10.5194/acp-23-5905-2023>, 2023.
- Williams, E., Guenther, A., and Fehsenfeld, F.: An inventory of nitric oxide emissions from soils in the United States, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 97, 7511–7519, <https://doi.org/10.1029/92JD00412>, 1992.
- Williams, J., Scheele, M., van Velthoven, P., Cammas, J.-P., Thouret, V., Galy-Lacaux, C., and Volz-Thomas, A.: The influence of biogenic emissions from Africa on tropical tropospheric ozone during 2006: a global modeling study, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 5729–5749, <https://doi.org/10.5194/acp-9-5729-2009>, 2009.
- Wu, Z., Wang, X., Chen, F., Turnipseed, A. A., Guenther, A. B., Niyogi, D., Charusombat, U., Xia, B., Munger, J. W., and Alapaty, K.: Evaluating the calculated dry deposition velocities of reactive nitrogen oxides and ozone from two community models over a temperate deciduous forest, *Atmos. Environ.*, 45, 2663–2674, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2011.02.063>, 2011.
- Yan, X., Ohara, T., and Akimoto, H.: Statistical modeling of global soil NO_x emissions, *Global Biogeochem. Cy.*, 19, <https://doi.org/10.1029/2004GB002276>, 2005.
- Yarwood, G. and Tuite, K.: Representing Ozone Formation from Volatile Chemical Products (VCP) in Carbon Bond (CB) Chemical Mechanisms, *Atmosphere*, 15, 178, <https://doi.org/10.3390/atmos15020178>, 2024.
- Yarwood, G., Jung, J., Whitten, G. Z., Heo, G., Mellberg, J., and Estes, M.: Updates to the Carbon Bond Mechanism for Version 6 (CB6), in: 9th Annual CMAS Conference, Chapel Hill, NC, 11–13 October 2010, 1–4, 2010.
- Yienger, J. and Levy, H.: Empirical model of global soil-biogenic NO_x emissions, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 100, 11447–11464, <https://doi.org/10.1029/95JD00370>, 1995.
- Young, P. J., Naik, V., Fiore, A. M., Gaudel, A., Guo, J., Lin, M., Neu, J., Parrish, D., Rieder, H., Schnell, J. L., Tilmes, S., Wild, O., Zhang, L., Ziemke, J., Brandt, J., Delcloo, A., Doherty, R. M., Geels, C., Hegglin, M. I., Hu, L., Im, U., Kumar, R., Luhar, A., Murray, L., Plummer, D., Rodriguez, J., Saiz-Lopez, A., Schultz, M. G., Woodhouse, M. T., and Zeng, G.: Tropospheric Ozone Assessment Report: Assessment of global-scale model performance for global and regional ozone distributions, variability, and trends, *Elem. Sci. Anth.*, 6, 10, <https://doi.org/10.1525/elementa.265>, 2018.
- Zaveri, R. A. and Peters, L. K.: A new lumped structure photochemical mechanism for large-scale applications, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 104, 30387–30415, <https://doi.org/10.1029/1999JD900876>, 1999.
- Zhang, L., Moran, M. D., Makar, P. A., Brook, J. R., and Gong, S.: Modelling gaseous dry deposition in AURAMS: a unified regional air-quality modelling system, *Atmos. Environ.*, 36, 537–560, [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(01\)00447-2](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(01)00447-2), 2002.
- Zhang, L., Brook, J. R., and Vet, R.: A revised parameterization for gaseous dry deposition in air-quality models, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 2067–2082, <https://doi.org/10.5194/acp-3-2067-2003>, 2003.
- Zittis, G., Hadjinicolaou, P., Fnais, M., and Lelieveld, J.: Projected changes in heat wave characteristics in the eastern Mediterranean and the Middle East, *Reg. Environ. Change*, 16, 1863–1876, <https://doi.org/10.1007/s10113-014-0753-2>, 2016.

RESUME

L'Afrique est particulièrement vulnérable aux perturbations du cycle de l'azote, un élément clé pour la fertilité des sols, la qualité de l'air et la santé des écosystèmes. Cette thèse a été réalisée dans le but d'analyser l'impact des émissions biogéniques de NO (BioNO) sur la chimie atmosphérique régionale et la variabilité des dépôts d'azote en Afrique, en utilisant le modèle climatique régional RegCM5. L'étude se concentre sur le rôle des BioNO dans la chimie atmosphérique, la distribution spatio-temporelle des dépôts et l'influence des émissions et des facteurs climatiques sur la variabilité interannuelle et les tendances des dépôts d'azote entre 2011 et 2019. Les résultats de l'étude montrent que l'intégration des émissions de BioNO dans le modèle conduit dans l'ensemble à une amélioration des concentrations en surface de NO₂, HNO₃ et de O₃, les rapprochant des observations. Cette influence varie cependant selon les conditions climatiques régionales, les émissions de BioNO ayant un impact plus marqué dans les savanes sèches. L'analyse des tendances des dépôts d'azote sur la période étudiée révèle que la tendance générale est dominée par les formes réduites (NH_x), avec des augmentations des dépôts dans certaines régions, notamment en raison des émissions de NH₃. En termes de variabilité interannuelle, les dépôts secs d'azote sont principalement contrôlés par les émissions de NH₃, particulièrement en saison sèche. Les facteurs influençant la variabilité des dépôts humides sont principalement les précipitations, en particulier sur la Côte de Guinée et dans le Sahel, tandis que les vents jouent un rôle plus important dans les savanes et les régions forestières.

Mots-clés : Émissions biogéniques, Chimie atmosphérique, Modèle climatique régional, Dépôts d'azote, Afrique.

ABSTRACT

Africa is particularly vulnerable to disruptions in the nitrogen cycle, a key element for soil fertility, air quality, and ecosystem health. This thesis was carried out to analyze the impact of biogenic NO emissions (BioNO) on regional atmospheric chemistry and nitrogen deposition variability in Africa, using the RegCM5 regional climate model. The study focuses on the role of BioNO in atmospheric chemistry, the spatio-temporal distribution of depositions, and the influence of emissions and climatic factors on the interannual variability and trends in nitrogen deposition from 2011 to 2019. The results of the study show that integrating BioNO emissions into the model generally improves surface concentrations of NO₂, HNO₃, and O₃, bringing them closer to observations. However, this influence varies according to regional climatic conditions, with BioNO emissions having a more marked impact in dry savanna regions. The analysis of nitrogen deposition trends over the studied period reveals that the general trend is dominated by reduced forms (NO_y), with increases in deposition in certain regions, mainly due to NH₃ emissions. In terms of interannual variability, dry nitrogen deposits are primarily controlled by NH₃ emissions, particularly during the dry season. Factors influencing the variability of wet deposition are mainly precipitation, especially in the Guinean coast and the Sahel, while winds play a more important role in savanna and forest regions.

Keywords : Biogenic emissions, Atmospheric chemistry, Regional climate model, Nitrogen deposition, Africa.