



**HAL**  
open science

# Analyse des spectres atmosphériques pour la mesure à distance de la composition chimique de l'atmosphère à partir du sol, de ballons et de satellites

Sébastien Payan

► **To cite this version:**

Sébastien Payan. Analyse des spectres atmosphériques pour la mesure à distance de la composition chimique de l'atmosphère à partir du sol, de ballons et de satellites. Physique Atmosphérique et Océanique [physics.ao-ph]. Université Pierre et Marie Curie, 2009. tel-01147918

**HAL Id: tel-01147918**

**<https://insu.hal.science/tel-01147918>**

Submitted on 3 May 2015

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

DOSSIER SCIENTIFIQUE EN VUE DE L'OBTENTION DE  
L'HABILITATION A DIRIGER DES RECHERCHES

---

Analyse des spectres atmosphériques pour la  
mesure à distance de la composition chimique  
de l'atmosphère à partir du sol, de ballons et de  
satellites

**Présenté par : Sébastien Payan**

**7 décembre 2009**

Devant le jury composés de :

|                    |            |
|--------------------|------------|
| Alain Barbe        | Examineur  |
| Claude Camy-Peyret | Examineur  |
| Nelly Lacombe      | Présidente |
| Johannes Orphal    | Rapporteur |
| Thierry Phulpin    | Rapporteur |
| Jean Vander Auwera | Rapporteur |



Ce mémoire d'habilitation reprend une grande partie des travaux de recherche auxquels j'ai participé entre 1996 et 2004 au Laboratoire de Physique Moléculaire et Applications, et depuis 2005 au Laboratoire de Physique Moléculaire pour l'Atmosphère et l'Astrophysique de l'Université Pierre et Marie Curie et du CNRS. Le lien historique entre des disciplines de la physique fondamentale et de la physique appliquée explique la réunion dans ce mémoire de travaux portant sur la physique moléculaire, la géophysique externe, et l'astrophysique. Cet éclectisme illustre combien la pratique actuelle de la recherche évolue, se vit et s'enrichit au fil des rencontres, des lectures, des événements extérieurs, des envies, des opportunités, ou des possibilités.

En tant qu'ancien bon élève, aujourd'hui desassagi, je ne puis déroger à l'ordre des choses, à savoir qu'un mémoire se doit de débiter par des remerciements. Mais cette obligation devient bonheur lorsqu'il s'agit de témoigner de ce que je suis, à savoir de ce que les autres m'ont permis d'être. Je dois en effet avouer que mon parcours scientifique (d'aucuns diraient carrière) s'est construit au fil de rencontres, certaines heureuses, d'autres moins, exaltantes ou frustrantes, trop courtes ou trop longues, mais ayant comme point commun de m'avoir fait avancer, et je dirais même mûrir.

Je tiens à remercier très chaleureusement Messieurs Thierry Phulpin, Yohannes Orphal et Jean Vander Auwera pour m'avoir fait l'honneur d'être les rapporteurs de cette habilitation et donc d'avoir consacré du temps et de l'énergie à une lecture critique du manuscrit que j'avais voulu court et que finalement j'ai commis long.

J'adresse également mes remerciements, pour leur disponibilité et l'intérêt qu'ils ont manifesté pour ce travail en acceptant d'en être les examinateurs, à Madame Nelly Lacôme et à Monsieur Alain Barbe.

Je remercie très sincèrement Claude Camy-Peyret, longtemps directeur du Laboratoire de Physique Moléculaire pour l'atmosphère et l'Astrophysique, et depuis le début mon référent en recherche, pour son accueil chaleureux et son soutien constant, son enthousiasme communicatif et sa bonne humeur inaltérables, ainsi que pour ses nombreux conseils et ses remarquables qualités scientifiques.

Je voudrais exprimer toute ma gratitude au Centre National d'Etude Spatial pour son soutien depuis de nombreuses années. Les aides financières, les bourses de thèse cofinancées, les personnels d'un grand professionnalisme de la division ballon, ou encore les stages postdoctoraux ont été essentiels pour mener à bien les différents travaux qui sont présentés dans ce mémoire d'habilitation.

La recherche, comme beaucoup d'activités, est une affaire de rencontres ou d'échanges. Je remercie encore toutes les personnes avec lesquelles j'ai collaboré, avancé ou plus simplement discuté au cours de ces années, personnes de grandes qualités scientifiques et humaines, deux adjectifs qui, définitivement, ne devraient jamais aller l'un sans l'autre

Enfin, et ce n'est pas la moindre, une grande partie de ce qui est présenté dans ce mémoire n'aurait tout simplement pas vu le jour sans le travail, l'aide et les interactions avec Pascal Jeseck, Isabelle, Pépin et Yao Té qui ont consacré un temps et une énergie considérable pour concevoir, développer et exploiter les expériences de l'équipe. J'ai eu beaucoup de plaisir à accompagner les étudiants en thèse de l'équipe qui par leurs questions, leurs exigences, et leurs personnalités variées m'ont beaucoup apporté tant du point de vue humain que scientifique.

Des excuses, enfin, pour clôturer ces pages de remerciements. A mes proches, pour les moments occupés par les questions de science plutôt que d'autres activités, problèmes laissés

en suspens au labo et apportés dans le sac à dos en week-end, pour les mots compliqués qu'il m'arrive d'utiliser, et pour l'absence de patience que je réserve à mes étudiants.

Paris, le 12 octobre 2009

|          |   |           |
|----------|---|-----------|
| <b>1</b> | <b><u>INTRODUCTION</u></b>  | <b>9</b>  |
| 1.1      | CONTEXTE SCIENTIFIQUE   | 9         |
| 1.2      | ÉQUIPE DE RECHERCHE   | 10        |
| 1.3      | SYNTHESE DE MES ACTIVITES DE RECHERCHE  | 12        |
| <b>2</b> | <b><u>NOTICE</u></b>  | <b>17</b> |
| 2.1      | CURRICULUM VITÆ   | 17        |
| 2.1.1    | FORMATION   | 17        |
| 2.1.2    | EXPERIENCES PROFESSIONNELLES  | 17        |
| 2.1.3    | EXPERIENCES PEDAGOGIQUES  | 18        |
| 2.2      | PUBLICATIONS ET COMMUNICATIONS SCIENTIFIQUES                                    | 18        |
| 2.2.1    | THESE DE DOCTORAT   | 18        |
| 2.2.2    | PUBLICATIONS DANS DES REVUES A COMITE DE LECTURE                                | 18        |
| 2.2.3    | PUBLICATIONS DANS DES REVUES ASSOCIEES A DES COLLOQUES                          | 21        |
| 2.2.4    | COMMUNICATIONS ORALES DANS DES COLLOQUES, DES ECOLES OU SEMINAIRES DE RECHERCHE | 23        |
| 2.2.5    | COMMUNICATIONS PRESENTES PAR D'AUTRES SCIENTIFIQUES                             | 24        |
| 2.2.6    | AFFICHES  | 26        |
| 2.2.7    | PUBLICATIONS INTERNES AU CNES ET AU CEA/DAM                                     | 27        |
| 2.3      | ENCADREMENT, EXPERTISE ET ANIMATION DE LA RECHERCHE                             | 27        |
| 2.3.1    | EXPERTISE ET ANIMATION DE LA RECHERCHE  | 27        |
| 2.3.2    | ENCADREMENT DE STAGE DE 3 <sup>E</sup> CYCLE ET DE MASTER                       | 27        |
| 2.3.3    | ENCADREMENT DOCTORAL  | 28        |
| 2.3.4    | ENCADREMENT POSTDOCTORAL  | 28        |
| 2.4      | RESPONSABILITES COLLECTIVES   | 28        |
| <b>3</b> | <b><u>LES EXPERIENCES EMBARQUEES SOUS BALLON</u></b>                            | <b>31</b> |
| 3.1      | CONTEXTE  | 31        |
| 3.2      | L'EXPERIENCE LPMA   | 32        |
| 3.2.1    | L'EXPERIENCE  | 32        |
| 3.2.2    | LES VOLS REALISES   | 36        |
| 3.2.3    | RESULTATS SIGNIFICATIFS   | 37        |
| 3.3      | EXPERIENCE EMBARQUEE IASI-BALLON  | 38        |
| 3.3.1    | L'EXPERIENCE  | 39        |
| 3.3.2    | LES DIFFERENTS VOLS   | 41        |
| 3.3.3    | EXEMPLES DE RESULTATS   | 44        |
| 3.4      | LES AUTRES EXPERIENCES BALLON   | 46        |
| <b>4</b> | <b><u>DEVELOPPEMENT ET VALIDATION D'EXPERIENCES SPATIALES</u></b>               | <b>47</b> |
| 4.1      | CONTEXTE  | 47        |
| 4.2      | VALIDATIONS SATELLITAIRES   | 48        |
| 4.2.1    | LES PRINCIPAUX PROJETS  | 48        |
| 4.2.2    | EXEMPLES DE VALIDATION : ODIN/SMR ET ENVISAT/MIPAS                              | 49        |
| 4.2.3    | VALIDATION COORDONNEE   | 53        |
| 4.2.4    | VALIDATION DE IASI  | 56        |

|            |  |            |
|------------|--|------------|
| <b>4.3</b> | <b>PREPARATION OU DEVELOPPEMENT D'EXPERIENCES SPATIALES.....</b>   | <b>57</b>  |
| 4.3.1      | SONDAGE STRATOSPHERIQUE DEPUIS L'ESPACE .....  | 57         |
| 4.3.2      | SONDAGE TROPOSPHERIQUE DEPUIS L'ESPACE .....   | 60         |
| <b>4.4</b> | <b>AUTRES PROJETS SPATIAUX .....</b>   | <b>67</b>  |
| <b>5</b>   | <b><u>LA PLATEFORME EXPERIMENTALE QUALAIR .....</u></b>  | <b>69</b>  |
| 5.1        | CONTEXTE .....   | 69         |
| 5.2        | OBJECTIFS DE LA PLATEFORME QUALAIR .....   | 70         |
| 5.3        | INSTRUMENTATIONS.....  | 71         |
| 5.4        | LES PREMIERS RESULTATS.....  | 72         |
| 5.5        | EVOLUTIONS ET PROJETS.....   | 76         |
| <b>6</b>   | <b><u>TRANSFERT RADIATIF, SPECTROSCOPIE, TRAITEMENT DES DONNEES .....</u></b>                                  | <b>79</b>  |
| 6.1        | CONTEXTE .....   | 79         |
| 6.2        | MODELE DIRECT ET INVERSE LARA .....  | 82         |
| 6.2.1      | APPROCHE MULTI-FIT.....  | 85         |
| 6.2.2      | CORRECTION DE VISEE. ....  | 89         |
| 6.2.3      | LOOK-UP TABLES ET SPECTROSCOPIE .....  | 89         |
| 6.2.4      | CARACTERISTIQUES INSTRUMENTALES .....  | 91         |
| 6.3        | COMPARAISON « UV ET IR » AVEC LES MESURES DOAS ET LPMA.....  | 92         |
| 6.4        | BANDE A DE L'OXYGENE MOLECULAIRE .....   | 92         |
| 6.5        | INTERFERENCES ENTRE RAIES .....  | 95         |
| 6.5.1      | ETUDE DE PROFILS DE RAIES PAR SPECTROSCOPIE DIODE LASER DANS LA BANDE $v_2 + v_4$ DU $^{12}\text{CH}_4$ .....  | 97         |
| 6.5.2      | ETUDE DU MULTIPLLET P(9) DU $^{12}\text{CH}_4$ DANS LA BANDE $v_3$ ET APPLICATION AUX MESURES ATMOSPHERIQUES . | 98         |
| 6.6        | EXERCICE D'INTERCOMPARAISON.....   | 100        |
| 6.7        | AUTRES ETUDES.....   | 101        |
| <b>7</b>   | <b><u>PHYSICO-CHIMIE ATMOSPHERIQUE .....</u></b>   | <b>105</b> |
| 7.1        | CONTEXTE .....   | 105        |
| 7.2        | CHIMIE DES CHLORES .....   | 110        |
| 7.3        | METHODOLOGIE DES COMPARAISONS MESURES/MODELES .....  | 111        |
| 7.4        | CHIMIE DES OXYDES D'AZOTE.....   | 113        |
| 7.5        | PHOTOCHIMIE SOLAIRE.....   | 117        |
| <b>8</b>   | <b><u>TRAVAIL EN COURS ET PERSPECTIVES .....</u></b>   | <b>119</b> |
| 8.1        | CONTEXTE .....   | 119        |
| 8.2        | ACTIVITE SCIENTIFIQUE BALLON.....  | 120        |
| 8.3        | MISSIONS SPATIALES .....   | 123        |
| 8.4        | QUALITE DE L'AIR : PLATE-FORME EXPERIMENTALE DE JUSSIEU .....  | 127        |
| 8.5        | TRANSFERT RADIATIF POUR LE SONDEGE ATMOSPHERIQUE.....  | 129        |
| 8.6        | CHIMIE .....   | 134        |
| <b>9</b>   | <b><u>REFERENCES .....</u></b>   | <b>139</b> |







# 1 Introduction

Deux parties débutent ce mémoire. La première présente le contexte scientifique puis la synthèse de mes activités de recherche. Dans la deuxième, je recense dans une notice mes travaux scientifiques et les publications et communications associées. Je présente également mes activités d'encadrement, d'expertise et d'animation de la recherche, ainsi que les responsabilités collectives que j'ai assurées.

Le manuscrit se décline ensuite en cinq chapitres décrivant plus en détail les travaux que j'ai effectués. Puis je présente dans le chapitre 8 les problématiques scientifiques sur lesquelles je propose de poursuivre l'effort à moyen et à long terme. J'aurais pu omettre dans le manuscrit ces six derniers chapitres dont une synthèse est donnée dans le chapitre 1. Toutefois, il m'a semblé que ce texte pourrait être utile à de futurs stagiaires, thésitifs ou postdocs, afin d'avoir plus d'informations sur les activités de l'équipe que Claude Camy-Peyret m'a proposé de coanimer avec lui au cours des dernières années.

Les cinq thèmes que j'ai développés au sein de l'équipe Atmosphère du Laboratoire de Physique Moléculaire pour l'Atmosphère et pour l'Astrophysique (LPMAA) et que je présente dans ce document sont les suivants :

- développement et validation d'expériences spatiales : validation satellitaire, sondage stratosphérique et sondage troposphérique depuis l'espace ;
- la plateforme expérimentale QualAir : les débuts du projet et les premiers résultats ;
- transfert radiatif, spectroscopie, traitement des mesures : modèle direct et inverse, comparaison « UV et IR » avec les mesures DOAS (*Differential Optical Absorption Spectroscopy*) et LPMA (*Limb Profile Monitor of the Atmosphere*), bande A de l'oxygène moléculaire, interférences entre raies, exercice d'intercomparaison, étude de nouvelles voies pour l'inversion de la température ;
- physico-chimie atmosphérique : chimie des chlores, méthodologie des comparaisons mesures/modèles, chimie des oxydes d'azote, photochimie solaire.

## 1.1 Contexte scientifique

La mesure et la modélisation de la composition chimique de notre atmosphère a connu un essor remarquable dans la seconde moitié du XX<sup>e</sup> siècle en raison des problèmes environnementaux liés à l'activité humaine : smog photochimique dans les années 1960 lié à la pollution urbaine, précipitations acides associées aux émissions industrielles de soufre, trou dans la couche d'ozone en région polaire lié aux émissions de composés chlorés et bromés, problèmes de qualité de l'air dans les grandes villes et transport transcontinental de panaches de pollution qui imposent de considérer à l'échelle de la planète les impacts potentiels des augmentations des émissions de polluants, et bien évidemment le réchauffement climatique, au cœur d'un problème de société à l'échelle mondiale.

Pour le grand public, les deux premières manifestations des effets de la pollution sur notre biosphère apparaissaient comme limitées spatialement à l'échelle régionale et se produisant de manière sporadique. Avec la découverte du trou d'ozone au début des années 1980, il est apparu une dimension globale des effets des rejets anthropogéniques qui sont devenus capables de déstabiliser l'équilibre chimique de notre atmosphère loin des sources d'émission et pouvant avoir des répercussions de santé publique à l'échelle mondiale. La communauté scientifique internationale s'est alors mobilisée, ce qui a permis la mise en place du protocole de Montréal en 1987 visant à stopper la production et l'utilisation des chlorofluorocarbones. Concernant le réchauffement climatique, l'élaboration du protocole de

Kyoto (1997) visant à réduire les émissions de gaz à effet de serre montre que la prise de conscience est en cours à l'échelle mondiale. Plus récemment, le prix Nobel de la paix 2007 décerné au GIEC et à Al Gore traduit bien les inquiétudes et les risques pour les populations du réchauffement climatique en cours.

L'ensemble de mes travaux de recherche s'inscrit dans le cadre du suivi de la composition chimique de l'atmosphère avec pour objectif l'amélioration de la mesure de la concentration de gaz à l'état de trace et la contribution à une meilleure compréhension des processus physiques et chimiques de notre atmosphère. Les mesures puis leur bonne exploitation sont nécessaires pour caractériser l'état de l'atmosphère et évaluer au mieux son évolution pour prévoir, par exemple, son impact sur le climat futur de notre planète en amont de prises de décision politique concernant la régulation de l'activité anthropique (industrielle, agricole, sociétale...).

La mesure de la composition de l'atmosphère est donc une clé essentielle dans la recherche actuelle en physique de l'atmosphère. Les mesures à distance sont les seules qui permettent aujourd'hui de produire, via les expériences spatiales, des mesures globales et répétées dans le temps.

Cependant, la qualité de la mesure à distance de la composition de l'atmosphère est étroitement liée à celle des paramètres spectroscopiques utilisés pour simuler les spectres. Il est donc essentiel de bien connaître les propriétés des molécules étudiées. De plus, la mesure atmosphérique s'inspire très largement des techniques développées au laboratoire par les spécialistes de la physique moléculaire. En menant mes travaux de recherche au sein du LPMAA, j'ai pu bénéficier d'une expertise de premier ordre, aussi bien théorique qu'expérimentale, qui m'a permis d'améliorer les modèles de transfert radiatif ou de contribuer au développement d'instruments innovants pour le sondage de l'atmosphère depuis l'espace.

Enfin, bien que les mesures à distance depuis l'espace soient les seules qui permettent aujourd'hui de produire des mesures globales et répétées dans le temps, elles nécessitent avant leur mise en œuvre opérationnelle des démonstrateurs qui permettent de tester leur faisabilité et leur efficacité. Une fois mis en orbite, les instruments correspondants doivent être validés par des mesures de référence au sol ou à partir de plateformes non spatiales. Les instruments embarqués sous ballon permettent d'atteindre ces objectifs de préparation, de développement et de validation d'expériences embarquées sur satellite.

## 1.2 Équipe de recherche

Je coanime l'équipe Atmosphère du LPMAA avec Claude Camy-Peyret depuis plusieurs années. Mes travaux sont dans leur grande majorité le résultat d'un travail d'équipe, au sein du LPMAA. Bien que je ne participe pas directement aux travaux expérimentaux (ces derniers sont réalisés par Yao Té, Pascal Jeseck et Isabelle Pépin avec l'aide technique du personnel ITA et IATOS du laboratoire), je présente dans ce document nos expériences embarquées ou au sol afin de mieux éclairer la logique et la cohérence de notre programme de recherche. L'équipe est aujourd'hui composée de cinq permanents, trois chercheurs (un directeur de recherche et deux maîtres de conférences), un ingénieur de recherche et une ingénieure d'études. Un postdoc et un thésitif viennent compléter notre effectif. Il s'agit donc d'une « petite » équipe mais ses activités restent très concurrentielles au niveau local, européen et mondial.

L'équipe Atmosphère a poursuivi depuis une dizaine d'années des activités dans le domaine du sondage atmosphérique, tant du point de vue de la mesure géophysique, de la validation ou du développement de nouvelles expériences, que du point de vue de l'analyse

des observations en terme de traitement des spectres et d'analyse physico-chimique, contribuant ainsi de manière significative à l'effort national et européen ou mondial en matière d'environnement. Plus spécifiquement, notre activité scientifique s'articule autour de plusieurs axes à l'interface entre la physique moléculaire et la physique de l'atmosphère :

- développements d'expériences embarquées pour le sondage atmosphérique ;
- étude et développement de modèles pour le transfert radiatif atmosphérique ;
- détermination de la composition atmosphérique par inversion des mesures à distance ;
- analyse des mesures par des modélisations physico-chimiques.

L'équipe s'intéresse principalement à la mesure de la distribution des espèces moléculaires atmosphériques par des techniques spectroscopiques (principalement aux méthodes passives dans l'infrarouge) à partir du sol, à partir de ballons stratosphériques ou depuis l'espace (satellites d'observation de la Terre). La détermination des concentrations des espèces à l'état de trace dans l'atmosphère passe par « l'inversion » des spectres enregistrés, c'est-à-dire la résolution du problème inverse qui consiste à trouver la distribution verticale d'une ou plusieurs espèces atmosphériques qui reproduisent au mieux les observations spectroscopiques pour une série de visées (méthode de mesure à distance) ou pour une série d'enregistrements (méthode de mesure *in situ*).

Une première analyse des profils de concentration se fait ensuite par les chercheurs de l'équipe sous forme de corrélations entre espèces, de bilan (des espèces chlorées et azotées en particulier) et de modélisation à l'aide d'un modèle photochimique simplifié (ou modèle de boîte) pour les espèces à variation photochimique rapide comme NO<sub>2</sub>. Les analyses photochimiques plus globales se font en coopération avec des chercheurs qui disposent et/ou développent des modèles de trajectoires ou des modèles tridimensionnels (3D) de chimie transport (LATMOS, LPC2E...). Une interaction forte entre observations et modèles permet de faire progresser la capacité des modèles globaux à reproduire l'état actuel de l'atmosphère et donc à prédire son évolution future sous l'action des différentes perturbations (forçages) anthropiques ou naturelles.

Les techniques spectroscopiques de mesure à distance font intervenir des méthodes de calcul du transfert radiatif atmosphérique à l'amélioration desquelles l'équipe Atmosphère, à l'interface entre les études spectroscopiques au laboratoire et les problèmes de physico-chimie atmosphérique, a pu contribuer aussi bien par l'élaboration de nouvelles modélisations que par la validation expérimentale (avec l'instrumentation ballon développée au LPMAA) dans des conditions atmosphériques bien documentées. Le lien avec les expériences spatiales est alors particulièrement étroit.

Les spectres ballon du LPMAA sont donc utilisés pour des objectifs scientifiques assez variés : test des modèles de transfert radiatif, physico-chimie atmosphérique, validation satellitaire. Ils sont aussi utilisables pour étudier des processus atmosphériques qui sont encore mal élucidés. C'est le cas du problème des enrichissements isotopiques de l'ozone stratosphérique pour lequel un modèle a été proposé récemment. Les études de laboratoire des intensités absolues des raies des variétés isotopiques <sup>16</sup>O<sup>18</sup>O<sup>16</sup>O et <sup>16</sup>O<sup>16</sup>O<sup>18</sup>O (dans l'équipe « TF-diode ») et les mesures ballon des spectres atmosphériques dans la région de 10 μm sont un exemple des synergies au sein du LPMAA qui permettent d'aborder des problèmes très interdisciplinaires.

De même, les collaborations avec d'autres laboratoires nous permettent de mieux se positionner au niveau international et de bénéficier d'une expertise dans des domaines connexes (modèles de chimie et de transport, par exemple) ou complémentaires (mesures UV de l'instrument DOAS, université de Heidelberg).

Notons enfin que l'équipe Atmosphère a été très active dans le cadre de la formation par et pour la recherche en accueillant et en formant sept thésitifs en douze ans et plusieurs stagiaires de licence ou de master.

### 1.3 Synthèse de mes activités de recherche

Mes travaux de recherche ont débuté au Centre d'études scientifiques et techniques d'Aquitaine du CEA (CEA/CESTA) où j'ai effectué un stage de DEA puis mon doctorat sous la co-direction de Jean-Marie Flaud et Claude Camy-Peyret. Ils ont su me transmettre avec rigueur leurs connaissances en physico-chimie atmosphérique, en physique moléculaire et en transfert radiatif et ils m'ont permis d'appréhender les interactions entre les processus physiques et chimiques complexes se déroulant dans l'atmosphère. J'ai tout d'abord travaillé sur des activités de recherche classifiées, puis fait le choix d'écrire en parallèle sur un autre sujet, civil, afin d'éviter de soutenir ma thèse en huis clos. Claude Camy-Peyret m'a alors proposé d'analyser les mesures sous ballon de l'expérience LPMA. J'ai ainsi débuté dans le domaine de la télédétection pour la géophysique externe et les sciences de l'atmosphère. Il s'agissait de développer un modèle de transfert radiatif couplé à un modèle instrumental et un modèle inverse permettant de remonter à partir des mesures FTIR LPMA au profil vertical de concentration d'espèces ayant un intérêt pour la chimie de l'ozone dans la stratosphère. Avec un choix judicieux d'une stratégie d'ajustement et d'une méthode de minimisation adaptée, j'ai pu réaliser la première inversion simultanée de HCl et ClONO<sub>2</sub> (les deux principaux réservoirs de chlore) dans la stratosphère à partir des spectres enregistrés par l'équipe lors d'une campagne à Kiruna.

Fort des compétences acquises lors de mes travaux de thèse, j'ai poursuivi mon travail de recherche lors de deux stages postdoctoraux : l'un sur contrat européen et l'autre avec une bourse du CNES. J'ai ainsi participé durant trois ans aux activités de l'équipe Atmosphère dirigée par Claude Camy-Peyret dans laquelle je me suis inséré comme maître de conférences en septembre 1999. Je me suis intégré aux thèmes abordés par l'équipe et j'ai développé des thématiques spécifiques en chimie atmosphérique par le biais de collaborations avec Franck Lefèvre, du service d'aéronomie, et Michel Pirre, du LPCE. J'ai également participé aux débuts de nos travaux sur le sondage de la troposphère avec l'expérience IASI-ballon, alors en cours de développement.

Assez rapidement, j'ai assuré la coresponsabilité de l'équipe, Claude Camy-Peyret étant directeur du laboratoire et de ce fait moins disponible. J'ai également eu la grande satisfaction de coencadrer sept thèses. Beaucoup des travaux présentés dans ce document sont le résultat d'un travail commun avec ces thésitifs. Cette mission d'encadrement et de formation à laquelle je tiens particulièrement permet de plus des échanges humains enrichissants.

Dans le contexte du milieu des années 1990, l'ensemble de la communauté scientifique étudiant la stratosphère était concentré sur les mécanismes physico-chimiques en lien direct avec la diminution de l'ozone en région polaire. En particulier en région polaire arctique, les modèles de chimie transport n'étaient pas aptes pour chacun des hivers (des hémisphères Nord ou Sud) à reproduire en valeur absolue la perte d'ozone. Les nuages stratosphériques polaires (PSC) jouant un rôle clé dans la diminution de l'ozone stratosphérique, en offrant les conditions nécessaires au développement de réactions chimiques hétérogènes à leur surface, soulevaient de nombreuses interrogations. Je me suis alors intéressé aux mécanismes en phase homogène régulant le contenu en oxydes d'azote de la stratosphère. Les oxydes d'azote participent de manière importante au budget de l'ozone. Les NO<sub>x</sub> (NO + NO<sub>2</sub>) contrôlent le budget de l'ozone stratosphérique par deux voies. Ils entrent dans la chaîne de destruction de l'ozone d'une part et d'autre part ont un rôle modérateur auprès des espèces chlorées et du radical OH. Avec Gaëlle Dufour et Franck Lefèvre, nous avons mis en œuvre le modèle 1D

Reprobus pour expertiser les mesures d'oxydes d'azote obtenues par l'expérience LPMA dans la stratosphère polaire en été, celle-ci ayant été très peu étudiée durant cette saison. Nous avons émis et testé des hypothèses sur d'éventuels processus chimiques manquants dans le schéma réactionnel pris en compte, ou sur l'existence d'un biais dans les mesures à distance de ces espèces. Nos mesures ainsi que celles d'autres instruments (SPIRALE, MIPAS par exemple) avaient mis en évidence des quantités de NO<sub>2</sub> dans la basse stratosphère plus importantes que dans les modèles. Nous avons montré l'importance de l'initialisation du modèle et le besoin de prendre en compte la chimie hétérogène même dans le cas d'une situation d'aérosols de fond.

Les années 2000 ont vu émerger des incitations fortes pour l'étude de la basse atmosphère, soit pour ce qui concerne le réchauffement climatique, soit pour la qualité de l'air. J'ai donc accompagné une modification des thématiques de l'équipe en ce sens, tout en maintenant l'activité « stratosphérique » dont le lien avec les effets climatiques n'était pas très clair et pour laquelle la situation dans les tropiques nécessite encore aujourd'hui de nouvelles études. Il s'agit de mieux comprendre les interactions entre troposphère et stratosphère, les échanges de matière via les épisodes de forte convection, l'impact des phénomènes électromagnétiques entre la stratosphère et l'ionosphère sur la production d'oxyde d'azote, etc. La communauté ballon française et européenne a exprimé dans ce contexte le besoin de pouvoir échantillonner (pour la première fois) la région tropicale. Le CNES a alors proposé et coordonné deux campagnes de mesures depuis le Brésil. Ces campagnes ont notamment permis de mettre en évidence un écart significatif entre les mesures crépusculaires du dioxyde d'azote au-dessous de 20 kilomètres d'altitude et les résultats prescrits par les modèles photochimiques. Il est apparu que cet écart provenait de la non-prise en compte des variations du rapport de mélange de dioxyde d'azote le long de la ligne de visée en fonction de l'angle solaire zénithal.

Pour ce qui concerne la chimie troposphérique et la qualité de l'air, ma participation a été articulée autour de plusieurs projets allant de la mise en œuvre des algorithmes d'inversion pour notre expérience IASI-ballon à la préparation ou à la validation d'expériences spatiales, ou au développement d'une plateforme multi-instrumenté dans une grande métropole. La caractérisation et la mesure précise des concentrations des polluants de l'air urbain sont devenues une priorité non seulement pour la recherche dans le domaine de l'environnement atmosphérique, mais également pour les autorités de santé publique. Le projet QualAir que nous avons développé à l'UPMC avec l'IPSL s'insère dans les actions nationales et internationales qui visent à comprendre, contrôler et prévoir les phénomènes de pollution en milieu urbain et périurbain et plus généralement la chimie troposphérique d'une grande métropole urbaine comme Paris. La station QualAir est une plateforme expérimentale de recherche et d'observation mise en place par le LPMAA et le LATMOS, avec le soutien de l'université Pierre et Marie Curie (UPMC) et de l'Institut Pierre Simon Laplace (IPSL). Une des grandes questions actuelles est de bien comprendre les processus de pollution locale (sources d'émission, précurseurs) et à longue distance (transport, sources secondaires).

J'ai ainsi développé au sein au LPMAA une activité de recherche dans le domaine de la physico-chimie de l'atmosphère avec une participation forte dans les programmes d'observation de la Terre. Nos deux expériences ballon *Limb Profile Monitor of the Atmosphere* et IASI ballon sont bien intégrées aux projets spatiaux nationaux (SIFTI en étude de phase 0 avec le CNES, Minicarb), européens (Envisat avec l'ESA, IASI avec EUMETSAT/CNES, TRAQ qui a été en étude de phase 0 avec l'ESA) et internationaux (ACE avec le Canada, AIRS, SAGE-3 avec les États-Unis). Le LPMAA apporte ses données ballon pour la validation des instruments satellitaires et participe à la mise au point des

algorithmes d'inversion des données spatiales. Il constitue une force de proposition par sa capacité à répondre aux appels d'offres.

J'ai eu une participation active dans les travaux de validation d'instruments embarqués sur satellite. Lors du lancement de nouveaux instruments spatiaux, il est nécessaire avant toute exploitation scientifique des données d'effectuer une expertise des mesures de ces instruments. Dans le cadre des campagnes de validation financées par l'ESA (Agence spatiale européenne) des instruments du satellite Envisat, les instruments sous ballon stratosphérique de la communauté scientifique européenne ont effectué des mesures à moyenne latitude, en région polaire et en région tropicale. Ces campagnes ont pour objectif la comparaison des mesures obtenues par les instruments spatiaux et les instruments sous ballon. La stratégie de ces campagnes est le lancement des instruments sous ballon en coïncidence avec l'échantillonnage d'une région donnée par des instruments satellitaires. Pour les travaux de validation et d'expertise des espèces à longue durée de vie, il s'agit en premier lieu de vérifier la cohérence des mesures en terme de conditions dynamiques. J'ai participé récemment à la validation des mesures satellite de  $N_2O$  et  $O_3$  de l'instrument SMR-Odin, de  $CH_4$ ,  $N_2O$ ,  $O_3$ ,  $NO_2$  et  $HNO_3$ , mesurées par l'instrument MIPAS-Envisat, et enfin des mesures du satellite ACE (instrument FTS et Maestro) pour  $N_2O$ ,  $HNO_3$  et  $O_3$ . Pour la validation des espèces à courte durée de vie ou ayant une variation diurne rapide, il est nécessaire de pouvoir reproduire leurs variations et donc de faire appel à un modèle physico-chimique. Ainsi, pour le dioxyde d'azote, espèce à courte durée de vie, la comparaison directe des mesures issues de plusieurs instruments est délicate. En fonction de la technique de mesure utilisée (occultation lunaire, stellaire, solaire, émission infrarouge, absorption infrarouge ou UV-visible), les mesures sont effectuées à des heures locales très différentes et il est nécessaire d'avoir recours à des simulations numériques pour prendre en compte ces variations diurnes. Pour effectuer ce type d'étude, j'ai utilisé le modèle de boîte du LPCE afin de reconstruire le cycle diurne du dioxyde d'azote.

L'interprétation des quantités géophysiques mesurées par sondage à distance passe par un travail scientifique important de traitement de la mesure spectrale. Il est nécessaire de pouvoir modéliser aussi précisément que possible le transfert radiatif dans l'atmosphère et de tenir compte des caractéristiques de l'instrument qui va mesurer le signal radiométrique contenant l'information géophysique recherchée. C'est dans ce contexte que j'ai développé un code de transfert radiatif couplé à un modèle instrumental et une méthode de minimisation permettant de déterminer, avec les erreurs associées, les paramètres recherchés (colonnes ou profils verticaux, par exemple) par ajustement des mesures spectrales. Il s'agit d'un code « recherche », différent des codes « opérationnels », plus rapides, mais moins précis. Ce code « recherche » permet par exemple de tester de nouveaux paramètres spectroscopiques améliorant la modélisation du spectre atmosphérique. C'est ce que j'ai fait en testant plusieurs modèles ou paramètres de mélange entre raies (*line mixing*) du dioxyde de carbone ou du méthane et plus généralement en cherchant à améliorer la modélisation des profils des raies spectrales. L'amélioration de la mesure passe également par des progrès dans les méthodes d'inversion. J'ai participé à la mise en place d'une méthode d'ajustement simultanée de plusieurs fenêtres spectrales (multi-fit) visant à décorréler certains paramètres et ainsi améliorer leur détermination. Également en amont de ces études, j'ai proposé une méthode de correction du calcul du trajet atmosphérique fondée sur l'inversion de la colonne du dioxyde de carbone. Soucieux de la qualité des données produites, j'ai participé à plusieurs exercices d'intercomparaison d'algorithmes de transfert radiatif et inverse. J'ai également contribué à la comparaison des mesures infrarouges et UV de l'ozone et de dioxyde d'azote par utilisation combinée des mesures DOAS et LPMA. De plus, j'ai déterminé à partir de nos mesures ballon un spectre solaire afin d'améliorer le transfert radiatif dans la bande A de l'oxygène

moléculaire, utilisée depuis l'espace pour le sondage de la température, la pression de surface des nuages ou des aérosols. Enfin, soucieux d'explorer de nouvelles voies de sondage, j'ai participé à des projets d'étude ayant pour objectif de proposer des alternatives ou des améliorations aux méthodes ou instruments existants.

Bien évidemment, beaucoup des travaux auxquels j'ai participé ont été réalisés en collaboration avec d'autres scientifiques ou organismes (dans le cadre de plusieurs projets financés par l'Union européenne, les agences spatiales, le CNES, l'INSU, l'UPMC, ou encore par l'ANR). Je ne citerai ici que les collaborations avec nos collègues de l'université de Heidelberg (K. Pfeilsticker) dont le spectromètre UV-visible DOAS a souvent été embarqué sur la nacelle du LPMAA, et qui permet d'accéder aux informations sur une espèce bromée (BrO) qu'on ne peut pas mesurer dans l'infrarouge.

Dans ce mémoire, je présente une notice (chapitre 2) puis je discute de manière plus détaillée les travaux de recherche auxquels j'ai participé en les déclinant de la façon suivante :

- chapitre 3 : Les expériences embarquées sous ballon ;
- chapitre 4 : Développement et validation d'expériences spatiales ;
- chapitre 5 : La plateforme expérimentale QUALAIR
- chapitre 6 : Transfert radiatif, spectroscopie, traitement des ;
- chapitre 7 : Physico-chimie atmosphérique.

Enfin, dans le chapitre 8 (Travail en cours et perspectives), je tente une mise en perspective de mon travail de recherche, et plus largement de celui de l'équipe. Les chapitres 3 à 7 ne sont pas totalement indépendants puisque les études décrites dans l'un ne peuvent être initiées sans celles présentées dans un autre. Prenons l'exemple de notre participation au projet spatial japonais ILAS. Je suis intervenu pour préparer l'inversion des mesures de l'instrument et aider ensuite à son amélioration (transfert radiatif). L'équipe a effectué des mesures sous ballon avec l'instrument LPMA pour aider à la validation de l'expérience spatiale (expériences embarquées). J'ai ensuite participé à l'analyse des mesures (traitement des données) et comparé aux mesures d'ILAS (validation d'une expérience spatiale). Dans le cas d'espèces à forte variation diurne, j'ai utilisé un modèle de chimie (Physico-chimie atmosphérique). Dans le cadre de la coopération avec les scientifiques japonais du NIES pour améliorer leur mesure de température, nos travaux sur la bande A de l'oxygène moléculaire (spectroscopie) ou encore sur le spectre solaire ont été appréciés. C'est donc dans quatre chapitres de ce document que s'inscrit l'ensemble des travaux auxquels j'ai participé dans le cadre de ce projet spécifique. Il m'a semblé toutefois plus lisible de rédiger le manuscrit en terme de thématique plutôt qu'en terme de projet ou simplement qu'une rédaction chronologique.

Enfin, je dois signaler que j'ai participé à certains travaux en marge des activités principales de l'équipe. Ils ont été menés dans le cadre de coopérations avec la CEA/DAM. Ces travaux sont classifiés et ne seront pas présentés ici.





## 2 Notice

### 2.1 Curriculum vitae

#### 2.1.1 Formation

|                |   |
|----------------|---|
| Septembre 1987 | Baccalauréat section C  |
| Juillet 1988   | Lycée Saint-Exupéry, Saint-Dizier (Haute-Marne)   |
| Septembre 1988 | DEUG de physique  |
| Juin 1990      | DEUG de mathématique  |
|                | Faculté des Sciences exactes et naturelles de Reims (Marne)   |
| Septembre 1990 | Licence de physique   |
| Juin 1991      | Faculté des Sciences exactes et naturelles de Reims (Marne)   |
| Septembre 1991 | Maîtrise de physique  |
| Juillet 1992   | Faculté des Sciences exactes et naturelles de Reims (Marne)   |
| Septembre 1992 | <b>DEA Caractérisation physique de la matière et instrumentation</b>  |
| Juillet 1993   | Faculté des Sciences exactes et naturelles de Reims (Marne),<br>soutenance d'un mémoire de DEA : <i>Calcul de l'émission infrarouge de l'espèce atmosphérique N<sub>2</sub>O dans des conditions de non-équilibre thermodynamique local</i> |
| Septembre 1993 | <b>Contrat formation-recherche du CEA et préparation d'une thèse</b>  |
| Octobre 1996   | de géophysique externe et physique moléculaire : Restitution de profils verticaux de concentration des constituants minoritaires de la stratosphère à partir de spectres infrarouges à haute résolution enregistrés sous ballon             |
|                | Soutenue le 4 avril 1996 à l'université Pierre et Marie Curie.  |
|                | Mention très honorable avec les félicitations écrites du jury   |

#### 2.1.2 Expériences professionnelles

|                   |  |
|-------------------|--|
| Octobre 1996      | <b>Bourse postdoctorale du Centre National d'Etude Spatiale :</b>  |
| Septembre 1998    | Développement d'algorithmes de recherche pour le dépouillement des données enregistrées par les instruments satellitaires ILAS et IASI                                       |
| Juillet-août 1997 | <b>Science and Technology Agency Awards</b> , National Institute of Environmental Studies, Tsukuba, Japon  |
| Mars-mai 1998     | <b>Stage postdoctoral au AER (Atmospheric Environmental Research)</b> , Boston, Etats-Unis : transfert radiatif atmosphérique par visée au nadir dans l'infrarouge thermique |
| Octobre 1998      | <b>Allocation de recherche du Centre National de la Recherche Scientifique sur contrat européen :</b>  |
| Août 1999         | Etude de la partition des espèces chlorées et azotées dans la stratosphère terrestre/inversion des mesures satellitaires   |

---

Depuis septembre 1999 Maître de conférences à l'UPMC (Paris 6) et au Laboratoire de Physique Moléculaire pour l'Atmosphère et l'Astrophysique

---

### 2.1.3 Expériences pédagogiques

---

|             |   |
|-------------|---|
| Depuis 2006 | <b>Insertion professionnelle</b> de première année du master de physique et applications à l'UPMC   |
| Depuis 2004 | <b>Cours et travaux dirigés</b> de sciences de l'atmosphère et d'introduction à la climatologie de deuxième année de licence à l'UPMC                                   |
| Depuis 1999 | <b>Projets expérimentaux</b> de troisième année de licence à l'UPMC et en première année de formation interuniversitaire de physique (ENS Paris)                        |
| 1999-2003   | <b>Travaux pratiques</b> d'optique de troisième année de licence à l'UPMC   |
| 1999-2001   | <b>Travaux dirigés et travaux pratiques</b> de première année de DEUG SCM et MIAS (matière et énergie) à l'UPMC   |
| Depuis 1997 | <b>Cours et travaux dirigés</b> <i>physique moléculaire atmosphérique</i> – DEA physique expérimentale des atomes et des molécules et applications – université Paris 6 |
| 1997-1999   | <b>Travaux pratiques</b> de mécanique – IUT mesure physique – université Paris 7  |
| 1993 -1997  | <b>Formateur</b> BAFA   |

---

## 2.2 Publications et communications scientifiques

### 2.2.1 Thèse de doctorat

Restitution de profils verticaux de concentration des constituants minoritaires de la stratosphère à partir de spectres infrarouges à haute résolution enregistrés

sous ballon, mention très honorable avec les félicitations écrites du jury, le 4 avril 1996 à l'université Pierre et Marie Curie (Paris).

### 2.2.2 Publications dans des revues à comité de lecture

Keim C., M. Eremenko, J. Orphal, G. Dufour, J.-M. Flaud, M. Höpfner, A. Boynard, C. Clerbaux, S. Payan, T. August, P.-F. Coheur, D. Hurtmans, H. Claude, H. de Backer, H. Dier, B. Johnson, H. Kelder, R. Kivi, T. Koide, B. Koiso, M. López Bartolomé, K. Lambkin, D. Moore, F. J. Schmidlin, J.R. Shearman, and R. Stübi, *Tropospheric ozone from IASI: comparison of different inversion algorithms and validation with ozone sondes in the northern middle latitudes*, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 9, 11441-11479, 2009

Razavi A., C. Clerbaux, C. Wespes, L. Clarisse, D. Hurtmans, S. Payan, C. Camy-Peyret, and P.F.

Coheur, *Characterization of methane retrievals from the IASI space-borne sounder*, Atmos. Chem. Phys. Discuss, 9, 7615-7643, 2009

Payan S., C. Camy-Peyret, H. Oelhaf, G. Wetzal, G. Maucher, C. Keim, M. Pirre, N. Huret, A. Engel, M.C. Volk, H. Kuellmann, J. Kuttippurath, U. Cortesi, G. Bianchini, F. Mencaraglia, P. Raspollini, G. Redaelli, C. Vigouroux, M. De Mazière, S. Mikuteit, T. Blumenstock, V. Velazco, J. Notholt, E. Mahieu, P. Duchatelet, D. Smale, S. Wood, N. Jones, C. Piccolo, V. Payne, A. Bracher, N. Glatthor, G. Stiller, K. Grunow, P. Jeseck, Y. Te, and A. Butz, *Validation of version-4.61 methane and nitrous oxide*

- observed by MIPAS, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 413-442, 2009
- Mondelain D., C. Camy-Peyret, W. Deng, S. Payan, and A. W. Mantz, *Study of molecular line parameters down to very low temperature*, *Appl. Phys. B* 90, 227-233, 2008
- Payan S., C. Camy-Peyret, H. Oelhaf, G. Wetzel, G. Maucher, C. Keim, M. Pirre, N. Huret, A. Engel, M. C. Volk, H. Kuellmann, J. Kuttippurath, U. Cortesi, G. Bianchini, F. Mencaraglia, P. Raspollini, G. Redaelli, C. Vigouroux, M. De Mazière, S. Mikuteit, T. Blumenstock, V. Velazco, J. Notholt, M. Mahieu, P. Duchatelet, D. Smale, S. Wood, N. Jones, C. Piccolo, V. Payne, A. Bracher, N. Glatthor, G. Stiller, K. Grunow, P. Jeseck, Y. Te, K. Pfeilsticker, and A. Butz, *Validation and data characteristics of methane and nitrous oxide profiles observed by MIPAS and processed with Version 4.61 algorithm*, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 7, 18043-18111, 2007
- Mondelain D., S. Payan, W. Deng, C. Camy-Peyret, D. Hurtmans, and A. W. Mantz, Measurement of the temperature dependence of line mixing and pressure broadening parameters between 296 and 90 K in the  $\nu_3$  band of  $^{12}\text{CH}_4$  and their influence on atmospheric methane retrievals, *J. Molec. Spectrosc.* 244 130–137, 2007 (doi:10.1016/j.jms.2007.05.005)
- Butz A., H. Bösch, C. Camy-Peyret, M. Dorf, A. Engel, S. Payan, K. Pfeilsticker, *Observational constraints on the kinetics of the ClO-BrO and ClO-ClO ozone loss cycles in the Arctic winter stratosphere*, *Geophys. Res. Lett.*, 34, L05801, 2007 (doi:10.1029/2006GL028718)
- Butz, A., H. Bösch, C. Camy-Peyret, M. Chipperfield, G. Dufour, K. Grunow, P. Jeseck, S. Kühn, S. Payan, I. Pépin, J. Pukite, A. Rozanov, C. von Savigny, C. Sioris, T. Wagner, F. Weidner, and K. Pfeilsticker, *Inter-comparison of stratospheric  $\text{O}_3$  and  $\text{NO}_2$  abundances retrieved from balloon borne direct sun observations and Envisat/SCIAMACHY limb measurements*, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 1293–1314, 2006
- Tran H., P.-M. Flaud, T. Gabard, F. Hase, T. von Clarmann, C. Camy-Peyret, S. Payan and J.-M. Hartmann; Model, software, and database for line-mixing effects in the  $\nu_3$  and  $\nu_4$  bands of  $\text{CH}_4$  and tests using laboratory and planetary measurements. I.  $\text{N}_2$  (and air) broadenings and the Earth atmosphere, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 101, 284-305, 2006 (doi:10.1016/j.jqsrt.2005.11.020)
- Payan S., J. De La Noë, A. Hauchecorne, and C. Camy-Peyret, *A revue of remote sensing techniques and associated spectroscopy problems.*, *C. R. Physique*, 6, 825–835, 2005 (doi:10.1016/j.crhy.2005.07.013)
- Urban J., N. Lautié, E. Le Flochmoën, C. Jiménez, P. Eriksson, J. de La Noë, E. Dupuy, L. El Amraoui, U. Frisk, F. Jégou, D. Murtagh, M. Olberg, P. Ricaud, C. Camy-Peyret, G. Dufour, S. Payan, N. Huret, M. Pirre, A.D. Robinson, N.R.P. Harris, H. Bremer, A. Kleinböhl, K. Kullmann, K. Künzi, J. Kuttippurath, M. Ejiri, H. Nakajima, Y. Sasano, T. Sugita, T. Yokota, C. Piccolo, P. Raspollini, M. Ridolfi, *Odin/SMR Limb Observations of Stratospheric Trace Gases: Validation of  $\text{N}_2\text{O}$* , *J. Geophys. Res.*, 110, D09301, 2005 (doi:10.1029/2004JD005394)
- Niro F., F. Hase, C. Camy-Peyret, S. Payan, J.-M. Hartmann, Spectra calculations in central and wing regions of  $\text{CO}_2$  IR bands between 10 and 20  $\mu\text{m}$ . II :Atmospheric solar occultation spectra, *J Quant Spectrosc; Radiat; Transfer*, 90, 43-59, 2005 (doi:10.1016/j.jqsrt.2004.04.004)
- Dufour G., S. Payan, F. Lefèvre, M. Eremenko, A. Butz, P. Jeseck, Y. Té, K. Pfeilsticker, and C. Camy-Peyret, *4D comparison method to study the  $\text{NO}_y$  partitioning in summer polar stratosphere. Influence of aerosol burden.*, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 919-926, 2005
- Té Y., P. Jeseck, C. Camy-Peyret and S. Payan, High emissivity blackbody for radiometric calibration near ambient temperature, *Metrologia*, 40, 24-30, 2003
- Stephen A. T. Tjemkes, R. Patterson, M. Rizzi, W. Shephard, S. A. Clough, M. Matricardi, J. Haigh, M. Höpfner, S. Payan, A. Trotsenko, N. Scott, P. Rayer, J. Taylor, C. Clerbaux, L. L. Strow, S. DeSouza-Machado, D. Tobin, and R. Knuteson, *The ISSWG Line-by-line Intercomparison Experiment*, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 77, 433-453, 2003
- Kanzawa, H., T. Sugita, H. Nakajima, G.E. Bodeker, H. Oelhaf, M. Stowasser, G. Wetzel, A. Engel, U. Schmidt, I. Levin, G.C. Toon, B. Sen, J.-F. Blavier, S. Aoki, T. Nakazawa, K.W. Jucks, D.G. Johnson, W.A. Traub, C. Camy-Peyret, S. Payan, P. Jeseck, I. Murata, H. Fukunishi, M. von König, H. Bremer, H. Küllmann, J.H. Park, L.L. Pan, T. Yokota, M. Suzuki, M. Shiotani, and Y. Sasano, *Validation and data characteristics of nitrous oxide and methane profiles observed by the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) and processed with the Version 5.20 algorithm*, *J. Geophys. Res.*, 108, 8003, 2003 (doi: 10.1029/2002JD002458)
- Kanzawa H., C. Schiller, J. Ovarlez, C. Camy-Peyret, S. Payan, P. Jeseck, H. Oelhaf, M. Stowasser, W.A. Traub, K. Jucks, D.G. Johnson, G.C. Toon, J.H. Park, G. Bodeker, L. Pan, T. Sugita, H. Nakajima, T. Yokota, M. Suzuki, M. Shiotani, and Y. Sasano, *Validation and data characteristics of water vapor profiles observed by the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) and processed with the version 5.20 algorithm (erratum)*, *J. Geophys. Res.*, 108, 8218, 2003 (doi:10.1029/2003JD001601)
- Romanov S.V., C. Camy-Peyret, and S. Payan, *Co column amount retrieval from IMG spectra using*

- temperature and ozone regressions*, Geophysical Research from space, 3, 1-7, 2002
- Kanzawa H., C. Schiller, J. Ovarlez, C. Camy-Peyret, S. Payan, P. Jeseck, H. Oelhaf, M. Stowasser, W.A. Traub, K. Jucks, D.G. Johnson, G.C. Toon, J.H. Park, G. Bodeker, L. Pan, T. Sugita, H. Nakajima, T. Yokota, M. Suzuki, M. Shiotani, and Y. Sasano., *Validation and data characteristics of water vapor profiles observed by the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) and processed with Version 5.20 algorithm.*, J. Geophys. Res., 107, 8217, 2002 (doi:10.1029/2001JD000881)
- Sugita T., T. Yokota, H. Nakajima, H. Kanzawa, H. Nakane, H. Gernandt, V. Yushkov<sup>3</sup>, K. Shibasaki, T. Deshler, Y. Kondo, S. Godin, F. Goutail, J.-P. Pommereau, C. Camy-Peyret, S. Payan, P. Jeseck, J.-B. Renard, H. Bösch, R. Fitzenberger, K. Pfeilsticker, M. von König, H. Bremer, H. Küllmann, H. Schlager, J.J. Margitan, B. Stachnik, G.C. Toon, K. Jucks, W.A. Traub, D.G. Johnson, I. Murata, H. Fukunishi, and Y. Sasano, *Validation of ozone measurements from the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS)*, J. Geophys. Res., 107, 8212, 2002 (doi:10.1029/2001JD000602)
- Irie H., Y. Kondo, M. Koike, M. Y. Danilin, C. Camy-Peyret, S. Payan, J. P. Pommereau, F. Goutail, J. -B. Renard, H. Oelhaf, G. Wetzal, G. C. Toon, B. Sen, J. -F. Blavier, R. Salawitch, R. M. Bevilacqua, J. M. Russell III, H. Kanzawa, H. Nakajima, T. Yokota, T. Sugita, and Y. Sasano, *Validation of NO<sub>2</sub> and HNO<sub>3</sub> from the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) with the version 5.20 retrieval algorithm.*, J. Geophys. Res., 107, 8206, 2002 (doi: 10.1029/2001JD001304)
- Té Y., P. Jeseck, C. Camy-Peyret, S. Payan, G. Perron and G. Aubertin, *Balloonborne calibrated spectroradiometer for atmospheric nadir sounding.*, Applied Optics, 41, 6431-6441, 2002
- Clerbaux C., J. Hadji-Lazaro, S. Payan, C. Camy-Peyret, J. Wang, D.P. Edwards, and M. Luo, *Retrieval of CO from remote-sensing measurements in the infrared using four different inversion method.*, Applied optics, 41, 7068-7073, 2002
- Pieroni D., Hartmann J.-M., Camy-Peyret C., Jeseck P., Payan S. , *Influence of line mixing on absorption by CH<sub>4</sub> in atmospheric balloon-borne spectra near 3.3 μm.* , J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 68, 117-133, 2001
- Camy-Peyret C., S. Payan, P. Jeseck, Y. Té and T. Hawat, *High resolution balloon-borne spectroscopy within the O<sub>2</sub> A-band : observations and radiative transfer modelling.*, IRS'2000 : Current Problems in Atmospheric Radiation, W. L. Smith and Yu. M. Timofeyev (Eds), A. Deepak Publ. Hampton, Virginia, USA, 607-610, 2001
- Camy-Peyret C., S. Payan, P. Jeseck and Y. Té, *Mesures spectroscopiques de constituants et de polluants atmosphériques par techniques in situ et à distance, au sol ou embarquées.*, C.R. Acad. Sci. Paris, tome 2, Série IV, 905-922, 2001
- Pfeilsticker K., W. T. Sturges, H. Bösch, C. Camy-Peyret, M.P. Chipperfield, A. Engel, R. Fitzenberger, M. Müller, S. Payan, and B.-M. Sinnhuber , *Lower stratospheric organic and inorganic bromine budget for the arctic winter 1998/99*, Geophys. Res. Lett., 27, 3305-3308, 2000
- Harder H., H. Bösch, C. Camy-Peyret, M. Chipperfield, R. Fitzenberger, S. Payan, D. Perner, U. Platt, B. Sinnhuber, and K. Pfeilsticker, *Comparison of measured and modeled stratospheric BrO : implication for the total amount of stratospheric bromine.*, Geophys. Res. Lett., 27, 3695 - 3698, 2000
- Pieroni D., J.-M. Hartmann, C. Camy-Peyret, P. Jeseck, and S. Payan, *Influence of line mixing on absorption by CH<sub>4</sub> in atmospheric balloon-borne spectra near 3.3 μm.*, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer., 68, 117-133, 2001
- Rivière E. D., N. Huret, F.G. Taupin, J.-B. Renard, M. Pirre, S. Eckerman, N. Larsen, T. Deshler, F. Lefèvre, S. Payan, and C. Camy-Peyret, *Role of leewave in the formation of solid PSCs: case studies from February 1997.*, J. Geophys. Res., 105, 6845-6853, 2000
- Koike M., Y. Kondo, H. Irie, F.J. Murcray, J. Williams, P. Fogal, R. Blatherwick, C. Camy-Peyret, S. Payan, H. Oelhaf, G. Wetzal, W. Traub, D. Johnson, K. Jucks, G.C. Toon, B. Sen, J.-F. Blavier, H. Schlager, H. Ziereis, N. Toriyama, M.Y. Danilin, J.N. Rodriguez, H. Kansawa, and Y. Sasano, *A comparison of Arctic HNO<sub>3</sub> profiles measured by the Improved Limb Atmospheric Spectrometer and balloon-borne sensors.*, Geophys. Res. Lett., 105, 6761-6771, 2000
- Clerbaux C., J. Hadji-Lazaro, S. Payan, C. Camy-Peyret, and G. Mégie, *Retrieval of CO from the IMG/ADEOS spectra.*, IEEE Transaction on Geoscience and Remote Sensing, 37, 3, 1657-1662, 1999
- Payan S., C. Camy-Peyret, P. Jeseck, T. Hawat, M. Pirre, J.-B. Renard, C. Robert, F. Lefèvre, H. Kansawa, and Y. Sasano, *Diurnal and nocturnal distribution of stratospheric NO<sub>2</sub> from solar and stellar occultation measurements in the Arctic vortex : comparison with models and ILAS satellite Measurements.*, J. Geophys. Res., 104, 21585-21593, 1999
- Jeseck P., C. Camy-Peyret, S. Payan, and T. Hawat, *Detector nonlinearity correction scheme for the LPMA balloon-borne Fourier transform spectrometer.*, Applied Optics, 37, 6544-6549, 1998
- Payan S., C. Camy-Peyret, P. Jeseck, T. Hawat, G. Durry, and F. Lefèvre, *First direct simultaneous HCl*

and ClONO<sub>2</sub> Profile measurements in the Arctic vortex., *Geophys. Res. Lett.*, 25, 2663-2666, 1998

Hartmann J.-M., J. M. Kochel, S. Payan and, C. Camy-Peyret, *CF<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> mixing ratio profiles in the 1995 late winter arctic vortex from balloon-borne spectra.*, *Geophys. Res. Lett.*, 24, 2367-2370, 1997

Kochel J.-M., J.-M. Hartmann, C. Camy-Peyret, R. Rodrigues, and S. Payan, *Influence of line-mixing on absorption by CO<sub>2</sub> Q-branches in atmospheric balloon-borne spectra near 13 μm.*, *J. Geophys. Res.*, 102, 12891-12899, 1997

Hawat T., R. Torguet, C. Camy-Peyret, P. Jeseck, and S. Payan, *The pointing and the sun-tracker system for the LPMA gondola.*, SPIE vol. 2739, 112-119, 1996

### 2.2.3 Publications dans des revues associées à des colloques

Té Y., S. Payan, P. Jeseck, J. Bureau and C. Camy-Peyret, Recent results obtained with the IASI-balloon experiment and contribution to the calibration/validation of IASI on MetOp, ESA 2007, SP-647, 2007

Jegou F., J. de La Noë, A. Drouin, P. Ricaud, J. Urban, N. Schneider, E. Le Flochmoën, E. Dupuy, L. El Amraoui, Y. Planchais, D. P. Murtagh, N. Lautié, P. Eriksson, C. Jimenez, S. Brohede, J. Stegman, E. J. Llewellyn, S. Petelina, D. A. Degenstein, R. L. Gattinger, N. D. Lloyd, C. S. Haley, C. von Savigny, I. McDade, F. Goutail, A. Bazureau, S. Godin-Beekmann, J.-P. Pommereau, F. Lefèvre, C. Camy-Peyret, S. Payan, P. Gesek, G. Moreau, J.-B. Renard, C. Robert, and K. Strong, *Comparison of Ozone Profiles Measured by the ODIN Satellite Instruments and Ground-based, Airborne, Satellite Experiments and Model Computations*, *Geophysical Research Abstracts*, 6, 10-2-2004

Butz, A., H. Bösch, C. Camy-Peyret, M. Dorf, G. Dufour, S. Payan, F. Weidner, and K. Pfeilsticker, Intercomparison of NO<sub>2</sub> and O<sub>3</sub> Slant Column Densities and Vertical Profiles inferred from Balloon Borne Measurements of Solar Absorption Spectra in the IR and UV/VIS, *Geophysical Research Abstracts*, 6, 17-2-2004

Dufour, G., S. Payan, C. Camy-Peyret, F. Lefèvre, Y. Té, P. Jeseck, and I. Pépin, Comparison between LPMA measurements 3D Reprobus modelling using a box model : sensitivity of vertical profiles to time, latitude, longitude and implications on NO<sub>y</sub> modelling, *Geophysical Research Abstracts*, 5, 30-1-2003

Butz, A., H. Boesch, C. Camy-Peyret, M. Dorf, G. Dufour, S. Payan, F. Weidner, and K. Pfeilsticker, Intercomparison of NO<sub>2</sub> Slant Column Densities and Vertical Profiles Inferred from Balloon-borne Measurements of Solar Absorption Spectra in the IR and UV/vis, *Geophysical Research Abstracts*, 5, 30-1-2003

Té Y., S. Payan, P. Jeseck, V. Ferreira, G. Dufour, A. Butz, K. Pfeilsticker, M. Dorf, F. Weidner and C. Camy-Peyret, *Results obtained during recent flights of the LPMA balloon experiment and contribution to*

*the Envisat validation.* In ESA SP-590, 209-217, 2005

Dufour G., S. Payan, Y. Té, P. Jeseck, V. Ferreira, C. Camy-Peyret, M. Eremenko, A. Butz, K. Pfeilsticker, W. Gurlit, and K. Gerilowski, *Envisat validation results obtained with LPMA and IASI-balloon FTIR, in ESA SP-562, 2004* (D. Danesy, ESA Pub. Div. Ed.), 57 (6 p.), 2004

Blom C. E., C. Camy-Peyret, V. Catoire, K. Chance, H. Oelhaf, J. Ovarlez, S. Payan, M. Pirre, C. Piesch & G. Wetzel, *Validation of MIPAS temperature profiles by stratospheric balloon and aircraft measurements, In ESA SP-562, 2004* (D. Danesy, ESA Pub. Div. Ed.), 57 (5 p.), 2004

Camy-Peyret C., G. Dufour, S. Payan, H. Oelhaf, G. Wetzel, G. Stiller, Th. Blumenstock, C. E. Blom, T. Gulde, N. Glatthor, A. Engel, M. Pirre, V. Catoire, G. Moreau, M. De Mazière, C. Vigouroux, E. Mahieu, U. Cortesi, and F. Mencaraglia, *Validation of MIPAS N<sub>2</sub>O profiles by stratospheric balloon, aircraft and ground based measurements, In ESA SP-562, 2004* (D. Danesy, ESA Pub. Div. Ed.), 29 (9 p.), 2004

Camy-Peyret C., S. Payan, G. Dufour, H. Oelhaf, G. Wetzel, G. Stiller, N. Glatthor, Th. Blumenstock, C.E. Blom, C. Keim, S. Mikuteit, A. Engel, M. Pirre, G. Moreau, V. Catoire, A. Bracher, M. Weber & K. Bramstedt, *Validation of MIPAS CH<sub>4</sub> profiles by stratospheric balloon, aircraft and ground based measurements, in ESA SP-562, 2004* (D. Danesy, ESA Pub. Div. Ed.), 31 (6p.), 2004

Jégou, F., J. de La Noë, A. Drouin, P. Ricaud, J. Urban, N. Schneider, E. Le Flochmoën, E. Dupuy, L. El Amraoui, Y. Planchais, D. P. Murtagh, N. Lautié, P. Eriksson, C. Jimenez, S. Brohede, J. Stegman, E. J. Llewellyn, S. Petelina, D. A. Degenstein, R. L. Gattinger, N. D. Lloyd, C. S. Haley, C. von Savigny, I. McDade, F. Goutail, A. Bazureau, S. Godin-Beekmann, J. -P. Pommereau, F. Lefèvre, C. Camy-Peyret, S. Payan, P. Gesek, G. Moreau, J. -B. Renard, C. Robert, V. Catoire, N. Huret, and K. Strong, *Comparison of ozone profiles measured by the Odin satellite instruments and ground-based, airborne, satellite experiments and model computations*, *Quadrennial Ozone Symposium, Kos, Greece, 1-8*

- June 2004, XXth in Proceedings, Zerefos C.S. (Ed.), 1, 119-120, 2004
- Eremenko M., S. Payan, Y. Té, G. Dufour, V. Ferreira, P. Jeseck, C. Camy-Peyret, Look up table and interpolation methods for radiative transfer calculations in the infrared application to balloon and satellite spectra, Advanced Research Workshop of NATO, Weakly Interacting Molecular Pairs: Unconventional Absorbers of Radiation in the Atmosphere, Fontevraud, France, Avril 29-Mai 3-2002, In ARW Proceedings, C. Camy-Peyret & A. Vigasin Eds, Kluwer, 2003
- Camy-Peyret C., S. Payan, P. Jeseck, Y. Té, G. Dufour, and M. Eremenko, *Test of radiative transfer models from balloon spectra*, Advanced Research Workshop of NATO, Weakly Interacting Molecular Pairs: Unconventional Absorbers of Radiation in the Atmosphere, Fontevraud, France, Avril 29-Mai 3-2002, In ARW Proceedings, C. Camy-Peyret & A. Vigasin Eds, Kluwer, 2003
- Bösch H., C. Camy-Peyret, M. Chipperfield, G. Dufour, M. Dorf, R. Fitzenberger, S. Payan, U. Platt, R. Ruhnke, F. Weidner and K. Pfeilsticker, *Comparison of measured and modeled  $NO_x/NO_y$  partitioning in high-latitude summer stratosphere*, 6th European Symposium on stratospheric Ozone, Gothenburg, Sweden, 2002
- Pfeilsticker K., H. Bösch, M. Chipperfield, C. Camy-Peyret, M. Dorf, R. Fitzenberger, S. Payan, B. Sinnhuber, and F. Weidner, Simultaneous BrO and OClO profile measurements in the Arctic vortex; Implications for the ClO and BrO chemistry and inferred ozone loss from the ClO/BrO ozone loss cycle, Proceedings of Workshop on Arctic Ozone Loss, 4-6 March, Potsdam, Germany, 2002
- Té Y., S. Payan, P. Jeseck et C. Camy-Peyret, *LPMA/IASI ballon : un sondeur troposphérique par visée au nadir*, Atelier Expérimentation et Instrumentation, Toulouse, 2002
- Jeseck P., Y. Té, S. Payan et C. Camy-Peyret, *Limb Profile Monitor of the Atmosphere : un spectromètre embarqué sous ballon stratosphérique*, Atelier Expérimentation et Instrumentation, Toulouse, 2002
- Camy-Peyret C., P. Jeseck, Y. Té, S. Payan and J. Evrard, IASI balloon : a nadir looking Fourier transform spectrometer operating in thermal emission for atmospheric sounding., ESA Publications, SP-471, 245-249, 2001
- Camy-Peyret C., S. Payan, P. Jeseck, and Y. Té, *Validating Envisat atmospheric products using the balloon-borne instrument LPMA (Limb Profile Monitor of the Atmosphere)*, Atmospheric Chemistry Validation of Envisat (ACVE,) May 16-18, Noordwijk, The Netherlands, ESA WPP-186, 2001
- Moreau G., M. Pirre, F. Goffinont-Taupin, C. Robert, C. Camy-Peyret, S. Payan, and R. Ramaroson, *Results and goals of SPIRALE after the first flight from Gap in June 1999.*, ESA Publications, SP-471, 309-314, 2001
- Camy-Peyret C., S. Payan, P. Jeseck and Y. Té, *Validating Envisat atmospheric products using the balloon-borne instrument LPMA (Limb Profile Monitor of the Atmosphere)*, ESA Publications, SP-471, 2001
- Pirre, M., J.B. Renard, E.D. Rivière, G. Berthet, N. Huret, F.G. Taupin, C. Camy-Peyret, S. Payan, J.P. Pommereau, F. Goutail, L. Denis, and F. Lefèvre,  *$NO_2$  in the arctic polar vortex measured by remote sensing instruments*, Proceedings of the EC Workshop on Nitrogen Oxides in the Lower Stratosphere and Upper Troposphere, Heidelberg, Germany, 19-22 March, 2001
- Payan S., C. Camy-Peyret, P. Jeseck, Y. Té, K. Pfeilsticker, H. Bösch, R. Fitzenberger, H. Rudiger, and F. Lefèvre, *Arctic profiles of HCl,  $HNO_3$  and  $NO_2$  measured during THESEO 2000-EuroSolve by the LPMA/DOAS balloon payload*, Published in Air Pollution-Research Report, Polar Stratospheric Ozone, 2000
- Pfeilsticker K., W.T. Sturges, H. Bösch, C. Camy-Peyret, M.P. Chipperfield, A. Engel, R. Fitzenberger, M. Müller, S. Payan and B.-M. Sinnhuber, *The budget of inorganic and organic bromine, comparison of their recent trends, and chemistry*, Published in Air Pollution-Research Report, Polar Stratospheric Ozone, 2000
- Bösch H., C. Camy-Peyret, M.P. Chipperfield, R. Fitzenberger, H. Harder, S. Payan, U. Platt, B.-M. Sinnhuber and K. Pfeilsticker, *Measurements of stratospheric trace gas profiles during the THESEO 2000 campaign.*, Published in Air Pollution-Research Report, Polar Stratospheric Ozone, 2000
- Fitzenberger R., H. Bösch, C. Camy-Peyret, M. Chipperfield, M. Dorf, M. Hirsekorn, U. Platt, S. Payan, F. Weidner, and K. Pfeilsticker, *Balloon-borne Measurements for the Validation of SCIAMACHY UV/vis Data Products*, 15th ESA Symposium on European Rocket and Balloon Programmes and Related Research, Biarritz, 2000
- Fitzenberger R., H. Bösch, C. Camy-Peyret, M. Chipperfield, H. Harder, S. Payan, U. Platt, B.M. Sinnhuber, and K. Pfeilsticker, *Balloon-borne DOAS Measurements of Bromine Oxide in the Stratosphere and Troposphere*, Quadrennial Ozone Symposium, Sapporo, 2000
- Rivière E.D., N. Huret, J.-B. Renard, F. T.-Goffinont, M. Pirre, N. Larsen, S. Eckermann, C. Camy-Peyret, S. Payan F. Lefevre, *Chlorine activation associated with mesoscale solid polar stratospheric clouds on February 26 1997 above Kiruna*, Air pollution research report 73, Report EUR 19340, stratospheric ozone 1999, 502-505, 2000

Payan S., C. Camy-Peyret, P. Jeseck, Y. Té, M. Pirre, J.B. Renard, F. Lefèvre, F. Stroh, T. Woyke, B. Vogel, K. Pfeilsticker, R. Fitzenberger, H. Bösch and F. Goffinont-Taupin, *HALOMAX results on reservoir and active chlorine species: balloon measurements and comparisons with 3-D chemical transport model*, Air pollution research report 73, Report EUR 19340, stratospheric ozone 1999, 296-299, 2000

Rivière E., F. Goffinont, J.B. Renard, N. Huret, M. Pirre, C. Camy-Peyret, S. Payan, F. Lefèvre, M. Stowasser and H. Oelhaf, *Chlorine-nitrogen species interactions studies at the beginning of February 1999 in the polar vortex*, Air pollution research report 73, Report EUR 19340, stratospheric ozone 1999, 328-331, 2000

Moreau G., C. Camy-Peyret, S. Payan, F. Goffinont, M. Pirre, R. Ramarosan, C. Robert, and P. Jeseck, *Correlation of ozone versus CO as derived from the first flight of SPIRALE*, Air pollution research report 73, Report EUR 19340, stratospheric ozone 1999, 546-549, 2000

Bösch H., C. Camy-Peyret, M. Chipperfield, R. Fitzenberger, H. Harder, R. Huppert, S. Payan, D. Perner, U. Platt, M. Schneider, T. Trautmann and K. Pfeilsticker, *Comparison of measured and modelled NO<sub>2</sub> and JNO<sub>2</sub>*, Air Pollution-Research Report 73, Report EUR 19340, stratospheric ozone 1999, 205-208, 2000

Camy-Peyret C., S. Payan, J. Jeseck, T. Hawat, and , Recent results obtained by the LPMA and DOAS balloon-borne instruments during the ILAS, SABINE, and THESEO campaigns., ESA Publications SP 437, 341-345, 1999

Bösch H., C. Camy-Peyret, M. Chipperfield, R. Fitzenberger, H. Harder, R. Huppert, S. Payan, D. Perner, U. Platt, and K. Pfeilsticker, , *Measurement of stratospheric trace gas profiles at different latitudes*

*and seasons using a new balloon-borne DOAS instrument*, ESA Publications SP 437, 347-352, 1999

Camy-Peyret C., S. Payan, P. Jeseck, and T. Hawat, *Measurements of stratospheric HCl and HF in the Arctic vortex during the ILAS validation campaign in February 1997.*, Air Pollution-Research Report 66, Polar Stratospheric Ozone, 323-326, 1998

Schneider M., C. Camy-Peyret, F. Ferlemann, H. Harder, T. Hawat, P. Jeseck, H. Osterkamp, S. Payan, D. Perner, U. Platt, E. Röth, C. Schiller, and K. Pfeilsticker, *Simultaneous measurements of stratospheric O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, and JNO<sub>2</sub>.*, Air Pollution-Research Report 66, Polar Stratospheric Ozone, 502-505, 1998

Clerbaux C., J. Hadji-Lazaro, S. Payan, C. Camy-Peyret, J. Wang, *Intercomparison of inversion algorithms for the retrieval of CO from IMG/IASI*, Proceedings of the 8<sup>th</sup> International Workshop on Atmospheric Science from Space using Fourier Transform Spectrometry (Météo France, Toulouse, France), 1998

Camy-Peyret C., T. Hawat, J. Jeseck, and S. Payan, Recent results obtained by the LPMA, balloon-borne experiment during SESAME and the ILAS validation campaign, ESA Publications SP 397, 223-229, 1997

Camy-Peyret C., P. Jeseck, S. Payan, T. Hawat, G. Durrty and J.-M. Flaud, *Comparison of CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O profiles at high and mid-latitudes using the LPMA balloon-borne Fourier transform instrument*, Air Pollution-Research Report 56, Polar Stratospheric Ozone, 95-100, 1996

Payan S., C. Camy-Peyret, P. Jeseck, G. Durrty, T. Hawat and F. Lefevre, *HCl and ClONO<sub>2</sub> profiles in the late vortex during SESAME*, Air Pollution-Research Report 56, Polar Stratospheric Ozone, 280-285, 1996

#### 2.2.4 Communications orales dans des colloques, des écoles ou séminaires de recherche

Payan S., Cours de transfert radiatif, École thématique CNRS SPECATMO "de la SPECTroscopie à l'ATMOsphère: Mesures et modèles", Ile de Ré, France, 9-12 juin 2009.

Payan S., Cours sur les algorithmes d'inversion, École thématique CNRS SPECATMO "de la SPECTroscopie à l'ATMOsphère: Mesures et modèles", Ile de Ré, France, 9-12 juin 2009.

Payan S., Inventory of spectroscopic parameters for infrared atmospheric radiative transfer calculations, First Meeting of French Virtual Atomic and Molecular Data Centre, Meudon, France, December 11 - December 12, 2008

Payan s., C. Camy-Peyret, H. Tran, and Y. Té, *Impact of new spectroscopic data on atmospheric*

*retrievals: case studies for CH<sub>4</sub> and CO<sub>2</sub>*, IRS2008, Foz do Iguacu, Brazil, 2-8 August 2008

Payan S., *Mesures à distance par sondage infrarouge*, PAMO/JSM, Lille, France, 7-10 juillet 2008

Payan S., C. Camy-Peyret, H. Oelhaf, M. Pirre, A. Engel, J. Kuttippurath, U. Cortesi, G. Redaelli, C. Vigouroux, M. Mahieu, D. Smale, N. Jones, C. Piccolo, V. Payne, .K. Grunow, A. Butz, *Validation and data characteristics of methane and nitrous oxide profiles observed by MIPAS and processed with Version 4.61 algorithm*, 13th International Workshop on Atmospheric Science from Space using Fourier Transform Spectrometry, Toulouse, Novembre 2007



Payan S., IASI-balloon in support to IASI calibration and geophysical validation, ACCENT Troposat 2 workshop on IR retrievals, 31 Novembre- 1 december, Créteil, France, 2006

Payan S., Atmospheric Chemistry., 5<sup>th</sup> Symposium on French Japanese cooperation in Space, June 15 to 16, Paris, France, 2005

Payan S., Mesures d'espèces atmosphériques dans l'infrarouge par des techniques embarquées., Réunion nationale sur « L'interface chimie-spectroscopie atmosphérique », Villeneuve d'Ascq, avril 2005

Payan S., Etat des lieux et perspectives du sondage de l'atmosphère terrestre par spectroscopie infrarouge, Journées de spectroscopie moléculaire, Dunkerque, France, 1-3 juin 2004

Payan S., C. Camy-Peyret, P. Jeseck, T. Hawat, S.A. Clough, and K.V. Chance, Preliminary modeling of balloon-borne high resolution transmission spectra in the molecular oxygen A-band. Link with ILAS retrievals. , 15th ILAS Science Team meeting, , Nara, Japan, 29-31 Mars 1999

Payan S. and C. Camy-Peyret, LPMA measurements of O<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>, NO<sub>2</sub>, HCl and HF during the ILAS balloon validation campaign from Kiruna : comparison with ILAS and analysis, The third

ADEOS symposium/workshop, Sendai, Japan, 26-30 January 1999

Payan S., C. Camy-Peyret, and P. Jeseck, *IMG instrument spectral response function and retrieval of CO and OCS*, 8th International Workshop on Atmospheric Science from Space using Fourier Transform Spectrometry, Toulouse, France, 16-18 November 1998

Payan P. and C. Camy-Peyret, ILAS related scientific activities at LPMA, The second ADEOS symposium/workshop, Yokohama, Japan, 10-14 March 1997

Payan S. and C. Camy-Peyret, *Retrieval of concentration profiles for the LPMA04 flight from Kiruna.*, "The partitioning of ClO<sub>y</sub> in the Stratosphere", CEC contract EV5V- CT93-0346, Paris, France, 27-29 February 1996

Payan S. and C. Camy-Peyret, *Retrieval of concentration profiles for the LPMA 01 flight from Aire-sur-l'Adour.*, "The partitioning of ClO<sub>y</sub> in the Stratosphere", CEC contract EV5V- CT93-0346, Blackeney, U.K., 23-26 May 1995

## 2.2.5 Communications présentées par d'autres scientifiques

Té Y., P. Jeseck, S. Payan, I. Pépin and C. Camy-Peyret, *The Fourier transform spectrometer of the QualAir platform*, "8<sup>th</sup> Atmospheric Spectroscopy Applications", 2008, Reims, France

Camy-Peyret C., S. Payan, Y. Té, P. Jeseck, J. Bureau, I. Pépin, D. Blumstein, B. Tournier, D. Coppens, *Validation of IASI Level-1 and Level-2 products using IASI-balloon*, IASI conference 13-16 Novembre 2007, Anglet, France

Payan S., *IASI-balloon in support to IASI calibration and geophysical validation*, ACCENT Troposat 2 workshop on IR retrievals, 31 Novembre- 1 december 2006, Créteil, France

Phulpin T., P.J Hebert, C. Camy-Peyret, S. Payan, C. Clerbaux, J., Hadji-Lazaro, P.F Coheur J.F Leon, L. Lavanant and P.F. Levelt, *SIFTI : a new generation FTIR spectrometer for the Tropospheric composition and Air Quality (TRAQ) mission*, TOVS conference , 4-10 October 2006, Maratea, Italy

Clerbaux C., S. Turquety, D. Hauglustaine, M. Beekmann, C. Camy-Peyret, S. Payan, J. Orphal, P.-F. Coheur, J.-F. Muller, M. De Mazière, P. Prunet, A. Klonecki, *French/Belgian scientific contribution to tropospheric studies using the MetOp sensors*, EPS/MetOp Research Announcement of Opportunity (RAO), ESRIN, 15-17 May 2006, Frascati, Italy

Camy-Peyret C., S. Payan, P. Prunet, E. Dufour, R. Brugge, A. O'Neill, J. Giroux, P. Lagueux, *A proposed algorithm for line-of-sight wind retrieval from MIPAS level 1 spectra.*, Atmospheric Science Conference – ESA ESRIN, 8-12 mai 2006, Frascati, Italy

Oelhaf H., A. Engel, H. Bönisch, Tanja Möbius, Johannes Laube, G.Wetzel, F. Friedl-Vallon, A. Kleinert, G. Maucher, K. Pfeilsticker, I. Levin, V. Catoire, M. Pirre, C. Camy-Peyret, S. Payan, T. Röckmann , P. Lämmerzahl, D. Worton, and W.T. Sturges, *First Results from the ESABC Tropical Large Balloon Campaign: An Overview*, SCOUT GA 20-23 March 2006, Jülich, Germany

Oelhaf H., A. Engel, H. Bönisch, Tanja Möbius, Johannes Laube, G.Wetzel, F. Friedl-Vallon, A. Kleinert, G. Maucher, K. Pfeilsticker, I. Levin, V. Catoire, M. Pirre, C. Camy-Peyret, S. Payan, T. Röckmann , P.Lämmerzahl, D. Worton, and W.T. Sturges, *First Results from the ESABC Tropical Large Balloon Campaign: An Overview*, SCOUT GA 20-23 March 2006, Jülich, Germany

Té Y., S. Payan, P. Jeseck, G. Dufour, I. Pépin, V. Ferreira, and C. Camy-Peyret, *Results obtained during recent flights of the LPMA balloon experiment and contribution to the Envisat validation*, 17th ESA Symposium on European Rocket and Balloon Programmes and Related

Research, 30 May- 2 June 2005, Sanderfjord, Norway

Dufour G., S. Payan, F. Lefèvre, and C. Camy-Peyret, *LPMA balloon measurement analysis and applications to chemical modeling and satellite validation*, 2004 Symposium on Chemical Physics, , 29-31 Octobre 2004, Waterloo, Canada

Bösch H., C. Camy-Peyret, M. Chipperfield, G. Dufour, M. Dorf, R. Fitzenberger, S. Payan, U. Platt, R. Ruhnke, F. Weidner, and K. Pfeilsticker, *Comparison of measured and modelling  $NO_x/NO_y$  partitioning in the high-latitude summer stratosphere*, Sixth Symposium of Stratospheric Ozone, September 2002, Göteborg, Sweden

Té Y., C. Camy-Peyret, P. Jeseck and S. Payan, *LPMA/IASI balloon : a new nadir-looking FTS for the preparation of the IASI Experiment*, Invited seminar in the Space Science and Engineering Center (SSEC), October 6<sup>th</sup> 2002, University of Wisconsin-Madison, USA.

Té Y., S. Payan, P. Jeseck and C. Camy-Peyret, *Sondage de la basse atmosphère par spectroscopie infrarouge : l'expérience LPMA/IASI ballon*, PAMO 2002, Journée de Spectroscopie Moléculaire, 1-4 Juillet 2002, Bourges, France

Camy-Peyret C., S. Payan, P. Jeseck, Y. Té, G. Dufour, and M. Eremenko, *Test of radiative transfer models from balloon spectra*, Advance Research Workshop of NATO, Weakly Interacting Molecular Pairs: Unconventional Absorbers of Radiation in the Atmosphere, May 2002, Fontevraud, France

Té Y., P. Jeseck, S. Payan and C. Camy-Peyret, *LPMA/IASI balloon : a new nadir-looking FTS for the preparation of the IASI Experiment*, 6<sup>th</sup> Workshop on Infrared Emission Measurements by FT-IR, February 6-8, 2002, Québec, Canada

Té Y., S. Payan, P. Jeseck et C. Camy-Peyret, *LPMA/IASI ballon : un sondeur troposphérique par visée au nadir*, Atelier Expérimentation et Instrumentation, 29-30 Janvier 2002, Toulouse, France

Jeseck P., Y. Té, S. Payan et C. Camy-Peyret, *Limb Profile Monitor of the Atmosphere : un spectromètre embarqué sous ballon stratosphérique*, Atelier Expérimentation et Instrumentation, 29-30 Janvier 2002, Toulouse, France

Camy-Peyret C., S. Payan, P. Jeseck, and Y.Té, *Validating Envisat atmospheric products using the balloon-borne instrument LPMA (Limb Profile Monitor of the Atmosphere*, Atmospheric Chemistry Validation of Envisat (ACVE,) May 16-18, ESA WPP-186, 2001, Noordwijk, The Netherlands

Camy-Peyret C., S. Payan, *IASI balloon: a new nadir-looking FTS for the preparation of IASI*, 10th

International Workshop on Atmospheric Science from Space using Fourier Transform Spectrometry, October 10-12, 2001, Ventura, California, USA

Camy-Peyret C., P. Jeseck, Y. Té, S. Payan and J. Evrard, *IASI balloon : a nadir looking Fourier transform spectrometer operating in thermal emission for atmospheric sounding*, ESA Publications, SP-471, 245-250, 2001, Biarritz, France

Té Y., C. Camy-Peyret, P. Jeseck et S. Payan, *Spectro-radiométrie infrarouge par transformée de Fourier sous ballon stratosphérique pour l'étude du système atmosphère/surface/nuage par visée au nadir*, Journées CNES Jeunes Chercheurs, Toulouse, 12-14 Juin 2001, Toulouse, France

Pfeilsticker K., H. Bösch, C. Camy-Peyret, M. Chipperfield, R. Fitzenberger, H. Harder, F. Lefèvre, S. Payan, and B.-M. Sinnhuber, *Testing the Nox/Noy ratio in the high latitude stratosphere by intercomparison of measurements with model calculations*, *Proceedings of the Quadrennial Ozone Symposium*, 587-588, NASDA Ed., 2000, Sapporo, Japan

Clerbaux C., J. Hadji-Lazaro, S. Payan, C. Camy Peyret, and J. Wang., *Intercomparison of inversion algorithms for the retrieval of CO from IMG/IASI spectra*, 8th International Workshop on Atmospheric Science from Space using Fourier Transform Spectrometry, 16-18 November 1998, Toulouse, France

Jeseck P., S. Payan, and C. Camy-Peyret, *Aerosol extinction coefficient at 8.5, 3.4 and 2.5  $\mu\text{m}$  in the altitude range 13-20 km from the LPMA instrument during the ILAS balloon validation campaign*, The third ADEOS symposium/workshop, 26-30 January 1998, Sendai, Japan

Jeseck P., C. Camy-Peyret, T. Hawat and S. Payan, *Detector nonlinearity correction scheme for the LPMA Balloon borne Fourier transform Spectrometer*, 7<sup>th</sup> International Workshop on atmospheric science from space using Fourier transform spectrometry, Allemagne 12-14 May 1997, Munich, Germany

Jeseck P., C. Camy-Peyret, T. Hawat and S. Payan, *The LPMA Balloon borne Fourier transform Spectrometer*, 3<sup>th</sup> workshop on infrared emission measurements by FT-IR, 7-9 February 1996, Québec, Canada

Jeseck P., S. Payan , C. Camy-Peyret and T. Hawat, *The new LPMA Balloon borne Fourier transform Spectrometer during the SESAME campaign, The partitioning of  $ClO_y$  in the Stratosphere"* CEC contract EV5V- CT93-0346, 23-26 May 1995, Blackeney, UK

## 2.2.6 Affiches

Oelhaf H., A. Engel, H. Bönisch, Tanja Möbius, Johannes Laube, G. Wetzel, F. Friedl-Vallon, A. Kleinert, G. Maucher, K. Pfeilsticker, I. Levin, V. Catoire, M. Pirre, C. Camy-Peyret, S. Payan, T. Röckmann, P. Lämmerzahl, D. Worton, and W.T. Sturges, *First Results from the ESABC Tropical Large Balloon Campaign: An Overview*, SCOUT GA 20-23 March, 2006, Jülich, Germany

Tran H., J.-M. Hartmann, C. Camy-Peyret, S. Payan, F. Hase, and T. Fouchet, Modeling N<sub>2</sub> and H<sub>2</sub> broadened CH<sub>4</sub> infrared absorption spectra. Line-mixing model and comparisons with laboratory and planetary measurements, The Nineteenth Colloquium on High Resolution Molecular Spectroscopy, 11-16 September, 2005, Salamanca, Spain

Tran H., J.-M. Hartmann, C. Camy-Peyret, S. Payan, F. Hase, and T. Fouchet, Modeling N<sub>2</sub> and H<sub>2</sub> broadened CH<sub>4</sub> infrared absorption spectra. Line-mixing model and comparisons with laboratory and planetary measurements, 7th Atmospheric Spectroscopy Applications (SAS), September 6 - 8, 2005, Reims, France

Brognez C., C. Tétard, B. Bonnel, J.-B. Renard, N. Huret, J.-P. Pommereau, F. Borch, F. Goutail, S. Payan, C. Camy-Peyret, A. Butz, D. Fussen, C. Bingen, F. Vanhellemont, P. Olamba, *Cross-comparisons of measurements from space-borne and balloon-borne instruments. Study of spectral aerosol extinctions*, NASA Solar Occultation Satellite Science Team Workshop (SOSST), 6-9 June 2005, Columbia, Maryland, USA

Dufour G., S. Payan, Y. Té, P. Jeseck, V. Ferreira, C. Camy-Peyret, M. Eremenko, A. Butz, K. Pfeilsticker, W. Gurlit, and K. Gerilowski, *Envisat validation results obtained with the LPMA and IASI-balloon FTIR*, 2<sup>nd</sup> Workshop on the Atmospheric Chemistry Validation of ENVISAT, 3-7 mai 2004, Frascati, Italy

Ferreira V., C. Camy-Peyret, and S. Payan, Inversion of NADIR looking spectra performed at the resolution of IASI-balloon (0.1cm<sup>-1</sup>) and of IASI-MetOp (0.5cm<sup>-1</sup>), Atmospheric Science from Space using Fourier Transform Spectrometry, 2003, Bad Wildbad, Germany

Dufour G., S. Payan, C. Camy-Peyret, F. Lefèvre, Y. Té, P. Jeseck, and I. Pépin, Comparaison entre les mesures du LPMA et les champs 3D de Reprobus en utilisant un modèle de boîte : dépendance des profils verticaux en fonction du temps et de l'espace et implications pour la modélisation des NO<sub>y</sub>, Colloque du PNCA, 22-25 Septembre 2003, St Jean de Luz, France

Huret N., G. Moreau, V. Catoire, M. Pirre, C. Camy-Peyret, J.B. Renard, G. Berthet, F. Goutail, J.P. Pommereau, M. Marchand ; S. Bekki, G. Dufour, S. Payan, F. Lefèvre, J. Ovarlez, and E. Rivière, *ECCOAS : Etude et Compréhension des Composés Azotés Stratosphériques*, Colloque du PNCA, 22-25 Septembre 2003, St Jean de Luz, France

Jégou, F., J. de La Noë, A. Drouin, P. Ricaud, J. Urban, N. Schneider, E. Le Flochmoën, E. Dupuy, L. El Amraoui, Y. Planchais, D.P. Murtagh, N. Lautié, P. Eriksson, C. Jimenez, S. Brohede, J. Stegman, E.J. Llewellyn, S. Petelina, D.A. Degenstein, R.L. Gattinger, N.D. Lloyd, C.S. Haley, C. von Savigny, I. McDade, F. Goutail, A. Bazureau, S. Godin-Beekmann, J.-P. Pommereau, F. Lefèvre, C. Camy-Peyret, S. Payan, P. Jeseck, G. Moreau, J.-B. Renard, C. Robert, V. Catoire, N. Huret, K. Strong, *Comparison of ozone profiles measured by the Odin satellite instruments and ground-based, airborne, satellite experiments and model computations*, 1<sup>st</sup> European Geosciences Union, General Assembly 2004, 25-30 avril 2004, Nice France

Dufour G., S. Payan, C. Camy-Peyret, F. Lefèvre, Y. Té, P. Jeseck, and I. Pépin, Comparison between LPMA measurements and 3D Reprobus modelling using a box model : sensitivity of vertical profiles to time, latitude, longitude and implications on NO<sub>y</sub> modelling., 1<sup>st</sup> European Geosciences Union, General Assembly 2004, 25-30 avril 2004, Nice France

Butz A., H. Bösch, C. Camy-Peyret, M. Dorf, G. Dufour, S. Payan, F. Weidner, and K. Pfeilsticker, Intercomparison of NO<sub>2</sub> slant columns densities and vertical profiles inferred from balloon borne measurements of solar absorption spectra in the IR and UV/VIS spectral region., 1<sup>st</sup> European Geosciences Union, General Assembly 2004, 25-30 avril 2004, Nice France

Bazureau A., F. Goutail, J.P. Pommereau., C. Camy-Peyret, P. Jeseck, S. Payan, G. Dufour, G. Moreau, C. Robert, M. Pirre, F. Goffinon-Taupin, P. Ricaud, J. De La Noë, R. Ramaroson, and R. Bevilacqua, *ODIN ozone and nitrogen dioxide validation with balloon (BALODIN) and satellite (POAM III) instruments : comparisons and interpretation*. Air pollution research report 79, Report EUR 20650EN, Polar stratospheric ozone 2002 2003, 47-40, Sixth Symposium of Stratospheric Ozone, September 2002, Göteborg., Sweden

Bösch H., C. Camy-Peyret, M. Chipperfield, G. Dufour, M. Dorf, R. Fitzenberger, S. Payan, U. Platt, R. Ruhnke, F. Weidner, and K. Pfeilsticker, *Comparison of measured and modelling NO<sub>x</sub>/NO<sub>y</sub> partitioning in the high-latitude summer stratosphere*,

Air pollution research report 79, Report EUR 20650EN, Polar stratospheric ozone 2002 2003, 63-66, Sixth Symposium of Stratospheric Ozone, September 2002, Göteborg, Sueden

Eremenko M., S. Payan, Y. Té, G. Dufour, V. Ferreira, P. Jeseck, and C. Camy-Peyret, Look up table and interpolation methods for radiative transfer calculations in the infrared application to balloon and satellite spectra, Advande Research Workshop of NATO, Weakly Interacting Molecular Pairs: Unconventional Absorbers of Radiation in the Atmosphere, May 2002, Fontevraud, France

Té Y., C. Camy-Peyret, P. Jeseck et S. Payan, Spectro-radiométrie infrarouge par transformée de Fourier sous ballon stratosphérique pour l'étude du système atmosphère/surface/nuage par visée au nadir, Journées CNES Jeunes Chercheurs, 12-14 Juin 2001, Toulouse, France

Eremenko M.N., S. Payan, C. Camy-Peyret, M.Y. Kataev, A.A. Mitsel, *Retrieval of trace species profiles using balloon-borne occultation spectra*, 8<sup>th</sup> Joint International Symposium, Atmospheric and ocean optics. Atmospheric physics, , Poster A2-26, p. 113, juin 25-29-2001, Irkutsk, Russie

Eremenko M.N., S. Payan, C. Camy-Peyret, Forward model and retrieval algorithm dedicated to nadir and limb viewing measurements. Comparison with the line-by-line LPMA algorithm, International Conference on modelling, databases and information

systems for atmospheric sciences, Poster 4.3, p. 33, juin 25-29-2001, Irkutsk, Russie

Moreau G., M. Pirre, F.G. Taupin, C. Robert, C. Camy-Peyret, S. Payan and R. Ramaroson, *Results and goals of SPIRALE after the first flight from Gap in June 1999*, Proceedings of the 15<sup>th</sup> ESA symposium, on European Rocket and Balloon Programmes and Related Research, May 2001, Biarritz, France

Jeseck P., C. Camy-Peyret, S. Payan, and Y. Te, LPMA/IASI balloon: a project to record thermal infrared emission spectra with a BOMEM Fourier transform spectrometer looking down from a stratospheric gondola, 8th International Workshop on Atmospheric Science from Space using Fourier Transform Spectrometry, 16-18 November, 1998, Toulouse, France

Payan S., and C. Camy-Peyret, , *Retrieval of vertical concentration profiles of stratospheric constituents from balloon-borne Fourier transform spectroscopy*, Quatorzième colloque sur la spectroscopie moléculaire à haute résolution, 11-15 septembre 1995, Dijon, France

Payan S., S. Delavoie, J.-M. Chevalier, C. Camy-Peyret, P. Jeseck, T. Hawat, and G. Durry, *Remote Sensing of stratospheric constituents from balloon-borne Fourier transform spectroscopy*, European Conference for PhD students in physical sciences., 1-5 juillet 1996, Bordeaux, France

### 2.2.7 Publications internes au CNES et au CEA/DAM

Camy-Peyret C., and S. Payan, A parametric representation of the instrument response function of IASI, 10 janvier 1997

Payan S., CEA/CESTA/DEV/SRIA, SD 15, 10 décembre 1997

Payan S., S. Delavoie, CEA/CESTA/DEV/SRIA, DR 2, 20 juillet 1996

Payan S., J.-M. Flaud, CEA/CESTA/DAA/SYS, DR 246, 4 décembre 1996

## 2.3 Encadrement, expertise et animation de la recherche

### 2.3.1 Expertise et animation de la recherche

- Coresponsable de l'équipe Atmosphère au LPMAA
- Membre de la commission de spécialiste 30<sup>e</sup> section de l'UPMC
- Membre du conseil de laboratoire du LPMA puis du bureau du LPMAA
- Membre du conseil d'UFR de physique de l'UPMC
- Membre du comité des utilisateurs du pôle Éther
- Animation de la Fête de la science au LPMAA de 2002 à 2006

### 2.3.2 Encadrement de stage de 3<sup>e</sup> cycle et de master

1999 Maxime Eremenko (université de Tomsk)

2004 Michele Selvaggi (UPMC-MIP)

|      |                              |
|------|------------------------------|
| 2007 | Baptiste Joalland (UPMC-SRM) |
| 2008 | Amel Ahmedou (Paris 7-OACT)  |

### **2.3.3 Encadrement doctoral**

|             |  |
|-------------|--|
| 1999-2001   | Yao Té (université Paris 6)                              |
| 2000-2003   | Maxime Eremneko (cotutelle universités Paris 6 et Tomsk) |
| 2001-2004   | Gaëlle Dufour (université Paris 6)                       |
| 2001-2004   | Victor Ferreira (université Paris 6)                     |
| 2002-2005   | André Butz (cotutelle université Paris 6 et Heidelberg)  |
| 2005-2009   | Jérôme Bureau (université Paris 6)                       |
| Depuis 2008 | Marc Pondrom (université Paris 6)                        |

### **2.3.4 Encadrement postdoctoral**

|      |                 |
|------|-----------------|
| 2003 | Pascale Chelin  |
| 2004 | Emmanuel Dufour |
| 2007 | Ha Tran         |

## **2.4 Responsabilités collectives**

|             |   |
|-------------|---|
| Depuis 2009 | Directeur adjoint de la licence de physique de l'UPMC   |
| Depuis 2009 | Membre élu du conseil des enseignements de la faculté de physique de l'UPMC                                     |
| Depuis 2007 | Membre du projet Cap en fac de l'UPMC   |
| Depuis 2006 | Président du Chœur interuniversitaire de Paris  |
| Depuis 2006 | Membre élu du département de la licence de physique   |
| Depuis 2004 | Membre du comité des utilisateurs du pôle de compétences thématique « chimie atmosphérique » Éther (CNES, INSU) |
| Depuis 2004 | Responsable de l'UE LP221 : Surveillance du climat  |
| Depuis 2004 | Responsable de l'UE LP211 : Sciences de l'atmosphère  |
| Depuis 2004 | Responsable de l'UE LP365B : projet expérimental 1 du FIP   |
| Depuis 2004 | Membre de l'EFU de la licence de sciences et technologie mention physique                                       |
| Depuis 2004 | Responsable de l'orientation et de la mobilité des étudiants vers l'étranger                                    |
| Depuis 2004 | Membre de l'EFU du Master de Sciences et Technologie mention Physique   |
| Depuis 2004 | Responsable des sites Web des deux années du master de physique   |
| 2005-2009   | Membre du conseil de l'UFR 925 « Physique fondamentale et appliquée » de l'université Pierre et Marie Curie     |

|             |  |
|-------------|--|
| 2004-2007   | Membre titulaire de la commission de spécialiste en 30 <sup>e</sup> section à l'université Pierre et Marie Curie   |
| 2002-2004   | Membre suppléant de la commission de spécialiste en 30 <sup>e</sup> section à l'université Pierre et Marie Curie   |
| 2001-2005   | Membre du conseil des enseignements de l'UFR925  |
| Depuis 1999 | Responsable informatique du LPMAA : administration système, administration réseau, webmaster, administration du serveur mail                             |
| 1999-2008   | Membre du bureau du Laboratoire de physique moléculaire et applications puis du Laboratoire de physique moléculaire pour l'atmosphère et l'astrophysique |
| 1997-1998   | Membre élu du conseil de laboratoire (Laboratoire de physique moléculaire et applications)   |
| 1991-1993   | Membre élu du conseil de gestion de la faculté des sciences de Reims   |
| 1989-1991   | Membre élu du conseil d'administration de l'université de Reims-Champagne-Ardenne  |



## 3 Les expériences embarquées sous ballon

### 3.1 Contexte

La stratosphère n'est pas accessible de façon directe par les satellites, et elle est traversée trop rapidement par les fusées-sonde, alors que seule la partie la plus basse de la stratosphère peut être explorée à partir d'avion. Les ballons sont donc l'unique moyen d'évoluer durablement dans la stratosphère (jusqu'à 45 km d'altitude). Le ballon occupe une place unique parmi les outils de la recherche scientifique, notamment grâce au Centre National d'Etudes Spatiales (CNES) qui a développé une forte activité ballon. Depuis 40 ans, le CNES maîtrise toute la chaîne des activités ballon et ses compétences en matière de conception, fabrication, lâcher et exploitation d'aérostats, sont mondialement reconnues.

Historiquement, les ballons sont utilisés pour l'étude de l'atmosphère et l'astronomie, mais le développement des activités spatiales a conduit à en élargir le champ d'application. Aujourd'hui, de nombreux vols de ballons stratosphériques permettent de démontrer la faisabilité ou le potentiel des instruments destinés à être embarqués à bord de satellites. Une fois l'instrument en orbite, le ballon est également utilisé pour contrôler la qualité des mesures spatiales (c'est la validation).

La découverte d'une diminution massive de l'ozone stratosphérique en Antarctique au milieu des années 80 a provoqué une mobilisation sans précédent de la communauté scientifique pour tenter de comprendre et quantifier les mécanismes essentiels qui conduisent à la destruction de l'ozone en région polaire. C'est dans ce contexte que Claude Camy-Peyret a initié au sein du Laboratoire de Physique Moléculaire et Applications un programme de recherche visant à développer une expérience de sondage à distance embarqué sous ballon stratosphérique. J'ai rejoint son équipe pendant ma thèse.

Notre équipe met en œuvre depuis plusieurs années une expérience de spectrométrie à transformation de Fourier (TF) sous ballon stratosphérique. Ce travail se fait en étroite coopération avec l'équipe « Nacelles pointées » du CNES. L'équipe a donc aujourd'hui un grand savoir-faire pour opérer ce type d'instrumentation à partir de sites de lancements éloignés et dans des conditions difficiles d'environnement (Teresina au Brésil, Kiruna en Arctique).

Deux configurations de l'instrument ont été utilisées<sup>1</sup> et seront décrites dans ce chapitre:

- La configuration LPMA (*Limb Profile Monitor of the Atmosphere*) en absorption du rayonnement solaire émis dans l'infrarouge pour la détermination des profils verticaux des constituants stratosphériques

---

<sup>1</sup> A l'heure où j'écris ce manuscrit, une troisième configuration, SWIR-ballon vient d'être testée. Elle est décrite dans la partie perspective du manuscrit.



- La configuration IASI-ballon par visée au nadir en émission thermique pour le sondage troposphérique.

L'expérience LPMA a permis d'apporter une contribution importante tant du point de vue de la physique de la mesure, que de la physico-chimie stratosphérique. Chronologiquement, la configuration IASI-ballon a été développée dans une seconde phase pour la préparation scientifique des missions spatiales visant à sonder la basse atmosphère par visée vers le bas et pour étendre notre expertise au sondage troposphérique en lien avec les problèmes de pollution ou de réchauffement climatique. En particulier notre travail a permis de préparer l'expérience IASI à bord du satellite MetOp [Siméoni and Singer ; 1997] et de contribuer à la validation de ce sondeur opérationnel.

Je tiens à signaler ici que je ne participe pas directement au développement instrumental et aux mesures sur le terrain. Ma contribution se fait en amont, lors de la définition du projet qui va conduire à une campagne ou au développement d'une nouvelle expérience, puis en aval via l'analyse des mesures. Je tiens donc à souligner le travail expérimental et d'analyse des mesures remarquable de Claude Camy-Peyret, Pascal Jeseck, Isabelle Pépin et Yao Té. Leur contribution à chaque phase des projets correspondants à nos mesures embarqués est essentielle et porte notamment sur la calibration des spectres LPMA et IASI-ballon de niveau 1, l'analyse des spectres de cuve durant les campagnes, ou encore la participation à l'inversion des spectres.

Enfin, pour plus de détail sur les techniques de sondage de l'atmosphère, le lecteur pourra se reporter aux deux publications suivantes : [Camy-Peyret *et al.*, 2001a; Payan *et al.*, 2005].

## 3.2 L'expérience LPMA

Une partie conséquente de mon activité de recherche a été consacrée à l'analyse des mesures réalisées à l'aide d'un spectromètre infrarouge à transformation de Fourier (FTIR = *Fourier Transform Infrared* en anglais) embarqué sous ballon stratosphérique. Cet instrument est dédié à l'étude de la composition chimique de l'atmosphère moyenne (haute troposphère-stratosphère). Ces mesures conjuguées à des mesures d'autres instruments et à des modèles participent à l'amélioration de la compréhension de la physico-chimie atmosphérique et plus généralement à une meilleure compréhension des changements atmosphériques naturels et anthropogéniques. Les principales espèces moléculaires minoritaires, mesurées à l'aide de l'instrument LPMA sont N<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>, HF, HCl, O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, NO, CO, HNO<sub>3</sub>, ClONO<sub>2</sub> et CF<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> (CFC-12).

### 3.2.1 L'expérience.

L'expérience embarquée sous ballon stratosphérique « *Limb Profile Monitor of the Atmosphere* » [Camy-Peyret, 1995] consiste en un spectromètre de Fourier de type Bomem DA2 de 50 cm de différence de marche maximum (soit une résolution spectrale apodisée de 0.020 cm<sup>-1</sup>). Il a été développé et il est mis en œuvre avant pendant et après les campagnes sur le terrain par Claude Camy-Peyret, Pascal Jeseck, Isabelle Pépin et Yao Té : ils travaillent à la préparation l'instrument, l'acquisition des données et les premières analyses de ces données.

L'instrument travaille en absorption en utilisant le soleil comme source et le rayonnement solaire après traversée de l'atmosphère est injecté dans l'interféromètre sous forme d'un faisceau parallèle grâce à un héliostat (asservi sur le soleil) utilisant des miroirs plans [Hawat *et al.*, 1995 ; 1996]. Les spectres atmosphériques mesurés par l'expérience LPMA sont des spectres d'absorption obtenus par occultation solaire (coucher et lever de soleil). L'appareil vise le soleil, utilisé comme source naturelle de rayonnement (cf. Figure 1). Le ballon et le soleil n'étant pas fixes l'un par rapport à l'autre, il est nécessaire de coupler

l'interféromètre décrit ci-dessus à un système permettant d'asservir la direction de la visée en direction du soleil. Ce système est composé de deux éléments : un système de pointage primaire opéré par l'équipe « Nacelles pointées » du CNES permettant de maintenir la nacelle alignée avec le soleil et un héliostat (pointeur solaire) qui permet de « suivre » le soleil et d'envoyer le rayonnement reçu vers le spectromètre parallèlement à son axe optique. Une fois la nacelle stabilisée en azimut, l'héliostat a également un rôle de recherche du soleil ; pour cela un balayage en azimut et en élévation est réalisé. Le champ de vue de l'instrument est approximativement de plus ou moins 30° en azimut et de -10° à +35° en élévation.

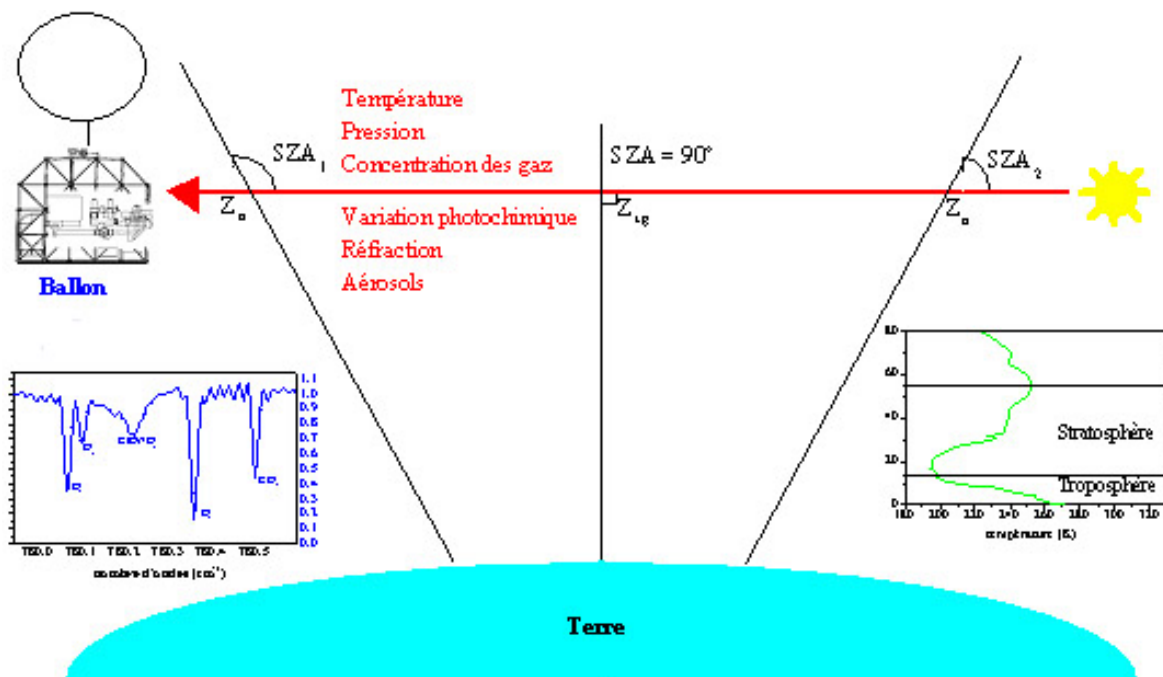


Figure 1. Schéma de principe du sondage par occultation solaire sous ballon stratosphérique.

L'instrument dispose de 2 canaux optiques (séparés à la sortie de l'interféromètre par une lame dichroïque) et permet l'acquisition simultanée de 2 interférogrammes avec 2 détecteurs appropriés au domaine spectral que l'on souhaite couvrir. Pour optimiser le débit de télémessure disponible et transmettre depuis le ballon les interférogrammes enregistrés jusqu'au sol, on réalise à bord (avec un ordinateur embarqué) un filtrage numérique en temps réel qui permet d'extraire sur chaque voie l'information utile dans 2 bandes spectrales. En fait pour bien rejeter le bruit hors bande et éviter au maximum les effets de non-linéarité [Jeseck *et al.*, 1998], on couple le filtrage numérique à un filtre optique à double bande passante isolant les bandes spectrales souhaitées. On couvre ainsi au maximum 4 régions spectrales (2 bandes  $\times$  2 voies optiques).

L'expérience *LPMA* a montré au cours de ces dernières années, avec une vingtaine de vols réussis, un potentiel de mesure de plus en plus large grâce à des améliorations continues du spectromètre de Fourier embarqué sous ballon [Camy-Peyret *et al.*, 2005]. L'équipe a participé depuis deux ans à la validation de plusieurs expériences satellitaires. Il s'agit en particulier de l'expérience franco-suédoise *ODIN*, et des expériences européennes embarquées sur la plateforme *ENVISAT* (instruments *MIPAS*, *GOMOS* et *Schiamachy*) [Té *et al.*, 2005], ou encore de l'expérience spatiale japonaise *ILAS* et *ILAS-II* (cf. section 4.2), ou plus récemment de l'expérience spatiale canadienne *ACE* [Bernath *et al.*, 2005].

Chacun des vols ballon est également l'occasion de réaliser des projets communs avec d'autres laboratoires. Compte-tenu du coût élevé d'un vol, il est intéressant de faire voler ensemble plusieurs instruments. Mais en dehors des aspects financiers, les mesures

simultanées de plusieurs instruments permettent d'atteindre des objectifs scientifiques essentiels : intercomparaison des mesures, mesures complémentaires d'un grand nombre d'espèces permettant de contraindre les modèles de chimie, développement instrumental, .... Certains points sont décrits plus en détail dans ce manuscrit. Plus concrètement une nouvelle nacelle agrandie a permis d'embarquer simultanément l'expérience allemande DOAS et mini DOAS (IUP, université de Heidelberg) [Ferlemann *et al.*, 1998 ; Ferlemann *et al.*, 2000], l'expérience américaine CAESR de l'université de Denver [Williams *et al.*, 1996 ; Murcay *et al.*, 1994] et l'expérience italienne REFIR de l'IFAC à Florence [Palchetti *et al.*, 2006]

L'expérience LPMA a plusieurs fois été couplée avec le spectromètre UV/vis DOAS de l'université de Heidelberg. Les deux instruments utilisent le même héliostat pour pointer le soleil. Le rayonnement solaire est collecté par l'héliostat, un faisceau parallèle en ressort et est directement envoyé vers l'interféromètre alors que le spectromètre DOAS est alimenté via des fibres optiques prélevant une petite portion du faisceau sortant de l'héliostat (en bord de faisceau pour ne pas vignetter la partie utile pour l'interféromètre LPMA, Figure 2). Les deux instruments ont donc la même géométrie de visée et leurs produits géophysiques (en terme de colonnes ou de profils de constituants) sont directement comparables.

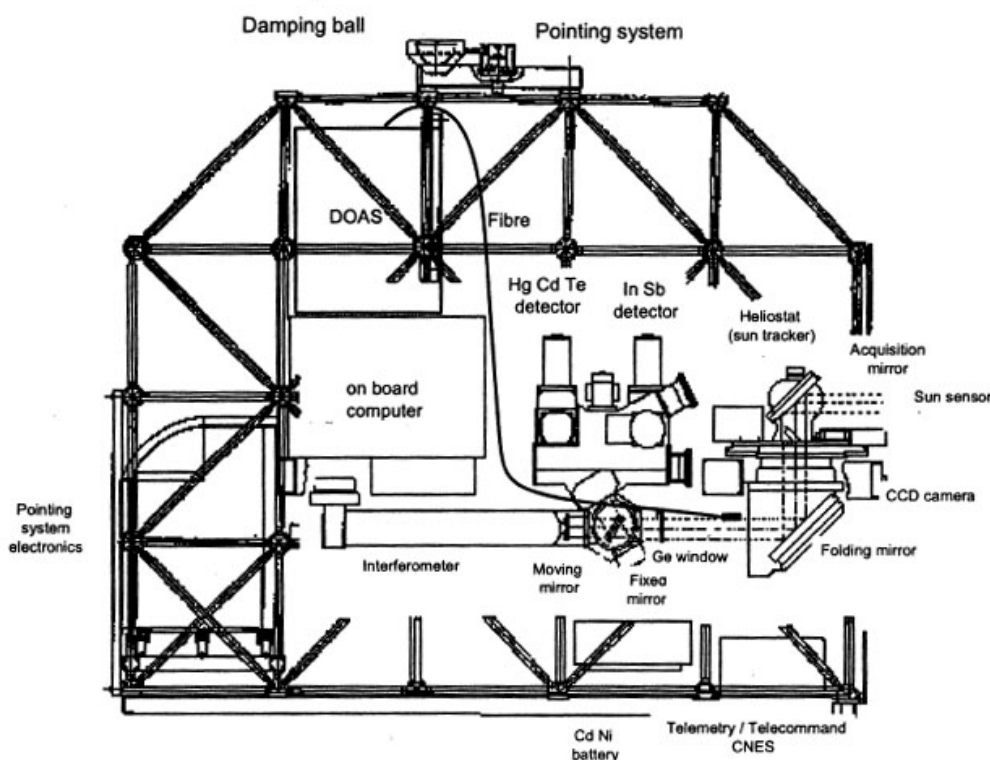


Figure 2. Schéma des instruments LPMA et DOAS dans la nacelle.

En pratique, au fil des ans, des moyens humains et financiers, et donc des projets, l'instrument a été utilisé dans plusieurs configurations optiques :

- Une configuration « infrarouge moyen » ou LWIR avec un détecteur HgCdTe pour le domaine  $700 - 2000 \text{ cm}^{-1}$  et un détecteur InSb pour le domaine  $1850-4300 \text{ cm}^{-1}$  et les filtres optiques appropriés pour isoler 2 régions dans chaque domaine. Les 2 détecteurs sont refroidis à l'azote liquide dans des cryostats pressurisés.

- Une configuration « infrarouge proche » ou NIR avec des photodiodes au silicium avec simplement un filtre optique par voie pour couvrir les régions de l'infrarouge « photographique » vers 765 nm (bande A de O<sub>2</sub>) et 920 nm (bandes de H<sub>2</sub>O).
- Une configuration « infrarouge courte longueur d'onde » avec deux détecteurs InSb qui permettent de couvrir les domaines 2050 à 2220 cm<sup>-1</sup>, 2700 à 3150 cm<sup>-1</sup>, 4220 à 4440 cm<sup>-1</sup>, et 4770 à 5320 cm<sup>-1</sup>. Les spectres correspondant permettent par exemple de couvrir des signatures spectrales de CO, de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub>.

L'instrument avait été initialement optimisé pour la mesure simultanée des 2 réservoirs du chlore stratosphérique (ClONO<sub>2</sub> mesurable avec le détecteur HgCdTe vers 780 cm<sup>-1</sup>; HCl mesurable avec le détecteur InSb vers 2925 cm<sup>-1</sup>). Les nouvelles configurations utilisables permettent de couvrir les signatures spectrales d'autres espèces stratosphériques intéressant la chimie de l'ozone.

Les Figure 3 et Figure 4 montrent deux exemples des domaines spectraux couverts par les détecteurs MCT et InSb pour une élévation solaire élevée et une élévation solaire faible ainsi que les principales espèces présentes dans ces spectres.

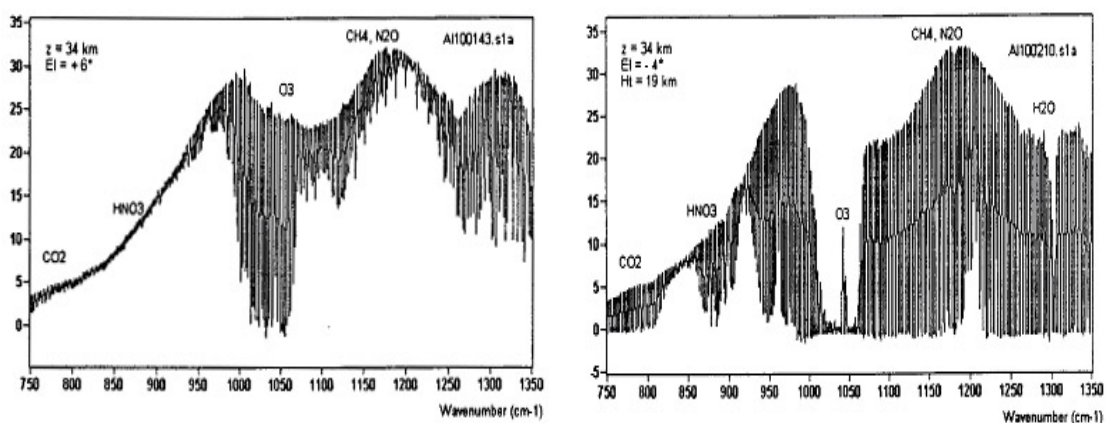


Figure 3. Exemple d'un spectre atmosphérique enregistré avec le détecteur MCT pour un soleil haut (à gauche) et pour un soleil bas (à droite).

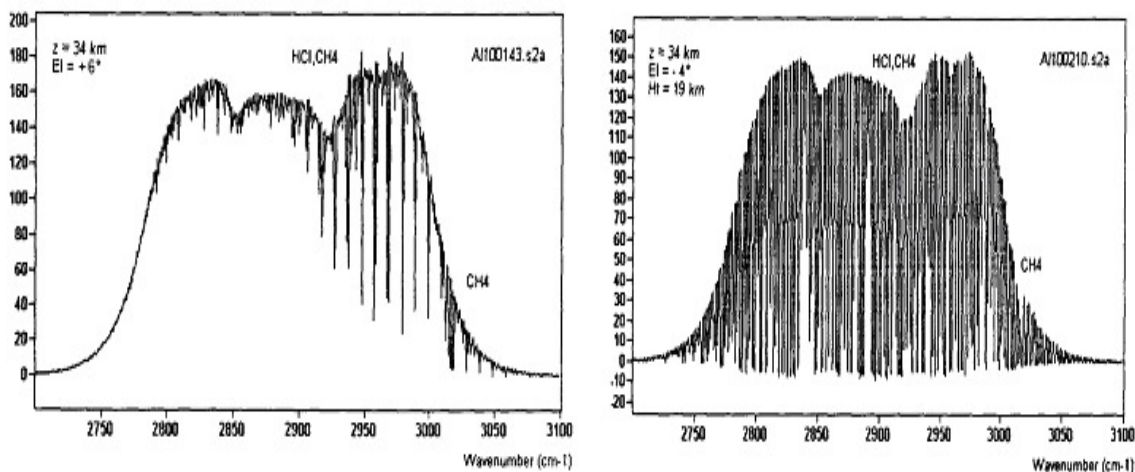


Figure 4. Exemple d'un spectre atmosphérique enregistré avec le détecteur InSb pour un soleil haut (à gauche) et pour un soleil bas (à droite).

### 3.2.2 Les vols réalisés

Le Tableau 1 donne une liste des vols réalisés depuis 2001. Pour chacun des vols nous indiquons quelques informations qui doivent permettre au lecteur d'avoir un aperçu des objectifs techniques ou scientifiques.

Tableau 1. Les vols de l'expérience LPMA

| Vol    | Date                     | Lieu              |      |   |
|--------|--------------------------|-------------------|------|---|
| LPMA17 | 21/08/2001<br>22/08/2001 | Kiruna<br>(suède) | LWIR | Campagne Ballodin consacré à la validation de l'instrument SMR sur la plateforme spatiale ODIN  |
| LPMA18 | 18/08/2002<br>19/08/2002 | Kiruna<br>(suède) | NIR  | validation de GOMOS embarqué sur la plateforme ENVISAT avec comme objectif la couverture de la bande A de l'oxygène moléculaire entre 12700 et 13400 $\text{cm}^{-1}$ , ainsi que de celle de la vapeur d'eau entre 10300 et 11000 $\text{cm}^{-1}$ . Une nouvelle CCD de contrôle fournissant une image du disque solaire a également été utilisée pour permettre des mesures photométriques. Il s'agissait d'acquérir des données pour améliorer les réglages de l'héliostat et du spectromètre.  |
| LPMA19 | 4/3/2003                 | Kiruna<br>(Suède) | LWIR | Validation de l'instrument MIPAS embarqué sur ENVISAT. Un nouveau filtre pour le détecteur MCT a été utilisé afin d'améliorer la transmission vers 780 $\text{cm}^{-1}$ . L'enregistrement au sol de spectres de cuve avant le vol permet maintenant de caractériser et modéliser finement la fonction d'appareil. Une nouvelle nacelle agrandie a permis d'embarquer simultanément l'expérience allemande DOAS (et mini DOAS) et l'expérience américaine CAESR de l'université de Denver.  |
| LPMA20 | 23/03/2003               | Kiruna<br>(Suède) | SWIR | Validation de SCIAMACHY (ENVISAT). L'objectif était ici de couvrir les domaines 2050 à 2220 $\text{cm}^{-1}$ , 2700 à 3150 $\text{cm}^{-1}$ , 4220 à 4440 $\text{cm}^{-1}$ (bande 8 de SCIAMACHY), et 4770 à 5320 $\text{cm}^{-1}$ (bande 7 de SCIAMACHY). De nouveau, des spectres de cuve ont été enregistrés avant vol pour déterminer la fonction d'appareil et contrôler les réglages de l'instrument (spectres de cuve de OCS, CO et CO <sub>2</sub> ). Les spectres enregistrés ont permis d'inverser le profil vertical de CO. De plus, lors de la préparation du vol, l'instrument LPMA a été calibré avec la source de Brême pour la validation des produits SCIAMACHY de niveau 1. Comme pour le vol précédent, la nacelle agrandie a permis d'embarquer simultanément l'expérience allemande DOAS (et mini DOAS) et l'expérience américaine CAESR de l'université de Denver |
| LPMA21 | 09/10/2003               | Aire-sur-l'Adour  | SWIR | validation de SCIAMACHY (ENVISAT) : cf. Vol LPMA20.   |

|        |            |                |      |   |
|--------|------------|----------------|------|---|
| LPMA22 | 24/03/2004 | Kiruna (Suède) | LWIR | Validation de l'instrument MIPAS embarqué sur ENVISAT. L'équipe a procédé à l'intégration d'un petit spectromètre à réseau (730-780 nm) permettant de couvrir la bande A de l'oxygène moléculaire. Les spectres correspondants (acquis en visée directe du soleil par fibre optique au travers de l'héliostat) nous permettent d'améliorer la détermination de la géométrie et de la hauteur tangente des lignes de visées. La nacelle a également embarqué simultanément l'expérience allemande DOAS et mini DOAS. |
| LPMA23 | 17/06/2005 | Teresina       | SWIR | Validation de SCIAMACHY (ENVISAT). C'est le premier vol en région tropicale réalisé avec succès par l'équipe. Outre l'objectif principal du vol (validation satellitale) l'utilisation des mesures a permis l'étude des oxydes d'azote dans l'UTLS tropicale. Comme pour de précédents vols, la nacelle a accueilli l'expérience allemande DOAS et mini-DOAS. Le petit spectromètre à réseau (730-780 nm) permettant de couvrir la bande A de l'oxygène moléculaire a également été embarqué.                       |
| LPMA24 | 27/06/2008 | Teresina       | LWIR | Validation de MIPAS (ENVISAT). Premières mesures LPMA aux tropiques avec un vol long ayant permis de faire des mesures au lever et au coucher du soleil.  |
| LPMA25 | 12/09/2009 | Kiruna         | LWIR | Campagne StraPolÉté : étude de la stratosphère polaire en été.  |

### 3.2.3 Résultats significatifs

Les principaux résultats consistent en un ensemble très complet de spectres de l'atmosphère terrestre. Les améliorations successives réalisées par l'équipe expérimentale ont permis, au cours des années, d'améliorer la qualité de ces spectres (bruit radiométrique, fonction d'appareil, qualité de la visée, ...) mais également de repousser les limites de l'instrument (domaines spectraux couverts, mesures du spectre de la bande A de l'oxygène moléculaire, ...) afin de permettre la mesure d'espèces, ou encore de participer à l'amélioration des codes de transfert radiatif (bande A de l'oxygène moléculaire), de la spectroscopie de certaines espèces (interférences entre raies). L'objectif premier reste bien évidemment la mesure de constituants minoritaires de l'atmosphère terrestre et la compréhension de leur évolution physico-chimique.

Pour illustrer la richesse des spectres obtenus par l'équipe Atmosphère, je présente dans la Figure 5 une micro-fenêtre vers  $2927 \text{ cm}^{-1}$  pour une série de spectres caractérisés par des visées et des altitudes moyennes différentes. On pourra observer par exemple les raies de  $\text{CH}_4$  larges et très absorbées (saturées) pour les visées les plus basses, et plus étroites et moins absorbées pour les altitudes élevées. Pour plus de détail sur les résultats de l'expérience LPMA, le lecteur pourra se reporter aux thèses consacrées aux mesures et analyses de l'expérience LPMA [Jeseck, 1996 ; Payan, 1996 ; Eremenko, 2003 ; Dufour, 2004 ; Butz, 2006].

Parmi les résultats importants, on peut citer la contribution de l'expérience LPMA à une meilleure compréhension de la chimie des espèces azotées dans la stratosphère par la mesure simultanée des espèces NO, NO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub> et ClONO<sub>2</sub> ainsi que des espèces chlorées [Butz *et al.*, 2007]. Elle a aussi permis une participation active à la validation des instruments atmosphériques du satellite Envisat de l'ESA [Té, 2005] en particulier MIPAS [Payan *et al.*, 2007] pour CH<sub>4</sub> ainsi que SCIAMACHY pour O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub> et BrO [Dorf *et al.*, 2006a] et la calibration radiométrique [Gurlit *et al.*, 2005]. L'utilisation conjointe des résultats de l'expérience LPMA (spectromètre TF dans l'infrarouge) et de l'expérience DOAS (spectromètre à réseau UV-vis de l'Université de Heidelberg) utilisant le même héliostat donc le même trajet atmosphérique a conduit à plusieurs résultats intéressants sur la chimie du chlore ou du brome dans la stratosphère [Wiedener *et al.*, 2005, Dorf *et al.*, 2006b]. L'expérience LPMA a aussi été utilisée pour la validation des profils stratosphériques de N<sub>2</sub>O obtenus par l'instrument SMR à bord du satellite Odin [Jégou *et al.*, 2004].

La plupart des résultats tirées des mesures LPMA sont présentées dans le chapitre 6 (physico-chimie) et le chapitre 7 (transfert radiatif).

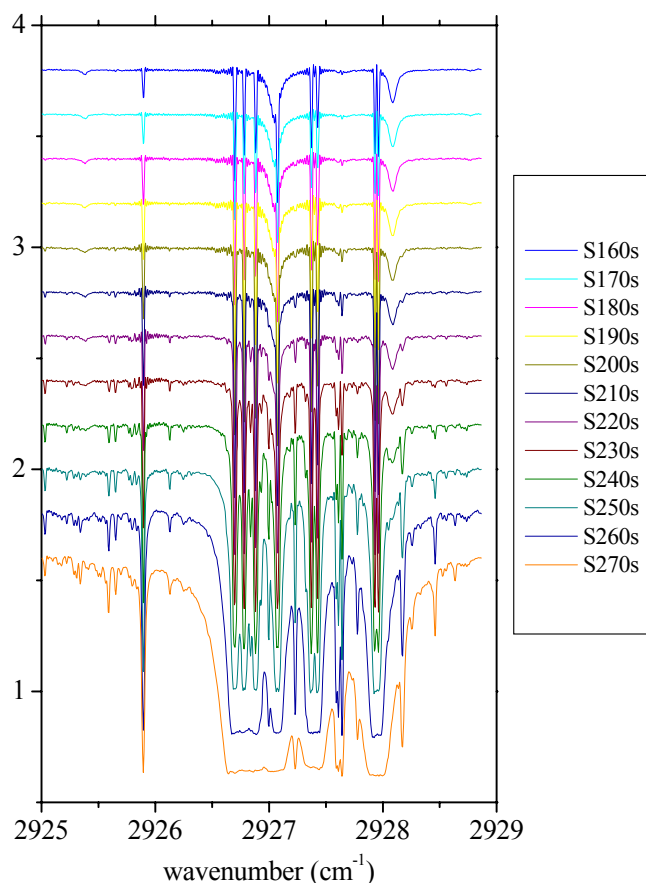


Figure 5. Exemple d'une série de spectres enregistré pendant le vol LPMA17. Seule la fenêtre autour de la raie de HCl à 2925.6 cm<sup>-1</sup> est représenté (un spectre sur 10).

### 3.3 Expérience embarquée IASI-ballon

Le sondage au nadir depuis l'espace en utilisant la spectroscopie par transformation de Fourier infrarouge (FTIR) [Camy-Peyret *et al.*, 2001a ; Payan *et al.*, 2005] est actuellement une technique irremplaçable à la fois pour sa couverture globale et pour sa relativement bonne

résolution verticale dans la troposphère et la basse stratosphère. Le sondeur *Infrared Atmospheric Sounding Interferometer* (IASI) [Siméoni and Singer ; 1997] a été développé par le CNES pour opérer sous la responsabilité de Eumetsat à bord de la série MetOp des satellites météorologiques européens en orbite polaire. Le premier lancement a été réalisé avec succès en octobre 2006.

### 3.3.1 L'expérience

En parallèle au projet international IASI, nous avons développé une expérience embarquée sous ballon dite IASI-ballon [Té, 2001 ; Té *et al.* 2002] avec le soutien du CNES, cet effort instrumental ayant contribué à la préparation scientifique des missions spatiales visant à sonder la basse atmosphère par visée vers le bas (IASI, AIRS, TRAQ, ...). Plus particulièrement, dans le cadre de la mission IASI [Té *et al.*, 2007] :

- En validant les algorithmes de traitement des interférogrammes (non-linéarité, calibration radiométrique, ...) développés par le CNES
- En fournissant des spectres du système atmosphère/nuage/surface permettant de tester les algorithmes d'inversion développés en France et en Europe pour EUMETSAT et le CNES
- En permettant de diagnostiquer suffisamment à l'avance les problèmes spectroscopiques qui subsistent dans la modélisation des spectres (la résolution spectrale de IASI ballon est de  $0.1 \text{ cm}^{-1}$ , elle est meilleure que celle de IASI qui est de  $0.5 \text{ cm}^{-1}$ ), en particulier en ce qui concerne les formes de raies et le continuum de  $\text{H}_2\text{O}$ .

L'expérience IASI-ballon a été développée et elle est mise en œuvre sur le terrain par Claude Camy-Peyret, Pascal Jeseck, Isabelle Pépin et Yao Té. L'expérience IASI-ballon utilise un instrument FTIR de type Bomem DA2 (celui utilisé pour l'expérience LPMA, cf. § 3.2). L'instrument (Figure 6) opère comme un spectro-radiomètre basé sur une technique de calibration à 2 corps noirs. L'émission thermique (la radiance) du système atmosphère/surface/nuage dans la région spectrale  $650\text{-}3000 \text{ cm}^{-1}$  est analysée avec une résolution spectrale de  $0.1 \text{ cm}^{-1}$  et une précision radiométrique de  $0.4 \text{ K}$  par co-addition des interférogrammes (enregistrés simultanément par les 2 détecteurs HgCdTe et InSb refroidis à l'azote liquide).

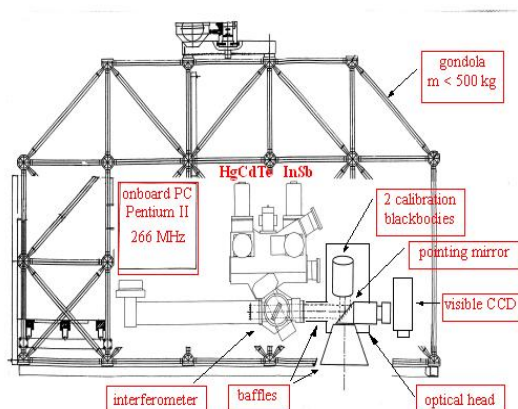


Figure 6. Nacelle IASI-ballon.



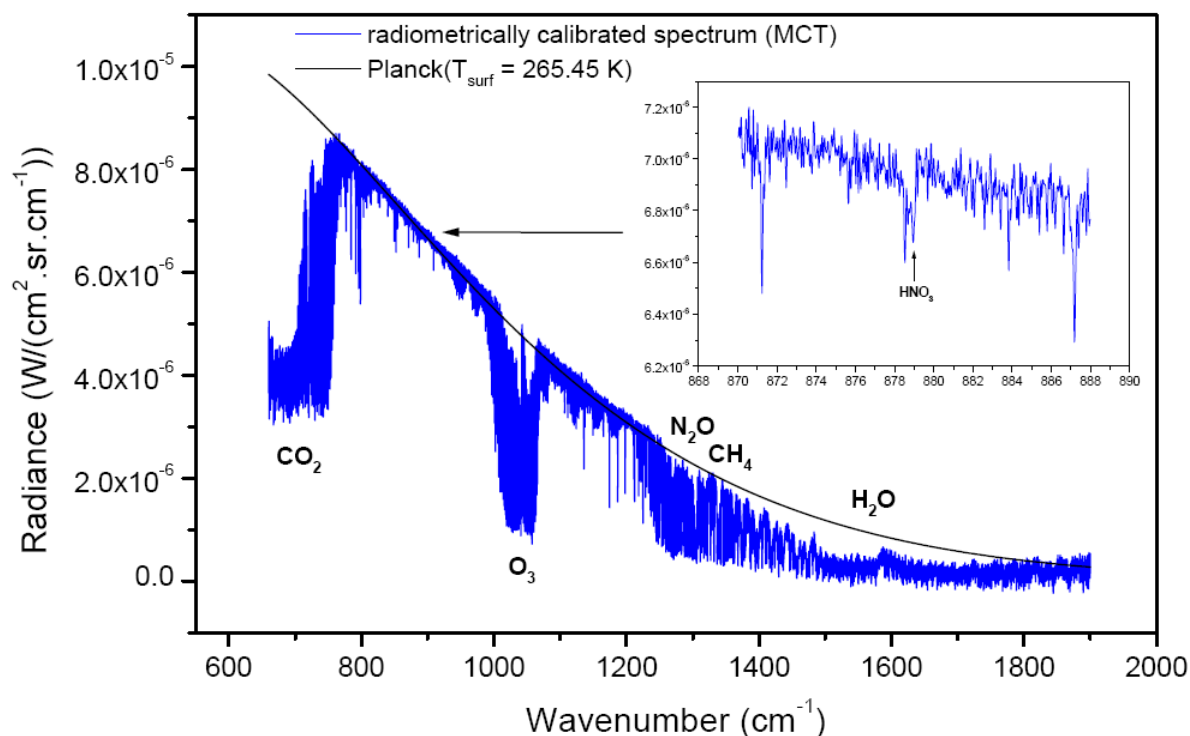


Figure 7 : Exemple de spectre (canal MCT) atmosphérique calibré mesuré durant le premier vol IASI-ballon au-dessus de la Suède en mars 2001.

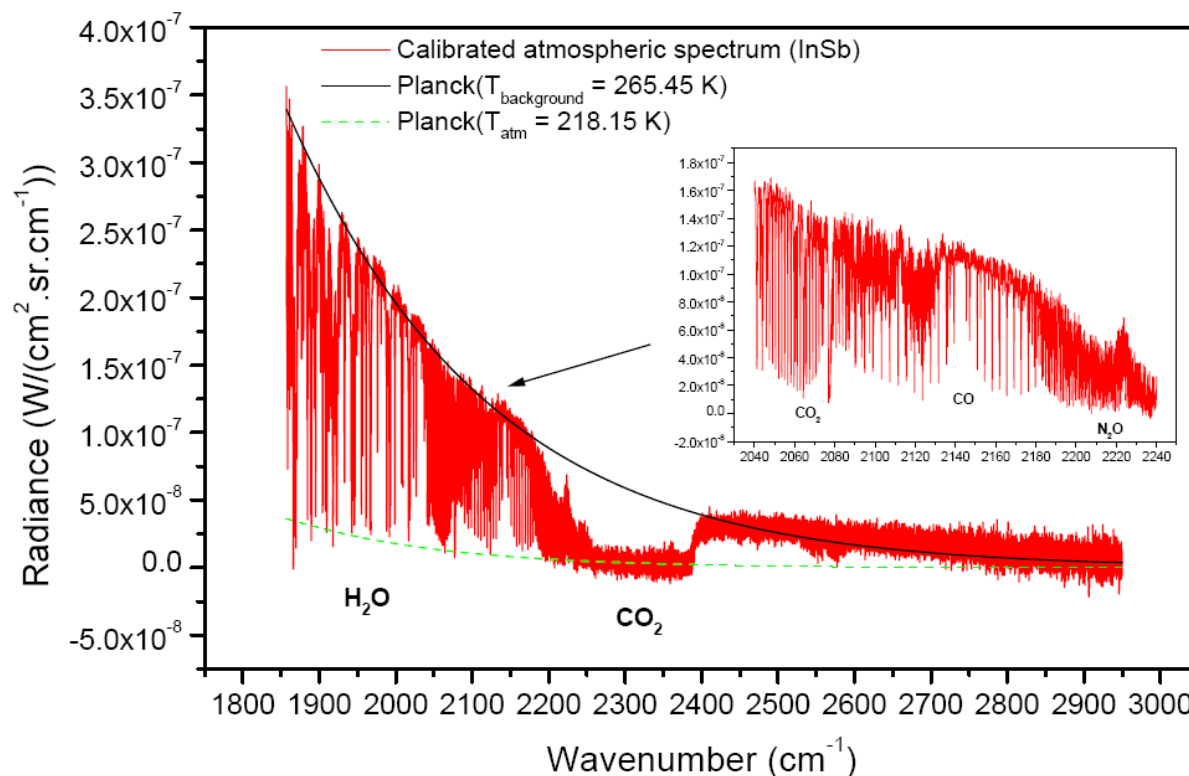


Figure 8. Exemple de spectre (canal MCT) atmosphérique calibré mesuré durant le premier vol IASI-ballon au-dessus de la Suède en mars 2001.

Un cycle de mesure de 100 secondes intègre la mesure atmosphérique par visée au nadir et la mesure de référence du corps noir chaud et du corps noir froid. Malgré les mouvements de la nacelle, l'utilisation d'un miroir de balayage (premier axe horizontal de rotation) et un

contrôle en azimut de la nacelle (deuxième axe vertical de rotation), permet d'enregistrer des spectres d'une cible fixe (champ de vue instantané entre 600 m et 1000 m sur le sol en fonction de l'altitude du ballon, généralement de l'ordre de 30 à 40 km).

La Figure 7 et la Figure 8 présentent des exemples de spectres calibrés mesurés durant le premier vol IASI-ballon au-dessus de la Suède en mars 2001. Les très bonnes performances de cet instrument (calibration radiométrique et résolution spectrale) nous ont permis de mesurer, par inversion des spectres, la colonne verticale (et parfois le profil vertical lorsque c'est possible) de plusieurs espèces troposphériques à l'état de trace comme H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>, CO, O<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O, CFC-12.

### 3.3.2 Les différents vols

Le premier vol de l'expérience IASI-ballon a été réalisé en 2001 depuis Esrange près de Kiruna, au nord de la Suède. La configuration en émission retenue par l'équipe a permis de couvrir le domaine spectral 650-3000 cm<sup>-1</sup> (très proche de celui couvert par IASI). Une caméra visible a permis de documenter la couverture nuageuse des scènes visées. Un second vol, IASI02 (pour la validation de SCIAMACHY), a été réalisé le 5/08/2002. Un imageur infrarouge a été implanté et a permis d'enregistrer des images infrarouges pour analyser avec plus de précision les scènes nuageuses et caractériser les scènes visées (sols, végétation, lacs). Durant le vol, la transition jour nuit a été échantillonnée. Le vol a bénéficié de meilleures conditions atmosphériques que pour le vol IASI01 avec un ciel majoritairement clair.

A titre d'exemple la Figure 9 présente deux images IR et deux spectres enregistrés avec le détecteur MCT (HgCdTe). Sur la première image, le champ de vue de l'interféromètre, symbolisé par le cercle blanc, correspond à une zone froide traduisant la présence d'un nuage. Le spectre nuageux correspondant est tracé en dessous de l'image. Pour la deuxième image, on observe des températures de surface plus élevées, et il s'agit bien d'une scène claire.

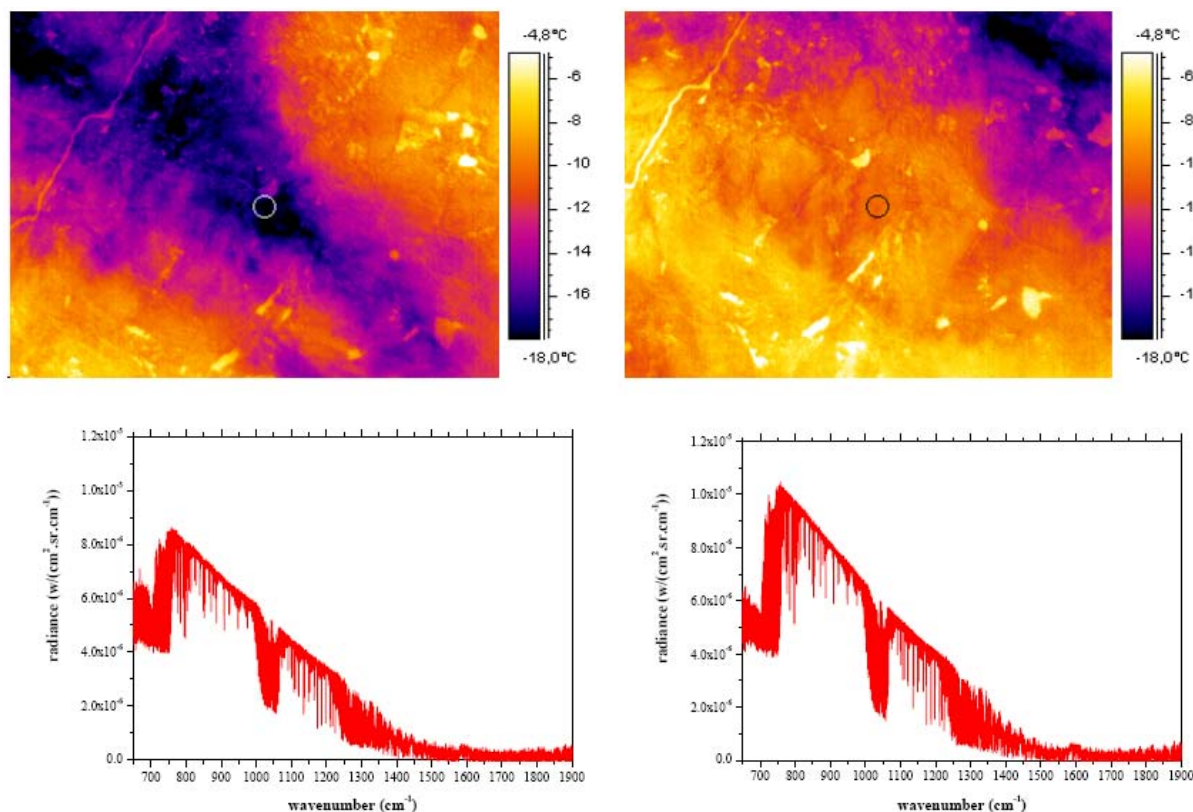


Figure 9. Deux scènes, l'une nuageuse (à gauche) et l'autre claire (à droite) échantillonnée durant le vol IASI02, avec les spectres correspondants dans le canal MCT.

Quatre autres vols, IASI03, IASI04, IASI05, et IASI06, ont été réalisés ces dernières années. Le vol IASI03 a été mené le 30/06/2005 depuis Teresina (Brésil). Comme pour le vol IASI02, l'imageur infrarouge a permis d'enregistrer des images pour analyser les scènes nuageuses et caractériser les scènes visées (sols, végétations, lacs, rivières). Le vol a bénéficié de conditions atmosphériques caractéristiques de zones tropicales très intéressantes pour préparer ou valider les missions spatiales de type IASI. La nacelle du LPMAA a accueilli durant le vol l'instrument italien REFIR [Palchetti, 2005]. L'utilisation conjointe sur la même nacelle de l'instrument IASI-ballon (opérant dans l'infrarouge moyen) et de l'instrument italien REFIR (opérant dans l'infrarouge lointain et développé par l'IFAC à Florence) a permis une intercomparaison de leurs performances radiométriques [Palchetti, 2006].

Le vol IASI04, a été réalisé à Kiruna (Suède) le 01/03/2006. Il s'agissait d'un vol de démonstration de la faisabilité d'un vol de validation de IASI depuis Kiruna à la fin de l'hiver. Le vol, IASI05, a également été réalisé à Kiruna (Suède) le 22/02/2007. Il s'agissait du vol de validation de IASI avec des contraintes opérationnelles fortes (production de niveaux 1 et 2 dans les 3 semaines suivant le vol) préparé lors de du vol précédent.

Enfin, le vol IASI06, réalisé à Teresina (Brésil) en juin 2008 a permis l'enregistrement de spectres en très bonne coïncidence (spatiale et temporelle) avec les spectres enregistré par IASI à bord de MetOp. Un logiciel de géoréférencement par GPS en temps réel de la position du sondage IASI ballon sur une carte a été développé dans l'équipe par Pascal Jeseck et Isabelle Pépin et testé depuis le vol IASI04. Il a été très utile pour la validation des mesures de IASI avec IASI06. Ce système a été utilisé lors du vol de validation IASI05 pour sonder les mêmes scènes que le satellite (Figure 10). Un autre programme que nous avons réalisé concerne le géoréférencement après le vol des images infrarouges. Un exemple est donné ci-dessous (Figure 11) pour une image infrarouge pour laquelle le cercle noir, au centre, représente le champ de vue de l'instrument (image de gauche) alors que la carte représentée à droite met en regard la mesure correspondante avec la nature du site échantillonné.

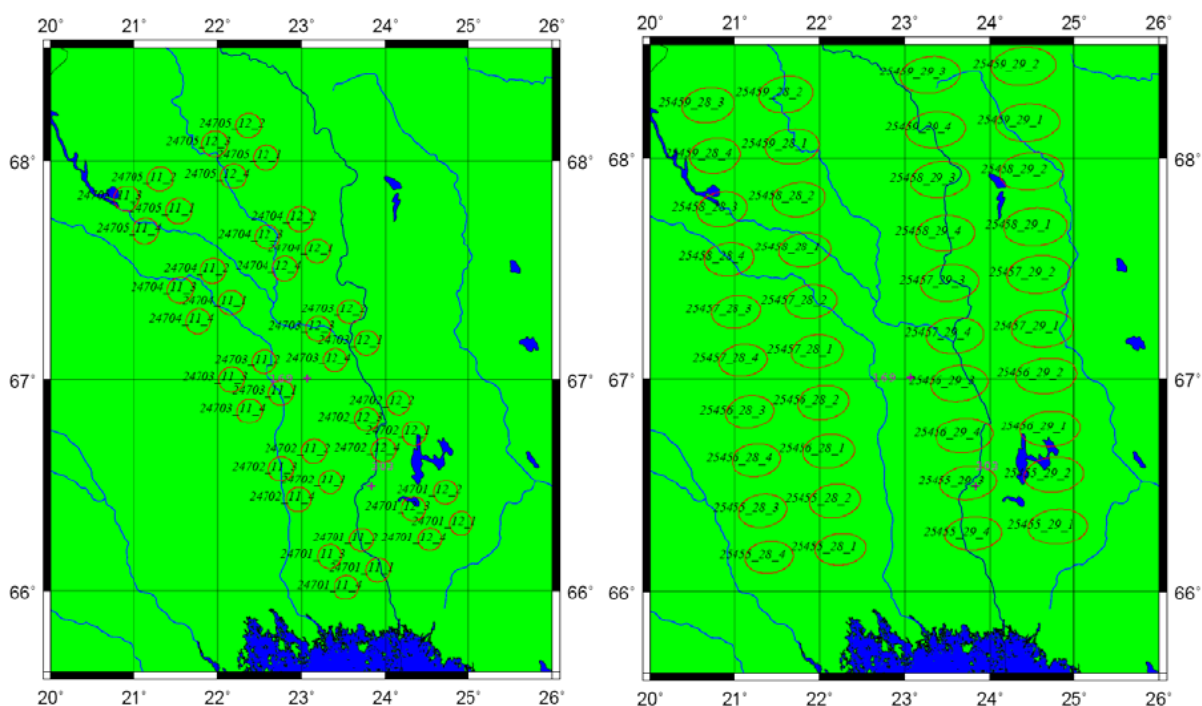


Figure 10 : Géoréférencement des pixels IASI (ellipses rouges) et la position des mesures IASI-ballon en coïncidence (croix mauves) lors de deux passages de MetOp à 18:14 UT (à gauche) et 19:55 UT (à droite).

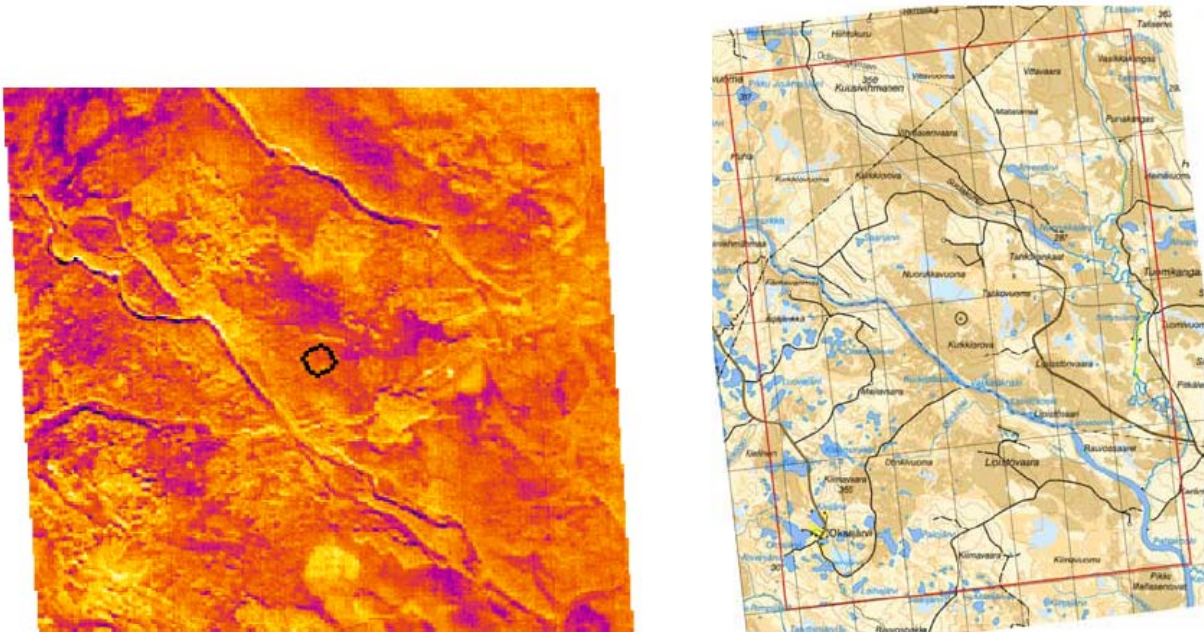


Figure 11. Exemple de géoréférencement après le vol des images infrarouges

Un autre exemple du travail de l'équipe en lien avec nos activités expérimentales est donné ci-dessous avec la Figure 12 qui présente les résultats du programme de traitement des images infrarouges pour déterminer les scènes claires sondées par le spectromètre. Les températures de brillance les plus froides sont la signature de nuages.

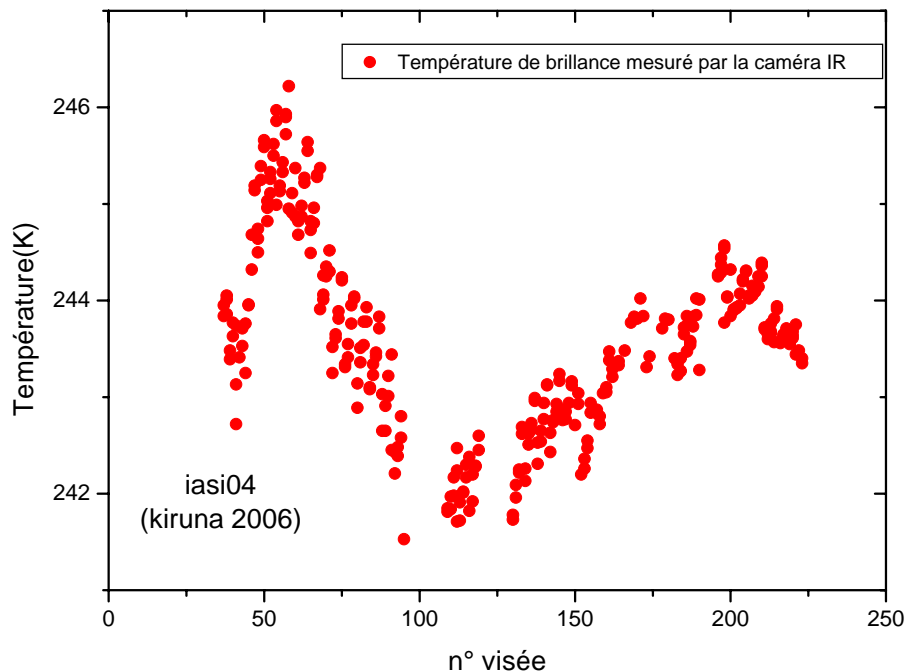


Figure 12. Traitement des images infrarouges pour déterminer les scènes claires sondées par le spectromètre. Les températures de brillance les plus froides sont la signature de nuages.

### 3.3.3 Exemples de résultats

Une analyse des spectres a été réalisée avec l'algorithme d'inversion LARA que j'ai développé au LPMAA (cf. chapitre 6). Compte tenu des grands domaines spectraux couverts par l'expérience embarquée, il n'est pas possible (et pas utile) d'inverser la totalité des mesures spectrales. On sélectionne des fenêtres (larges de quelques  $\text{cm}^{-1}$  à quelques centaines de  $\text{cm}^{-1}$ ) contenant la signature spectrale des espèces dont on cherche à mesurer la colonne verticale (ou le profil dans le cas de l'ozone ou du monoxyde de carbone).

Un exemple est donné ci-dessous pour l'inversion du protoxyde d'azote  $\text{N}_2\text{O}$  et de la vapeur d'eau. La Figure 13 présente le spectre mesuré et le spectre calculé par l'algorithme LARA. On peut observer dans le résidu une signature spectrale non reproduite par le modèle de transfert radiatif. Il s'agit d'une bande d'absorption du CFC-12, espèce jouant un rôle important dans la destruction de l'ozone lorsqu'il est photodissocié dans la stratosphère moyenne. La prise en compte de cette molécule nous a permis d'améliorer l'ajustement du spectre (Figure 13 et Figure 14) et d'inverser la colonne de cette espèce.

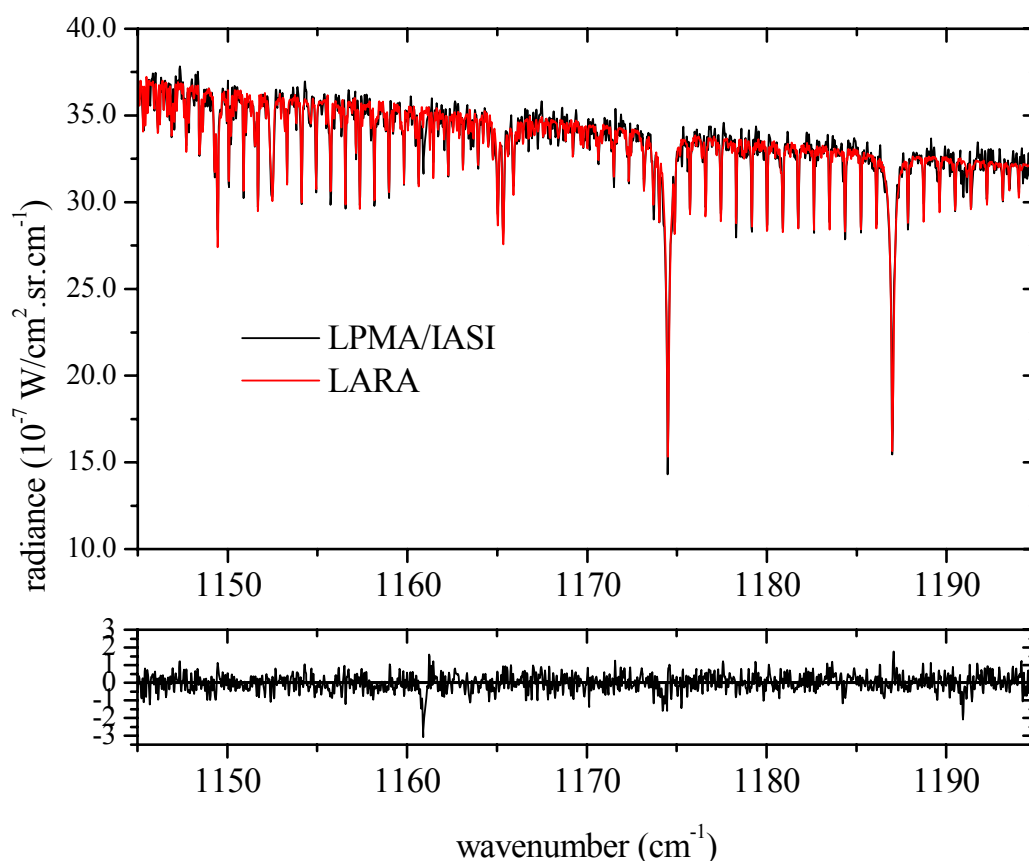


Figure 13. Micro-fenêtre vers  $8.5 \mu\text{m}$  utilisée pour l'inversion simultanée de  $\text{H}_2\text{O}$  et  $\text{N}_2\text{O}$ . Le spectre mesuré (noir) est comparé au spectre simulé après inversion (rouge). Le résidu vers  $1160 \text{ cm}^{-1}$  montre l'absorption significative du CFC-12 non prise en compte dans ce calcul. Voir Figure 14 lorsque cette espèce est prise en compte.

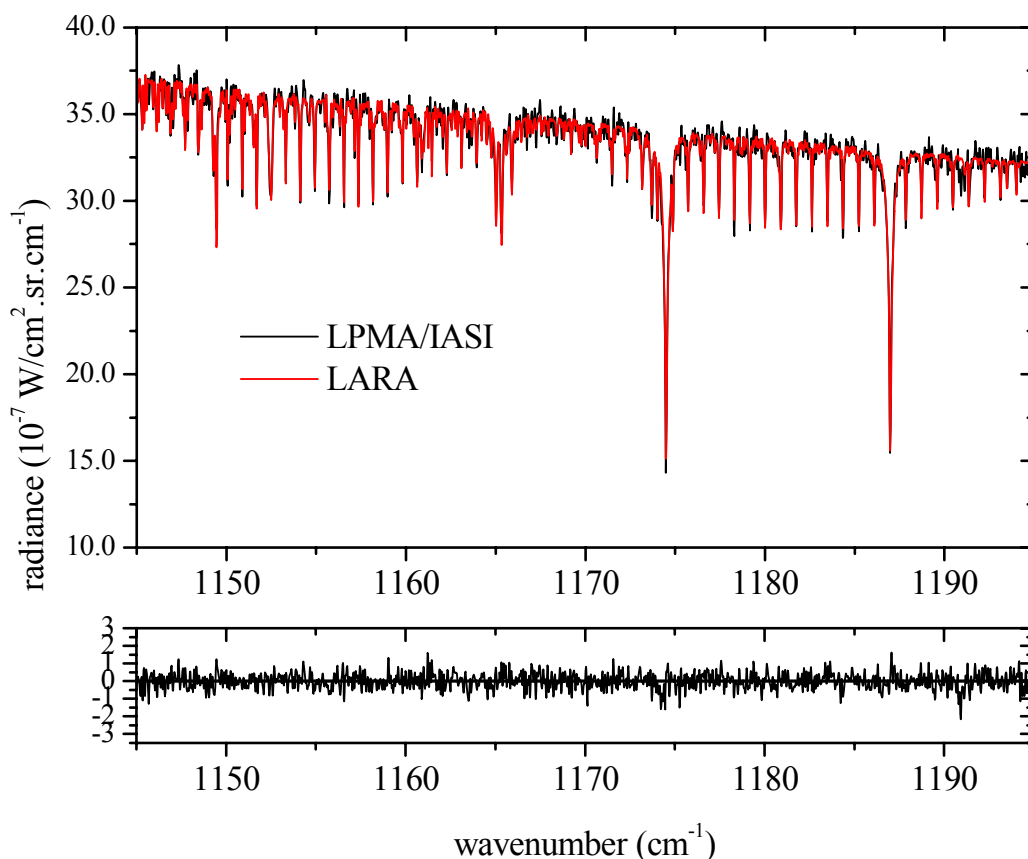


Figure 14. Inversion simultanée de  $H_2O$ ,  $N_2O$  et CFC-12  
(le résidu au voisinage de la signature spectrale du CFC-12 a disparu).

L'inversion des spectres entre  $2100$  et  $2180\text{ cm}^{-1}$  permet de restituer le profil vertical de CO [Clerbeaux *et al.*, 2002] avec 3 éléments indépendants d'information sur sa distribution verticale. Une étude similaire [Ferreira, 2004] a été réalisée pour l'inversion du profil d'ozone pour lequel on dispose d'un sondage réalisé durant le vol et qui nous a servi de référence pour comparaison. La figure 15 illustre cette étude par un exemple d'ajustement et l'inversion correspondante. Les couleurs du profil vertical de rapport de mélange inversé représentent les éléments d'information indépendants.

Toutefois, les différents vols et les analyses que nous avons menés depuis 2001 montrent aussi les limites du traitement simplifié des mesures spectrales, à savoir la sélection de spectres clairs ou nuageux, avec l'analyse des premiers et le rejet du traitement des seconds. Ce point et le travail d'analyse des spectres seront présentés dans le chapitre 6.

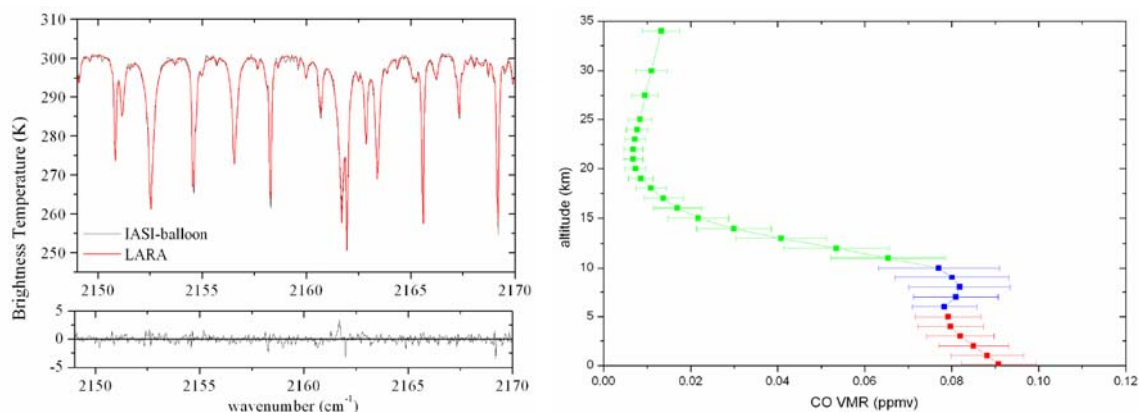


Figure 16. Exemple d'ajustement d'une fenêtre spectrale IASI-balloon pour l'inversion du profil vertical de CO (à gauche) et résultat de l'inversion (à droite) où les couleurs du profil vertical de rapport de mélange représentent les éléments d'information indépendants.

### 3.4 Les autres expériences ballon

Le LPMAA a participé directement à l'expérience SPIRALE (coresponsabilité avec G. Moreau du LPCE, Orléans) qui vise à réaliser des mesures *in situ* par la technique d'absorption à long parcours avec des diodes laser accordables dans l'infrarouge moyen. Outre les caractérisations de diodes et les mesures spectroscopiques, la contribution du LPMAA à SPIRALE a porté sur l'analyse des spectres enregistrés et leur inversion. Le LPMAA a en particulier participé au dépouillement des profils de CO et O<sub>3</sub> à partir des résultats du premier vol de l'expérience SPIRALE en juin 1999 [Moreau *et al.*, 2005].

La participation à l'expérience SDLA-LAMA (mise en œuvre par le Service d'Aéronomie et la Division Technique de l'INSU) a porté sur les travaux de spectroscopie de laboratoire nécessaires à une inversion fiable des spectres enregistrés *in situ* par spectroscopie diode laser à 1.65 μm pour H<sub>2</sub>O.

L'équipe ballon du LPMAA a également soutenu l'activité expérimentale autour du mini-lidar en cours de développement par P. Chazette et S. Sanak (LSCE/CEA) qui devait être embarqué sur la nacelle IASI-balloon lors de la campagne de Teresina au Brésil en 2008. Un premier vol techno du mini-lidar seul dans lequel le LPMAA a été impliqué pour l'instrumentation de la nacelle, la distribution de l'énergie électrique, la thermique et la télémétrie a eu lieu avec succès le 12 juin 2007 à partir d'Aire-sur-l'Adour.

Enfin, comme je l'ai signalé précédemment, d'autres instruments peuvent être embarqués dans la même nacelle que l'instrument IASI-balloon ou LPMA. Ce dernier est souvent couplé avec le spectromètre UV/vis DOAS de l'université de Heidelberg.

## 4 Développement et validation d'expériences spatiales

### 4.1 Contexte

Le satellite permet, en fonction de son orbite, d'avoir une couverture géographique bien plus importante que les réseaux sols ou les mesures avion ou encore ballon. Il permet également de faire des mesures continûment dans le temps et par la même d'alimenter en données les modèles météorologiques, de chimie-transport, ou encore climatiques.

Les problèmes environnementaux et l'étude du climat, et plus généralement la compréhension des processus clefs de la physico-chimie atmosphérique ainsi que les besoins de plus en plus importants en matière de suivi et de prévision de l'état de l'atmosphère (météorologie, qualité de l'air, climat, ...) ont conduit à la conception et au développement de nombreuses expériences embarquées sur satellite. Pour étudier ou mesurer l'importance croissante des impacts anthropiques sur l'environnement, il est nécessaire d'utiliser plusieurs expériences spatiales dont les caractéristiques instrumentales varient en fonction des objectifs scientifiques. En effet, un seul instrument, même très performant, ne permet de mesurer que quelques paramètres géophysiques (le profil vertical ou la colonne intégrée de quelques espèces par exemple) et en général dans une région limitée de l'atmosphère (troposphère ou stratosphère par exemple).

Il existe aujourd'hui une grande variété de sondeurs spatiaux visant à mesurer des paramètres géophysiques de l'atmosphère par télédétection.

- UV-VIS: TOMS, GOME, SCIAMACHY, OMI, GOME2 ...
- IR: ATMOS, IMG, MIPAS, TES, AIRS, IASI, GOSAT ...
- MW: MAS, ODIN, MLS, JEM/SMILES, STEAM ...

Les instruments satellitaires fournissent des mesures globales en grand nombre et les logiciels de dépouillement opérationnels utilisent des algorithmes plus rapides mais moins précis que les outils de recherche comme ceux que j'ai développés au LPMAA. De plus, le lancement et la mise en orbite d'un instrument peut conduire à des dysfonctionnements, des dérives dans le temps ou plus généralement des problèmes techniques. Il est donc essentiel de valider avec des instruments non-spatiaux les mesures spatiales (mesures brutes et algorithmes de traitement des mesures) afin de détecter et corriger ces problèmes.

Lors du lancement de nouveaux instruments satellitaires, il faut donc avant toute exploitation scientifique des données effectuer une expertise des mesures. Par exemple, dans le cadre des campagnes de validation financées par l'ESA (Agence Spatiale Européenne) des instruments du satellite ENVISAT, les instruments sous ballon stratosphérique de la communauté scientifique européenne ont effectué des mesures à moyenne latitude au pôle et en région tropicale. Ces campagnes ont pour objectif la comparaison des mesures obtenues par les instruments embarqués sur satellites, sur avion, au sol, et sous ballon.

Dans ce contexte, j'ai participé depuis ma thèse à plusieurs expériences spatiales, principalement dans le contexte de l'étude physico-chimique de la stratosphère, puis de la troposphère et de la qualité de l'air. Ce travail s'articule autour des points suivants :

- études et caractérisation des spectres satellitaires (dits de niveau 1)
- développement de modèles de transfert radiatif direct et inverse (de type recherche) pour l'amélioration de l'analyse des mesures spatiales
- validation des mesures satellitaires avec les instruments LPMA et IASI-ballon
- développement de nouvelles expériences spatiales (sondeurs troposphériques)



- expertise au sein de groupes scientifiques d'expériences existantes.

Je développe dans ce chapitre quelques exemples de travaux que j'ai menés autour de ces points.

## 4.2 Validations satellitaires

### 4.2.1 Les principaux projets

Comme nous venons de le voir, lors du lancement de nouveaux instruments satellitaires, il faut avant toute exploitation scientifique des données effectuer une expertise des mesures spatiales. J'ai participé à la validation de plusieurs instruments spatiaux et cette activité s'est organisé autour de trois directions :

- définition des instruments embarqués,
- mesures indépendantes pour comparaison avec les mesures spatiales,
- analyse des mesures spatiales avec les outils de recherche de l'équipe (transfert radiatif, inversion).

J'ai eu ainsi l'occasion participer à la préparation ou la validation des expériences ODIN (Suède, France et Canada) [Urban *et al.*, 2005 ; Jégou, 2004], ILAS et ILAS-II (ADEOS, Japon) [Sasano, 1999 ; Nakajima, 2006], IASI (MetOp, Europe) [Siméoni and Singer ; 1997], MIPAS, GOMOS et Schiamachy (Envisat, Europe) [ESA, 2000], AIRS (Aqua, USA) [Aumann *et al.*, 2003] et ACE (SciSat, Canada) [Bernath *et al.*, 2005].

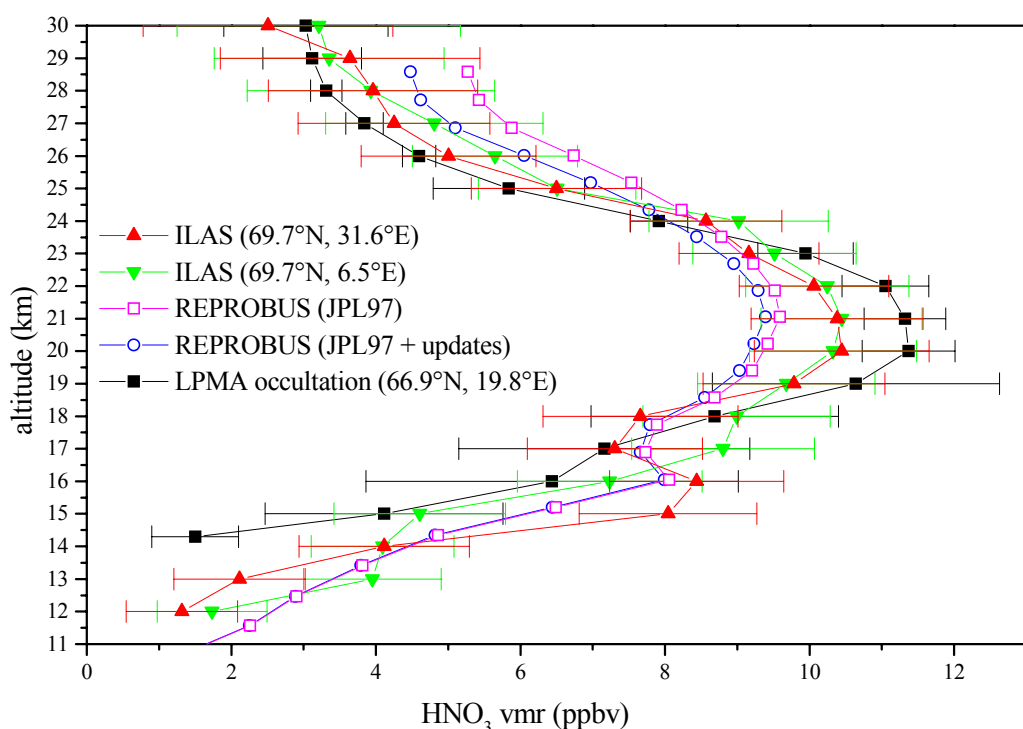


Figure 17 : Comparaison des profils de  $\text{HNO}_3$  mesurés par ILAS et par LPMA et calculés par Reprob.

Dans les expériences spatiales déjà citées (ILAS, MIPAS, SCIAMACHY, GOMOS) l'implication de notre équipe a porté principalement sur la validation par comparaison des profils satellite et ballon [Weidner *et al.*, 2005; Gurlit *et al.*, 2005; Dorf *et al.*, 2006a; Payan *et al.*, 2007; Butz *et al.*, 2007; Dufour *et al.*, 2004b; Cortesi *et al.*, 2004; Oelhaf *et al.*, 2004; Blom *et al.*, 2004; Camy-Peyret *et al.*, 2004a, Camy-Peyret *et al.*, 2004b]. La Figure 17 présente à titre d'exemple la comparaison entre les mesures en coïncidence de l'expérience

spatiale ILAS et l'expérience ballon LPMA ainsi que les résultats du modèle Reprobus. La compétence reconnue du LPMAA pour la mesure des réservoirs du chlore et en particulier de HCl et ClONO<sub>2</sub> [Payan *et al.*, 1998] à bénéficié à l'expérience ILAS et ILAS-2 à bord du satellite japonais ADEOS et ADEOS-2 pour la validation du nouveau canal spectral à 780 cm<sup>-1</sup> dédié à la mesure de ClONO<sub>2</sub>.

Toutefois la validation ne consiste pas en une comparaison directe des profils du validant et du validé. Il s'agit d'un travail rigoureux qui doit intégrer au mieux les caractéristiques des différents instruments (champ de vue, résolution spectrale, domaines spectraux, temps d'intégration, ...) ainsi que les différences spatiales et temporelles des deux mesures, même dans le cas d'une bonne coïncidence (typiquement moins de 200 km et moins de 2 heures entre les mesures). Je donne un exemple ci-dessous.

#### 4.2.2 Exemples de validation : ODIN/SMR et ENVISAT/MIPAS

Lors d'une la campagne de validation de l'expérience spatiale ODIN (campagne Balodin), l'expérience ballon LPMA (cf. chapitre 3) a effectué un vol depuis le nord de la Suède en août 2001. L'objectif était de mesurer le profil vertical de plusieurs espèces stratosphériques pour les "comparer" (avec une procédure développée au LPMAA pour la validation de Envisat) avec les profils des mêmes espèces mesurées par ODIN. La Figure 18 présente le profil du vol, c'est à dire la trajectoire de la nacelle (longitude, latitude et altitude). Le mois d'août voit les vents dans la stratosphère changer de direction. Cette période est donc caractérisée par des vents faibles et une dérive horizontale peu importante de la nacelle. Il est donc possible de faire des vols de longue durée (une dizaine d'heure). On peut alors mesurer la distribution verticale d'espèces à variation photochimique notable comme NO et NO<sub>2</sub> durant la montée du ballon, le coucher du soleil, et le lever du soleil. On obtient donc 3 profils verticaux pour toutes les espèces mesurées. Pour les espèces ne présentant pas de variation temporelle importante, il est possible de moyenner les trois mesures. C'est le cas de HCl par exemple dont le profil est donné dans la Figure 19. La Figure 20 présente les 3 profils d'ozone que nous avons mesurés durant ce vol. Ils sont comparés à un sondage indépendant effectué le même jour que notre vol. Les résultats de la modélisation photochimique sont discutés dans la section 7.4.

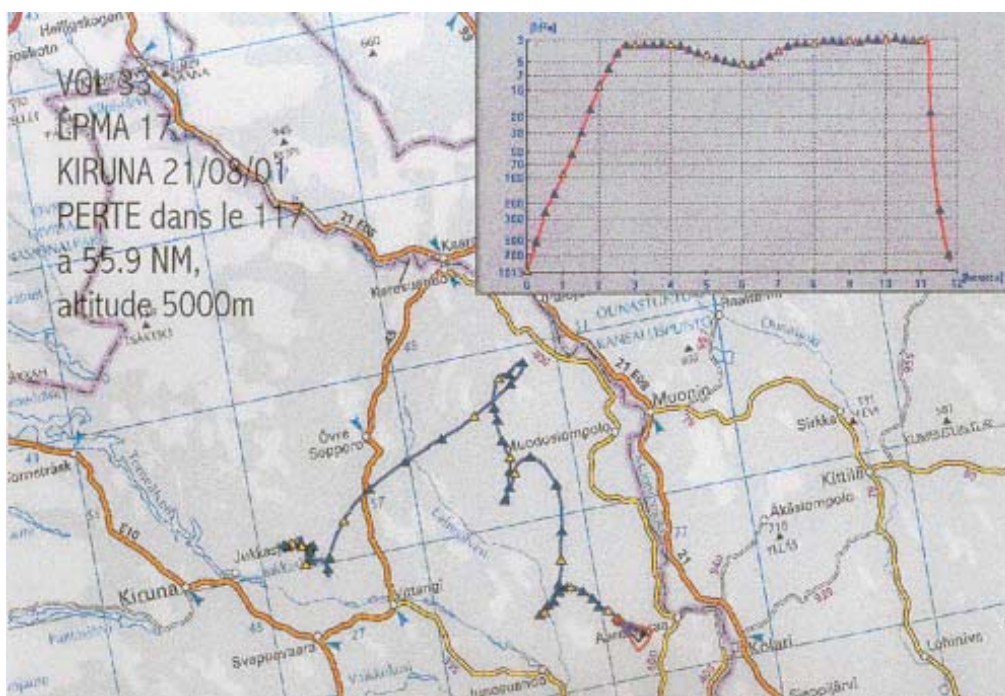


Figure 18. Profil du vol LPMA17 (août 2001) au-dessus du nord de la Suède.

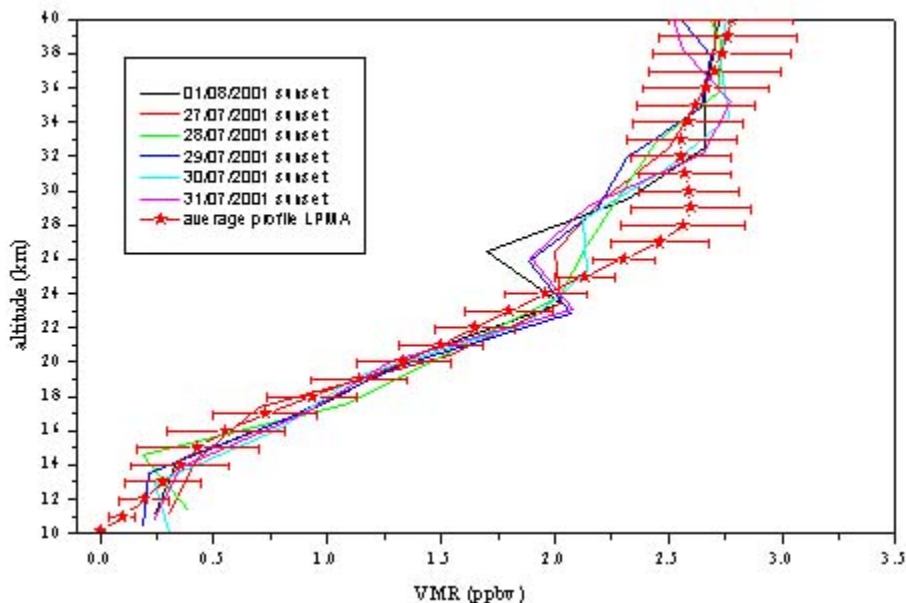


Figure 19. Profil moyen de HCl mesuré par l'expérience LPMA comparé aux mesures de l'expérience spatiale HALOE réalisées 3 semaines avant le vol.

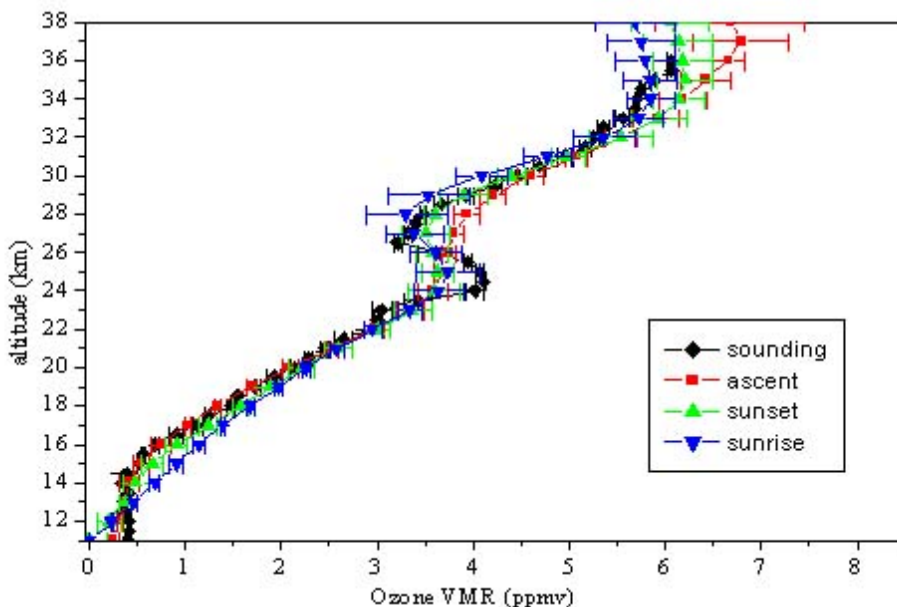


Figure 20. Profils d'ozone mesurés durant le vol LPMA17 à la montée, au coucher et au lever du soleil. Un sondage réalisé le même jour est également tracé pour comparaison.

Nous avons poussé nos analyses plus avant en cherchant à nous affranchir des différences spatiales et temporelles existant entre les mesures et les modèles. Que ce soit pour la validation satellitaire ou la comparaison avec un modèle, il est nécessaire d'avoir la meilleure coïncidence possible entre les données à valider ou les sorties du modèle en ses différents points de grille et les données de validation. Pour pallier les problèmes de mauvaise coïncidence et supprimer une source d'erreur lors de la validation, une méthode originale de comparaison à 4 dimensions utilisant un modèle de chimie-transport pour transporter les profils LPMAA à la position et au temps de la mesure à valider a été développée au sein de l'équipe. Le rapport de mélange  $X$  mesuré par LPMAA au temps  $hh_1:mm_1$  TU et à la position  $(\lambda_1, \mu_1)$  est transporté au temps de la mesure satellitaire  $hh_2:mm_2$  TU et à sa position  $(\lambda_2, \mu_2)$  en utilisant l'expression suivante :

$$X_{LPMA}^{hh_2 : mm_2 \text{ et } (\lambda_2, \mu_2)} = \frac{X_{\text{Modèle}}^{hh_2 : mm_2 \text{ et } (\lambda_2, \mu_2)}}{X_{\text{Modèle}}^{hh_1 : mm_1 \text{ et } (\lambda_1, \mu_1)}} X_{LPMA}^{hh_1 : mm_1 \text{ et } (\lambda_1, \mu_1)}$$

Les rapports de mélange du modèle aux positions  $(\lambda_i, \mu_i)$  sont déterminés par une interpolation linéaire à 2 dimensions en latitude et en longitude et par une interpolation linéaire à une dimension en altitude. Le modèle de chimie-transport utilisé dans notre cas est le modèle Reprobus. On peut remarquer que dans le cas des mesures en occultation comme celles du LPMAA, cette opération est à renouveler pour chaque altitude tangente sondée, étant donné que la position et le temps de la mesure changent au cours de l'occultation.

Cette méthode a été appliquée pour la validation par les mesures LPMA des profils d'ozone et de dioxyde d'azote mesurés par l'instrument OSIRIS à bord du satellite suédois Odin et des profils d'ozone, de  $N_2O$  et de  $HNO_3$  mesurés par l'instrument SMR également à bord d'Odin.

Le travail d'analyse permet également d'aller plus loin en utilisant des informations sur la dynamique des masses d'air. C'est ce que j'ai fait pour la validation de  $CH_4$  et  $N_2O$  mesuré par MIPAS sur la plateforme ENVISAT.

En deux ans, notre équipe a réalisé trois vols de validation des expériences MIPAS, GOMOS et SchiamaChy embarqués sur Envisat. L'analyse des spectres enregistrés durant ces vols a été suivie par un travail de validation afin d'établir les meilleurs profils verticaux des différentes espèces stratosphériques pour les comparer (avec la procédure présentée précédemment) aux profils des mêmes espèces mesurées par l'instrument spatial considéré. Un exemple est donné dans la Figure 21 pour le protoxyde d'azote et dans la Figure 22 pour le méthane.

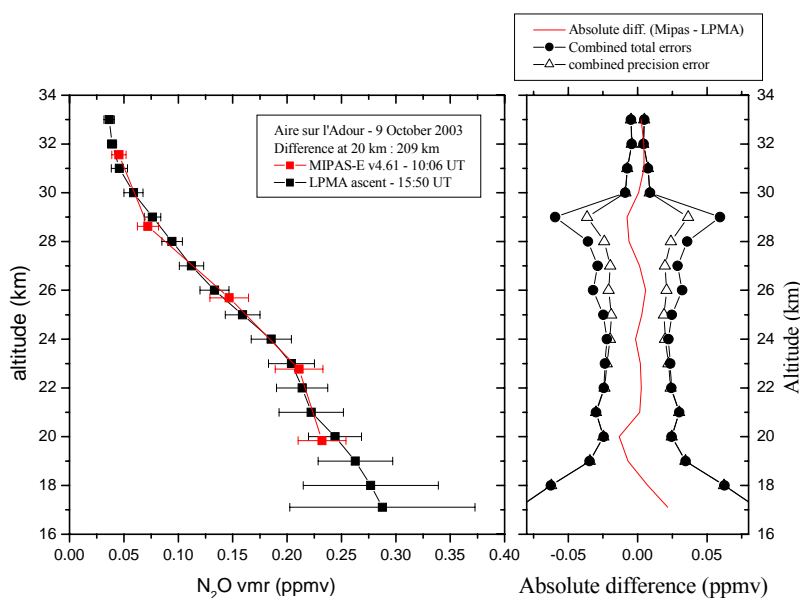


Figure 21. Comparaison des profils de  $N_2O$  (mesurés pas MIPAS sur Envisat et par LPMA le 9 octobre 2003 depuis Aire-sur-l'Adour).

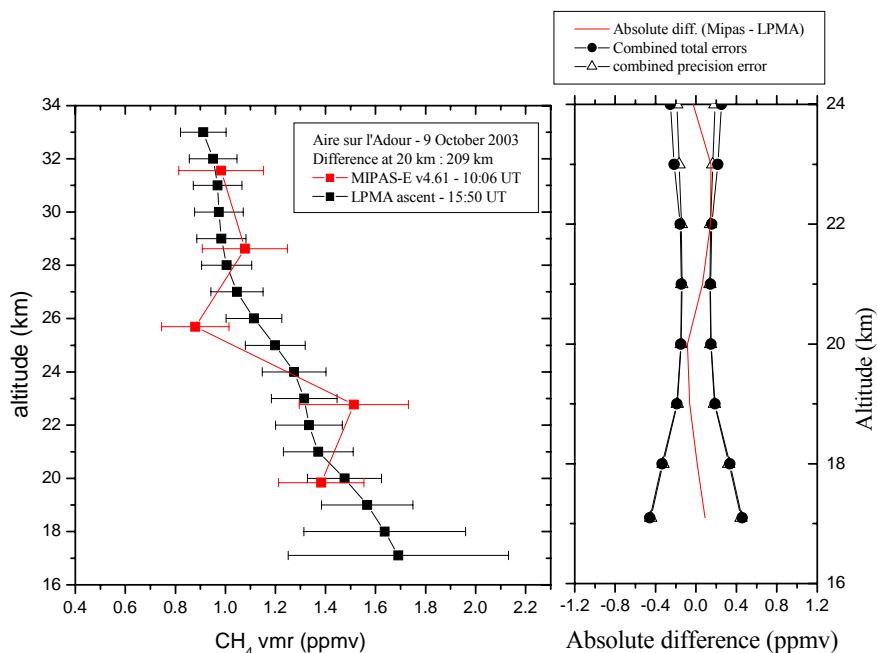


Figure 22. Comparaison des profils de CH<sub>4</sub> mesurés pas MIPAS sur Envisat et par LPMA le 9 octobre 2003 depuis Aire-sur-l'Adour.

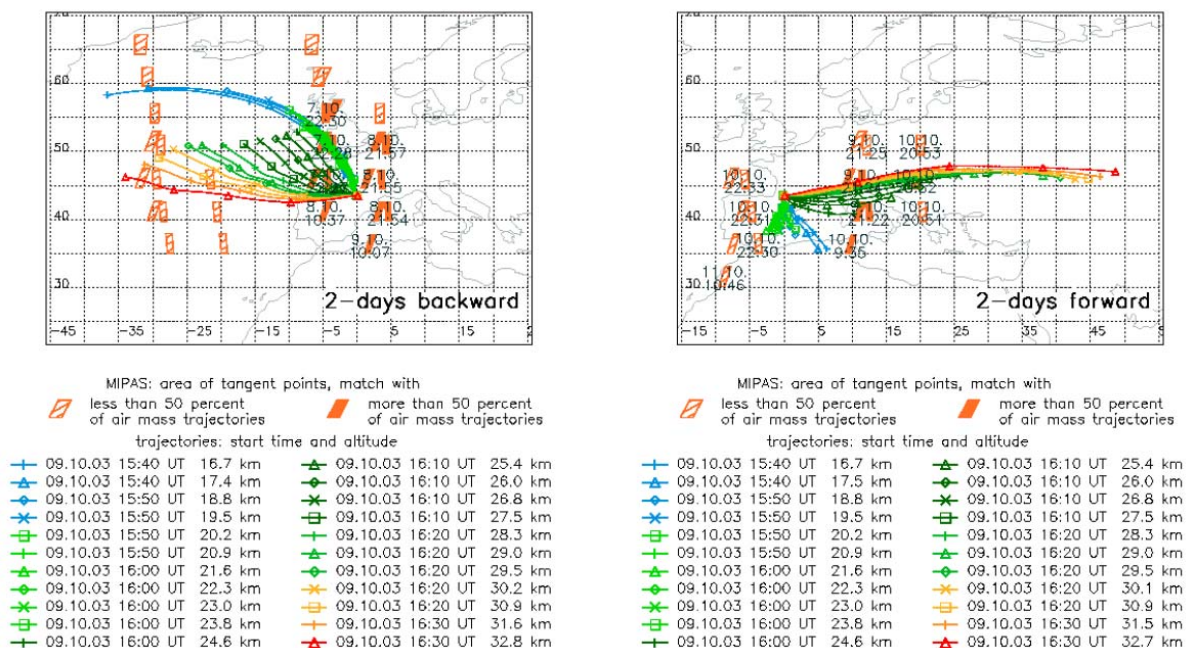


Figure 23. Exemple de calcul de trajectoire inverse et avant (vol LPMA du 9 octobre 2003 à Aire-sur-l'Adour) pour la validation de MIPAS et Schiamachy sur Envisat.

Comme nous l'avons mentionné, la procédure complexe de comparaison des profils mesurés par l'expérience ballon et l'expérience spatiale est basée sur l'utilisation d'un modèle de chimie-transport nous permettant de tenir compte des différences spatio-temporelles entre les deux mesures [Dufour *et al.*, 2004a et 2004b]. On pourra se reporter à la section 7.4 sur l'analyse physico-chimique des oxydes d'azote pour ce qui concerne la modélisation physico-chimique. En collaboration avec l'Université de Berlin, des trajectoires inverses et directes (Figure 23) ont également été utilisées pour la validation des mesures MIPAS dans des

masses d'air échantillonnées plus tôt ou plus tard que LPMA. Cette technique présente l'avantage de pouvoir comparer plusieurs profils de l'expérience à valider avec la mesure de référence (on augmente donc la statistique). Rappelons toutefois que cette méthode n'est valable que pour des espèces dont la durée de vie à l'altitude considérée est suffisante (plus grande que le temps séparant la mesure de référence et la mesure à valider)

### 4.2.3 Validation coordonnée

Si la comparaison rigoureuse de la mesure spatiale et d'une mesure de référence est importante, une analyse coordonnée de l'ensemble des mesures de références disponibles permet d'estimer statistiquement avec plus de précision la qualité de la mesure spatiale à valider. Cette approche permet également de se libérer des biais possibles des instruments de références, biais qui peuvent trouver leur origine dans les différences intrinsèques des mesures correspondantes. Par exemple, on verra dans le chapitre 6 que des différences dans la connaissance des sections efficaces d'absorption dans l'UV et dans l'infrarouge peuvent conduire à des écarts significatifs entre deux mesures faites dans des domaines spectraux différents.

J'ai été chargé de coordonner la validation du méthane et du protoxyde d'azote mesuré par MIPAS sur Envisat [Payan *et al.*, 2007; Payan *et al.*, 2009]. Dans cette étude j'ai été amené à considérer des mesures corrélatives provenant de plateformes et d'instruments très différents : mesures *in situ* ou mesures à distance faites depuis le sol, un avion, un satellite ou un ballon. Le Tableau 2. Les différentes observations pour la validation des profils de CH<sub>4</sub> et de N<sub>2</sub>O présente une synthèse des mesures utilisées dans cette étude (extrait de Payan *et al.* [2009]). La plupart des mesures corrélatives ont été obtenues dans le cadre de la campagne *ENVISAT Stratospheric Aircraft and Balloon Campaign* (ESABC) coordonnée par l'ESA [Wursteisen, 2003].

En concertation avec les scientifiques impliqués, des critères de coïncidences ont été définis et recommandés pour l'intercomparaison : moins de 300 km et moins de 3 heures. Il faut également définir une base commune de comparaison, ici le rapport de mélange (plutôt que la concentration) en fonction de la pression (plutôt que l'altitude). Un critère supplémentaire a été défini pour les intercomparaisons de mesures réalisées durant l'hiver polaire. Nous avons recommandé de ne pas considérer les mesures ayant une différence de vorticité potentielle (PV) plus grande que 15% ( $\Delta PV/PV < 15\%$ ).

Enfin, une réduction du lissage vertical en utilisant les noyaux moyens a été appliquée lorsque c'était nécessaire (i.e. lorsque les résolutions verticales de MIPAS et celle de la mesure corrélative sont significativement différentes). La méthode de Rodgers et Connor [2003] a été utilisée pour transposer les mesures ayant la résolution verticale la plus faible pour les comparer à celles ayant la résolution verticale la plus grande, et ce sur une grille commune de pression.

De plus, l'utilisation de calculs de trajectoires inverses pour augmenter le nombre de coïncidences a permis d'améliorer dans certain cas la statistique.

Ce type d'étude coordonnée donne également un aperçu (non exhaustif) des instruments de recherche embarqués qui permettent la mesure de la composition de l'atmosphère (ici de CH<sub>4</sub> et N<sub>2</sub>O dans la stratosphère). Les expériences ballon impliquées font intervenir des sondeurs à distance de type FTIR opérant en émission thermique au limbe comme IBEX [Bianchini *et al.*, 2003] dans le proche infrarouge et MIPAS-B [Friedl-Vallon *et al.*, 2004] dans l'infrarouge thermique, ou en occultation solaire comme LPMA [Camy-Peyret *et al.*, 1995] aussi bien que des instruments opérants des prélèvements cryogéniques *in situ* comme

Bonbon [Engel *et al.*, 1998] et des spectromètres diode laser *in situ* comme SPIRALE [Moreau *et al.*, 2005].

|               | Instrument | Flight date/campaign period             | CH <sub>4</sub> | N <sub>2</sub> O | Latitude coverage           |
|---------------|------------|---|-----------------|------------------|-----------------------------|
| Balloon       | IBEX       | 28-29 July 2002                         |                 | X                | Mid-latitude                |
|               | TRIPLE     | 24 Sept. 2002                           | X               | X                | Mid-latitude                |
|               | MIPAS-B    | 24 Sept. 2002                           | X               | X                | Mid-latitude                |
|               |            | 20/21 March 2003                        | X               | X                | High latitude               |
|               |            | 3 July 2003                             | X               | X                | High latitude               |
|               | SPIRALE    | 2 Oct. 2002                             | X               | X                | Mid-latitude                |
|               |            | 21 Jan. 2003                            | X               | X                | High latitude               |
|               | LPMA       | 4 March 2003                            | X               | X                | High latitude               |
|               |            | 23 March 2003                           | X               | X                | High latitude               |
|               |            | 9 Oct. 2003                             | X               | X                | Mid-latitude                |
| 24 March 2004 |            | X                                       | X               | High latitude    |                             |
| Aircraft      | MIPAS-STR  | 22 July 2002                            | X               | X                | Mid-latitude                |
|               |            | 28 Feb. to 16 March 2003                | X               | X                | High latitude               |
|               | ASUR       | 14 flights from Oct. 2002 to March 2003 |                 | X                | Low, mid and high latitudes |
|               | SAFIRE-A   | 24 Oct. 2002                            |                 | X                | Mid-latitudes               |
| Ground        | NDSC –FTIR | From 2002-07-06 to 2004-03-26.          | X               | X                | High latitudes              |
|               | NDSC –FTIR | From 2002-07-06 to 2004-03-26.          | X               | X                | Mid and high latitudes      |
| Satellite     | HALOE      | From 22 July to 24 March 2004           | X               |                  | Mid and high latitudes      |

Tableau 2. Les différentes observations pour la validation des profils de CH<sub>4</sub> et de N<sub>2</sub>O de MIPAS.

Alors que les mesures ballon fournissent des profils de gaz trace avec une grande résolution verticale dans presque toute la stratosphère, leurs contraintes de lancement spécifiques et leur couverture géographique limitée montrent la complémentarité des mesures avion qui permettent en particulier d'optimiser les coïncidences avec les mesures spatiales, mais avec une résolution verticale limitée. Les réseaux sol comme le NDACC (*Network for the Detection of Atmospheric Composition Change*, précédemment NDSC pour *Network for the Detection of Stratospheric Change*) permettent quand à eux des mesures sur de grandes périodes de temps, compensant ainsi leur résolution verticale limitée par une statistique importante. Enfin, l'intercomparaison des mesures satellitaires est une technique supplémentaire pour la validation. Evidemment, cela implique que l'instrument spatial de référence ait été lui-même validé par des mesures indépendantes. Plusieurs articles ont été consacrés à la validation de N<sub>2</sub>O et CH<sub>4</sub> de MIPAS par comparaison avec les mesures des

profils verticaux de CH<sub>4</sub> de ACE [De Mazière *et al.*, 2007], des mesures N<sub>2</sub>O de ACE [Strong *et al.*, 2007], et des mesures de N<sub>2</sub>O de MLS [Lambert *et al.*, 2007]. Nous avons utilisé dans notre étude les mesures de HALOE (*Halogen occultation Experiment*, à bord d'UARS) qui produit des profils verticaux de CH<sub>4</sub> depuis 1991 [Park *et al.*, 1996] de la basse stratosphère jusqu'à la mésosphère en utilisant l'absorption solaire et la radiométrie par corrélation.

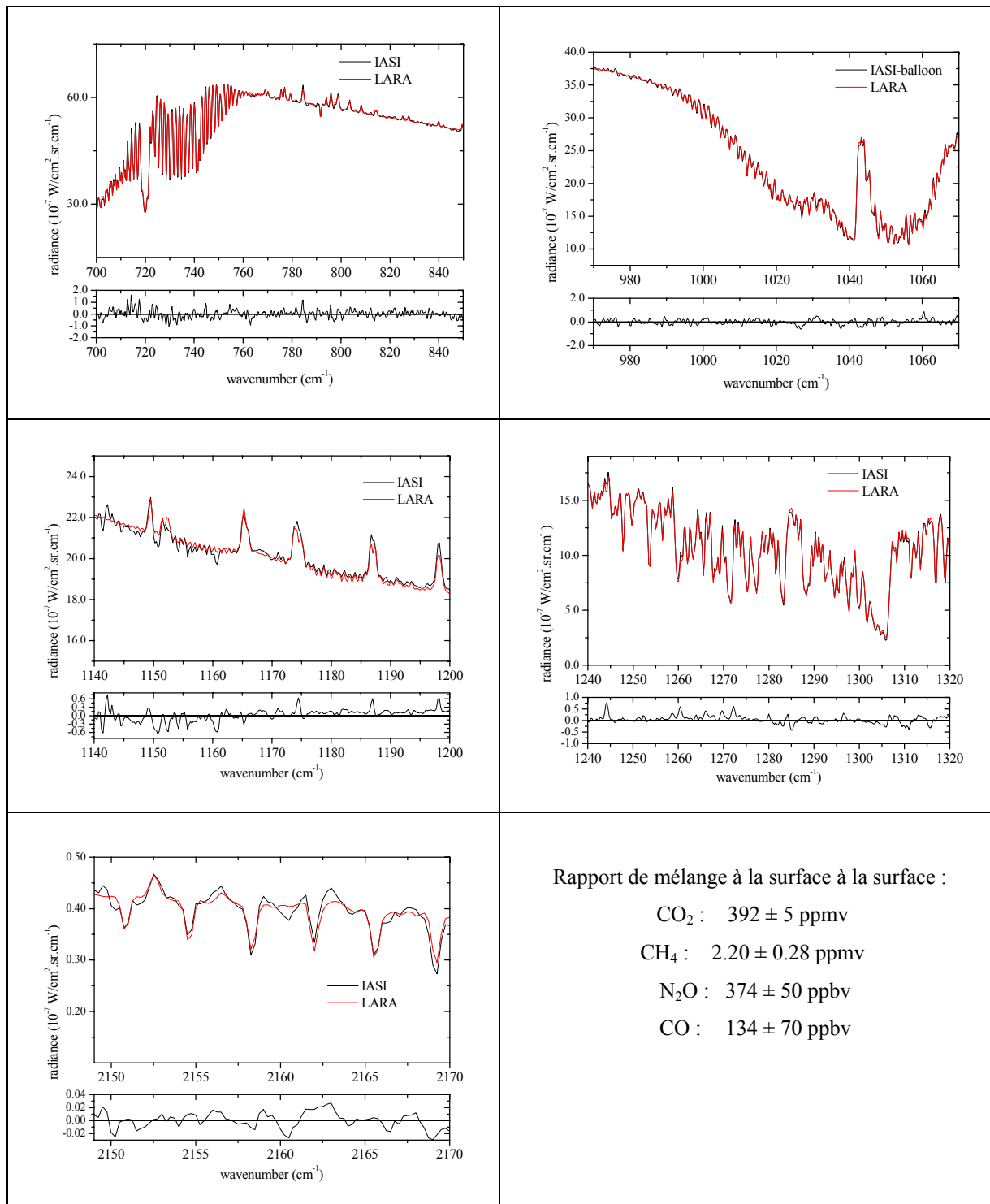


Figure 24. Exemple d'ajustement multi-fit de 5 fenêtres spectrales de IASI en coïncidence avec les mesures IASI-balloon du 22/02/2007. Le rapport de mélange au sol obtenu par inversion pour 4 espèces est donné à titre indicatif.



#### 4.2.4 Validation de IASI

J'ai présenté dans le chapitre 3 l'expérience IASI-ballon développée spécifiquement pour l'étude du sondage de la troposphère par visée vers le bas en émission thermique, et en particulier pour la préparation et la validation de IASI sur MetOp. Nous avons réalisé un vol de validation de IASI avec des contraintes opérationnelles fortes (production de niveaux 1 et 2 dans les 3 semaines suivant le vol). Il a été réalisé à Kiruna (Suède) le 22/02/2007 (cf. 3.3.2). Dans le cadre de ce travail de validation, les spectres IASI les plus proches (spatialement et temporellement) des mesures ballon ont été identifiés. Ces spectres ont ensuite été inversés pour une comparaison ultérieure des niveaux 2 (profils et/ou colonnes) mesurés par les deux instruments (ballon et satellite). Un exemple d'ajustement de spectres IASI est donné dans la Figure 24.

Plus récemment, un vol de IASI-ballon a été réalisé depuis Teresina au Brésil. Au cours du vol IASI06 plus de 350 spectres de très bonne qualité du système surface/nuage/atmosphère ont été enregistrés par IASI-ballon à la résolution nominale de  $0.1 \text{ cm}^{-1}$  (apodisée) et avec un rapport signal à bruit supérieur à 100 en bande B1 ( $650\text{-}1900 \text{ cm}^{-1}$ ) et supérieur à 50 en bande B2 ( $1900\text{-}2800 \text{ cm}^{-1}$ ).

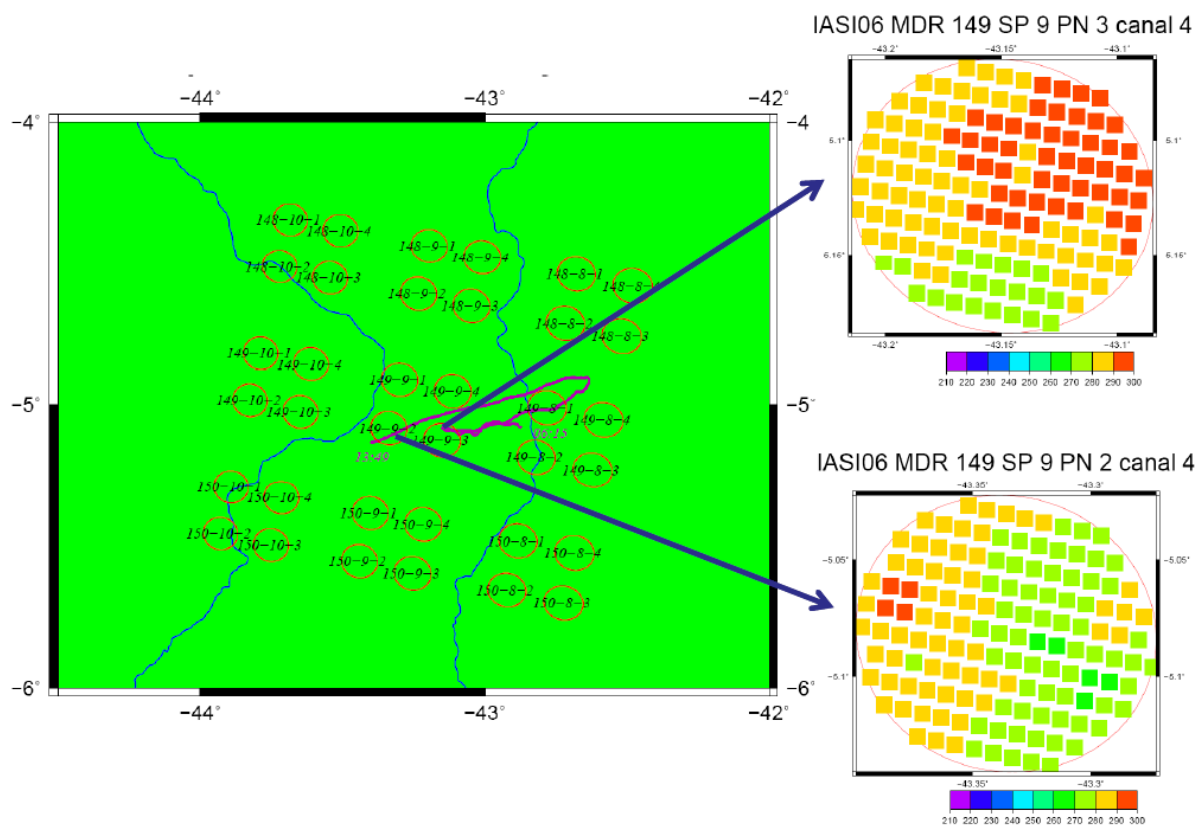


Figure 25. Trajectoire (violet) de la nacelle IASI-ballon pour le vol de juin 2006 depuis Teresina (Brésil). Les ellipses rouges représentent les pixels IASI le même jour (passage du matin). Des mesures simultanées par AVHRR (imageur infrarouge) sont également représentées dans le canal 4 ( $10.3 - 11.3 \mu\text{m}$ ) pour deux pixels en bonne coïncidence avec IASI-ballon.

Le site de lancement de Teresina nous permet de faire des mesures dans une atmosphère tropicale qui intéresse beaucoup les scientifiques en raison des échanges entre troposphère et stratosphère qui se produisent via des injections d'espèces chimiques et de vapeur d'eau. Cependant, dans cette région de nombreux nuages sont présents (ITCZ = *InterTropical*

*Convergence Zone*), ce qui rend difficile la validation de sondeurs au nadir dans ces régions pourtant d'un grand intérêt pour la météorologie opérationnelle (pour lequel IASI a été spécialement conçu). Pour illustrer cette difficulté j'ai représenté dans la Figure 25 la trace au sol des mesures IASI en coïncidence avec les mesures IASI-ballon. On peut constater une très bonne coïncidence spatiale. La coïncidence temporelle est également bonne. Toutefois, lorsqu'on examine les images infrarouges enregistrées par AVHRR sur MetOp (simultanément à IASI), on peut constater qu'une partie des pixels IASI est contaminé par des nuages (températures plus froides). Le pixel de la mesure IASI-ballon représente approximativement un des carreaux de couleur dans l'image AVHRR. On constate alors que si la mesure de référence est claire (au centre du pixel IASI 149-9-3 par exemple), ce n'est pas le cas du pixel IASI qui est partiellement nuageux. La comparaison des radiances, des profils ou des colonnes doit alors tenir compte de ces différences. J'en reparlerai dans le chapitre consacré aux perspectives (chapitre 8).

### 4.3 Préparation ou développement d'expériences spatiales

Une de mes activités scientifiques importante de ces dernières années a porté sur la préparation de futures missions spatiales ou l'accompagnement de missions existantes en développant des études de modélisation du transfert radiatif et d'inversion des données. Il s'agit à la fois d'un travail d'expertise et d'un travail de recherche à part entière. Ce paragraphe est donc étroitement lié à certaines parties du chapitre 6 consacré au transfert radiatif et à l'inversion. Je donne dans ce paragraphe quelques exemples qui montrent la diversité des études en lien avec cette thématique.

#### 4.3.1 Sondage stratosphérique depuis l'espace

J'ai été impliqué dans les missions spatiales ACE (Canada), ILAS et ILAS-II (Japon). Ces trois expériences utilisent le soleil comme source (occultation solaire). Il est donc nécessaire, suivant le domaine spectral couvert, de modéliser finement le spectre solaire. De plus, pour l'expérience ILAS, la bande A de l'oxygène moléculaire est utilisée pour obtenir des informations sur les lignes de visées ou/et le profil vertical de température et de pression. Une erreur dans la modélisation des spectres dans cette région spectrale a donc un impact important sur tous les produits de niveaux 2.

C'est dans ce contexte que nous avons réalisé un vol de l'expérience LPMA dans le proche infrarouge afin d'enregistrer des spectres à haute résolution spectrale pour tester les paramètres spectroscopiques et nous permettre de modéliser le spectre solaire dans la bande A de l'oxygène moléculaire. La Figure 26 présente un état des lieux des problèmes rencontrés :

- Le spectre solaire de Kurucz [1995], utilisé par les japonais de ILAS et considéré à l'époque comme une référence, présente des raies inexistantes ou ayant des intensités en désaccord avec nos mesures
- La banque de données spectroscopique de O<sub>2</sub> (HITRAN96) présentait plusieurs problèmes (largeur des raies de l'isotope principal, positions inexacts des raies du second isotope, absence de données pour le troisième isotope).

Notons que les paramètres spectroscopiques de O<sub>2</sub> que nous avons testés sont ceux qui étaient utilisés par les scientifiques japonais (HITRAN96) et que les paramètres de HITRAN2000 (et les versions ultérieures), dont certains sont basés sur nos mesures, corrigent maintenant une partie des problèmes observés avec HITRAN96.

La Figure 26 présente également la modélisation que nous avons obtenue après correction des paramètres spectroscopiques (position du second isotope, ajout de paramètres pour le troisième) et nouvelle paramétrisation du spectre solaire. Ce dernier a été obtenu par ajustement d'un ensemble de raies (environ 90) reproduites par une superposition de

lorentzienne et de gaussienne. La Figure 27 présente le nouveau spectre solaire. On peut mesurer l'importance de ces nouveaux paramètres avec la Figure 28 qui montre une simulation d'un spectre ILAS. On peut constater que la nouvelle spectroscopie de  $O_2$  et le nouveau spectre solaire améliorent significativement la transmission calculée, ce qui modifie donc l'analyse des mesures spectrales correspondantes. A titre d'exemple, les spectres hors atmosphère (i.e. uniquement le spectre solaire), ont pu être utilisés par l'équipe japonaise du NIES pour obtenir, grâce à nos travaux, de l'information sur la fonction d'appareil des instruments ILAS et ILAS-II.

Nous avons entrepris un travail de longue haleine pour caractériser et modéliser le spectre solaire dans tout le domaine spectral couvert par l'expérience LPMA ou par des expériences spatiales utilisant la technique de l'occultation solaire (ATMOS et ACE) [Bureau, 2009]. A ce jour, plusieurs domaines spectraux sont en bonne voie d'analyse ( $2000-3090\text{ cm}^{-1}$  et  $4000-4300\text{ cm}^{-1}$ ). Ce travail est mené en parallèle avec notre activité de modélisation de la photochimie photosphérique (cf. § 7.5).

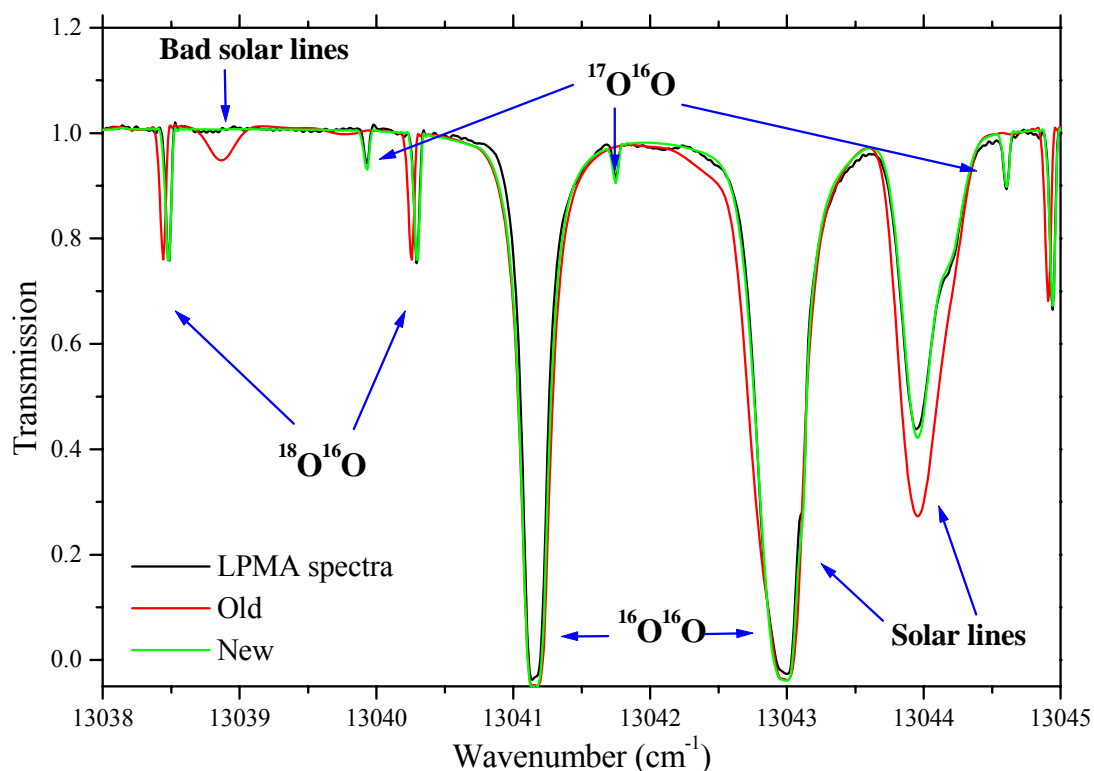


Figure 26. Illustration des problèmes de modélisation de la région de la bande A de l'oxygène moléculaire.

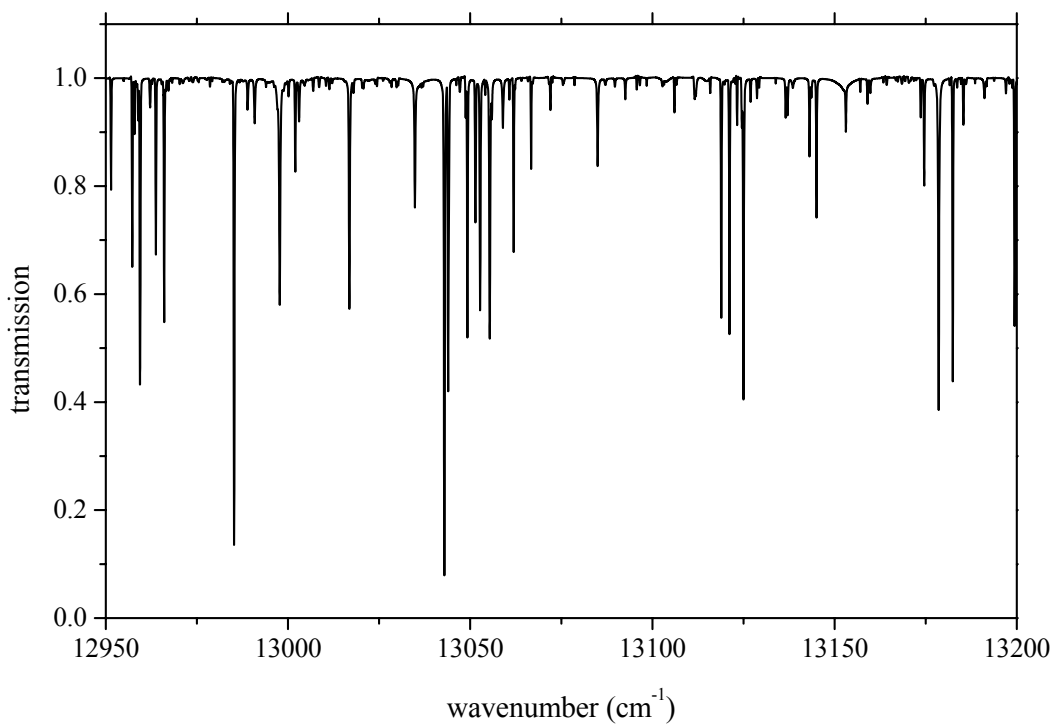


Figure 27. Spectre solaire déterminé à partir des mesures ballon du vol LPMA10.

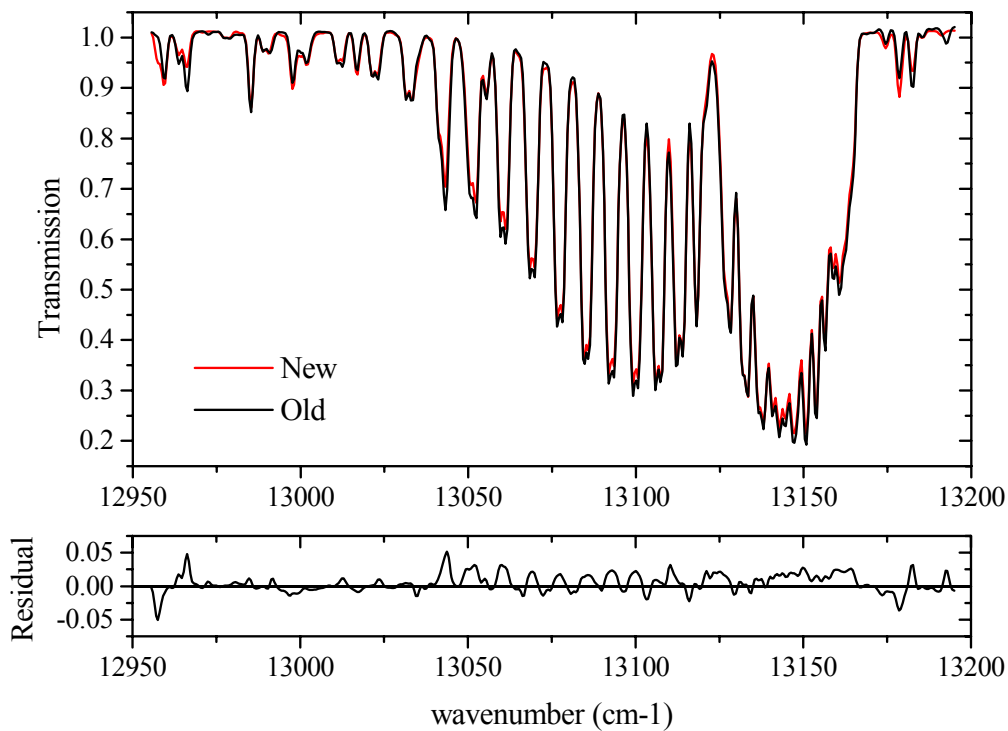


Figure 28. Simulation d'un spectre ILAS dans la région spectrale de la bande A de l'oxygène moléculaire, avec HITRAN96 et le spectre solaire Kurucz (*Old*), et avec nos paramètres de O<sub>2</sub> et notre spectre solaire (*New*).

### 4.3.2 Sondage troposphérique depuis l'espace

Le sondage au nadir depuis l'espace en utilisant la spectroscopie par transformation de Fourier infrarouge (FTIR) est actuellement une technique essentielle à la fois pour sa couverture globale, pour le nombre d'espèces qu'elle permet de mesurer, et pour sa relativement bonne résolution verticale dans la troposphère et la basse stratosphère. Compte tenu des enjeux actuels et des objectifs scientifiques à court et moyen termes, ce type de sondage s'est déjà développé mais va continuer à progresser dans les années qui viennent. Le savoir faire expérimental de notre équipe est précieux pour contribuer à l'amélioration des concepts instrumentaux et pour contribuer à la préparation de futures missions au sein de groupes scientifiques constitués en fonction des appels d'offre (ESA, CNES, JAXA, CSA, ...).

#### 4.3.2.1 Interferometric Monitor of Greenhouse gases (IMG)

J'ai débuté mes travaux sur le sondage de la troposphère en utilisant les mesures de l'expérience IMG (*Interferometric Monitor of Greenhouse gases*) [Ogawa, 1994] développé par le MITI au Japon et embarqué sur la plateforme ADEOS. Je me suis intéressé à la modélisation des spectres (pour les problèmes de transfert radiatif) et à l'inversion de la colonne de CO (pour la chimie troposphérique). Ce type d'étude est également l'occasion de tester ou de choisir un ensemble de paramètres spectroscopiques le mieux adapté et de conseiller en conséquence personnes chargées de l'analyse opérationnelles des mesures spatiales. La Figure 29 montre l'impact de l'amélioration des paramètres spectroscopiques disponibles dans la banque de données HITRAN 96 sur l'inversion des spectres IMG. A l'époque, de nouvelles données spectroscopiques sur les intensités et les largeurs des raies de H<sub>2</sub>O (Toth au JPL, Claveau *et al.* au LPMAA) ont conduit à une modélisation plus exacte des spectres observés et ont rendu l'inversion de CO (et aussi de CO<sub>2</sub>) plus précise et plus fiable.

Le travail d'analyse des spectres IMG a également porté sur l'étude de la fonction instrumentale *a posteriori* (une fois l'instrument en orbite et après la *comissioning phase*) [Payan *et al.*, 1998b]. Cette étude a notamment mis en évidence une dissymétrie de la fonction instrumentale avec un impact non négligeable sur les colonnes de CO inversées. Dans la continuité de ce travail, nous avons poursuivi nos études sur l'inversion de spectres FTIR en visée vers le bas, et ce dans le cadre d'une collaboration avec le Service d'aéronomie [Clerbaux *et al.*, 1999]. Cette collaboration a conduit à tester et comparer les inversions de différents algorithmes (estimation optimale/ réseau de neurones) [Clerbaux *et al.*, 2002]. Durant la même période, une collaboration avec le Kurtchatov Institute (Moscou) nous a permis de poursuivre les inversions de colonnes de CO pour plusieurs orbites, ce que ne permettait pas notre algorithme LARA pour des raisons de temps calcul prohibitif [Romanov *et al.*, 2002].

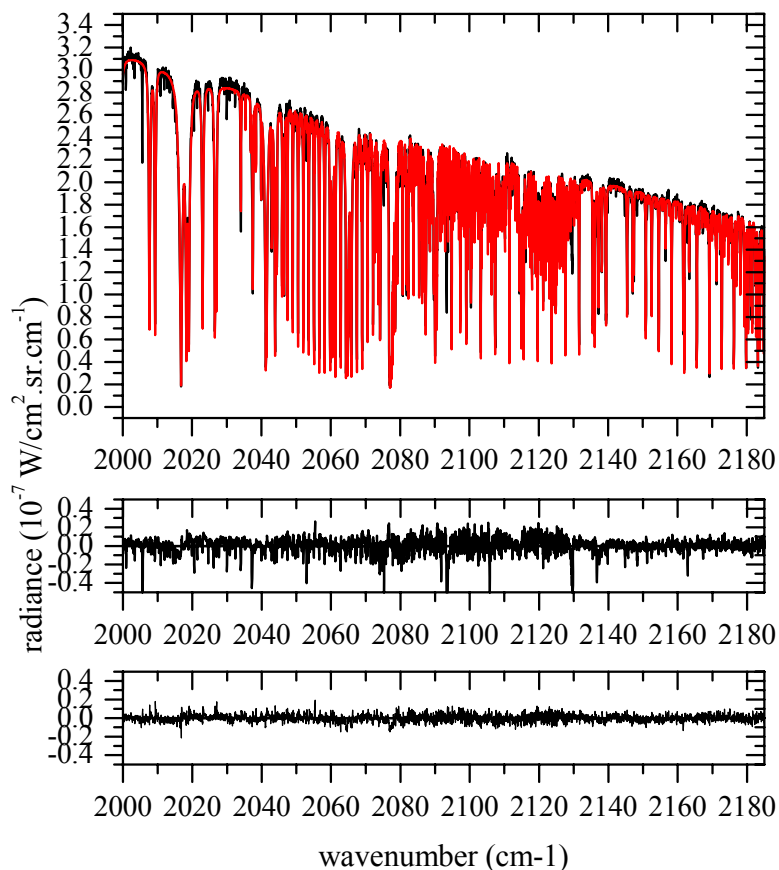


Figure 29. Spectre enregistré par IMG et spectre ajusté par l'algorithme LARA. Influence sur le résidu de l'amélioration des paramètres spectroscopiques des raies de H<sub>2</sub>O.

#### 4.3.2.2 Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI)

La plate-forme météorologique MetOp, qui comporte les sondeurs infrarouge (IR) IASI [Camy-Peyret, 2007a] et UV-visible (UV-vis) GOME-2, ainsi que le sondeur HIRS et les sondeurs AMSU-A et MHS (micro-ondes), a été lancée le 19 octobre 2006. Les 3 exemplaires successifs permettront de mesurer les distributions, à l'échelle globale, d'une série de constituants importants pour la chimie atmosphérique et le climat (CO, CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>CO, SO<sub>2</sub>), et ce durant 15 ans. Les produits de niveau 2 (concentrations) sont générés à EUMETSAT en quasi-temps réel et distribués aux agences météorologiques (et aux utilisateurs scientifiques).

Depuis une quinzaine d'années, les laboratoires français participent à la préparation du volet 'chimie-climat' de la mission IASI, en effectuant des mesures de paramètres spectroscopiques en laboratoire pour améliorer les bases de données spectroscopiques pour les espèces mesurées par MetOp, en développant des algorithmes d'inversion pour restituer les concentrations des gaz à partir des spectres mesurés, en mettant au point des systèmes de validation au sol ou embarqués (ballons), et en développant les moyens adéquats pour exploiter au mieux les mesures satellitaires dans les modèles de chimie-transport atmosphérique, notamment à l'aide d'outils comme l'assimilation de données (pour contraindre l'état de l'atmosphère) et l'inversion de sources (pour contraindre les sources d'émission).

Fort de mon expérience avec IMG, j'ai pu m'impliquer rapidement dans l'expérience IASI dont Claude Camy-Peyret était un élément moteur depuis plusieurs années. J'ai donc participé avec l'équipe à de nombreux volets de ces études notamment en ce qui concerne le

transfert radiatif et la validation. (cf. § 4.2 et chapitre 6). Nous avons joué un rôle actif au sein du GTSSI ou ISSWG (Groupe de Travail Scientifique sur le Sondage IASI, dont Claude Camy-Peyret assure la coprésidence) pour la préparation de la mission scientifique en particulier le sondage des espèces  $O_3$ ,  $CO$ ,  $CH_4$  et  $N_2O$ .

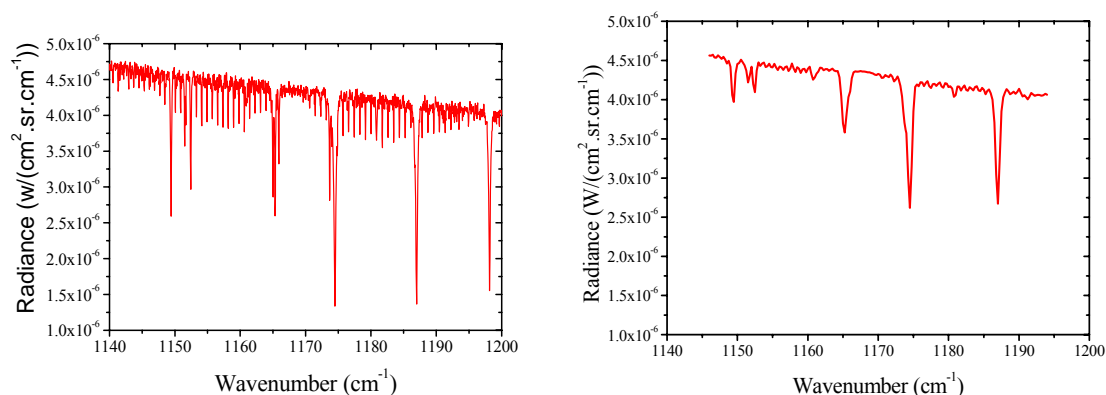


Figure 30. Spectre à la résolution IASI (à droite) obtenu avec un spectre IASI-ballon (à gauche) dans une micro-fenêtre utilisée pour l'inversion de  $N_2O$ .

Pour cela j'ai développé des algorithmes de recherche pour l'analyse des mesures du futur instrument, en liaison avec l'expérience IASI-ballon. Nos spectres ballon sont par exemple convolués par une fonction *ad hoc* que nous avons déterminée afin de générer des spectres « à la IASI » (« IASI-like », cf. Figure 30). Ces spectres IASI sont ensuite utilisés afin de tester les outils d'analyse (inversion de colonne ou de profil, détection et caractérisation de nuages ...) par la communauté scientifique impliquée dans le projet. La Figure 31 montre la comparaison entre les colonnes de  $N_2O$  obtenues par inversion des spectres ballon à la résolution de IASI/MetOp (les spectres « à la IASI ») et celles à la résolution de IASI-ballon. On peut constater que la résolution spectrale moins bonne de IASI ne dégrade pas trop la qualité des mesures de la colonne verticale du protoxyde d'azote.

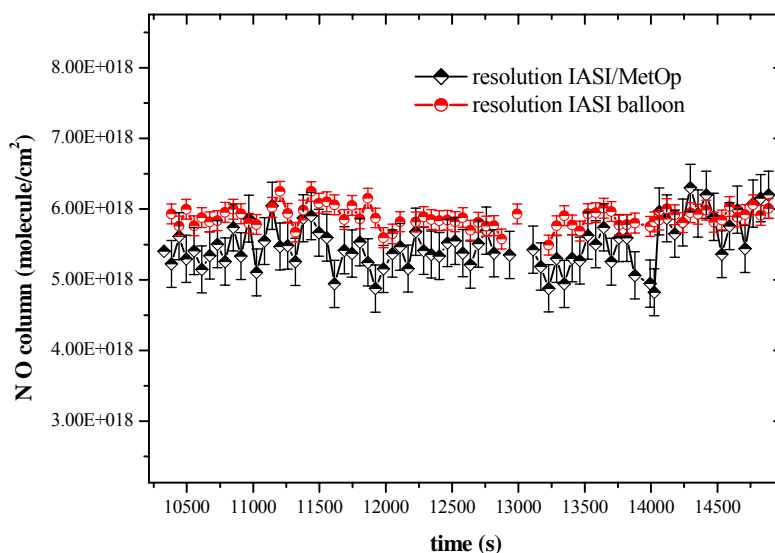


Figure 31. Comparaison entre les colonnes à la résolution de IASI/MetOp et celles à la résolution de IASI-ballon.

A la suite du lancement de satellite MetOp le 19 octobre 2006 j'ai bien évidemment participé à la validation de l'instrument IASI (cf. § 4.2.4).

#### 4.3.2.3 Proposition TROC

S'appuyant sur l'expérience instrumentale et théorique de notre équipe dans le domaine du sondage à distance, nous avons préparé et déposé en 2003, avec d'autres laboratoires, un projet spatial appelé TROC (*TRO*pospheric *C*hemistry and *C*limate) en réponse à l'appel de l'Agence Spatiale Européenne (ESA) sur les missions d'opportunité pour l'observation de la Terre [Camy-Peyret, 2004c].

Il s'agissait de la préparation scientifique d'une "petite mission" de type recherche destinée à l'observation, la compréhension des processus et par voie de conséquence la modélisation de la troposphère dans ses aspects chimie et climat. Nous avons, dans le cadre d'un mini-satellite (plate-forme de type Proteus au maximum), établi et confirmé les possibilités d'une configuration à 3 instruments principaux (spectromètre infrarouge, spectromètre UV-visible, imageur) pour une contribution significative à la mesure depuis l'espace d'espèces clés (espèces sources, précurseurs de l'ozone, gaz à effet de serre, espèces réactives) pour les études de chimie et de bilan radiatif troposphérique. Un exemple de résultat scientifique escompté avec TROC est donné dans la Figure 32 avec une cartographie du monoxyde de carbone mesuré à partir des spectres enregistrés par l'expérience japonaise IMG en juin 1997 [Ogawa, 1994].

Les objectifs scientifiques de la mission TROC concernaient la mesure depuis l'espace de la composition de la troposphère, la contribution à une meilleure compréhension de la chimie troposphérique, la quantification des émissions des espèces à la surface et l'établissement de la capacité oxydante de la basse atmosphère en particulier en ce qui concerne l'ozone. Il s'agissait également de contribuer à établir la part respective de la contribution anthropique et de la contribution naturelle à ces phénomènes.

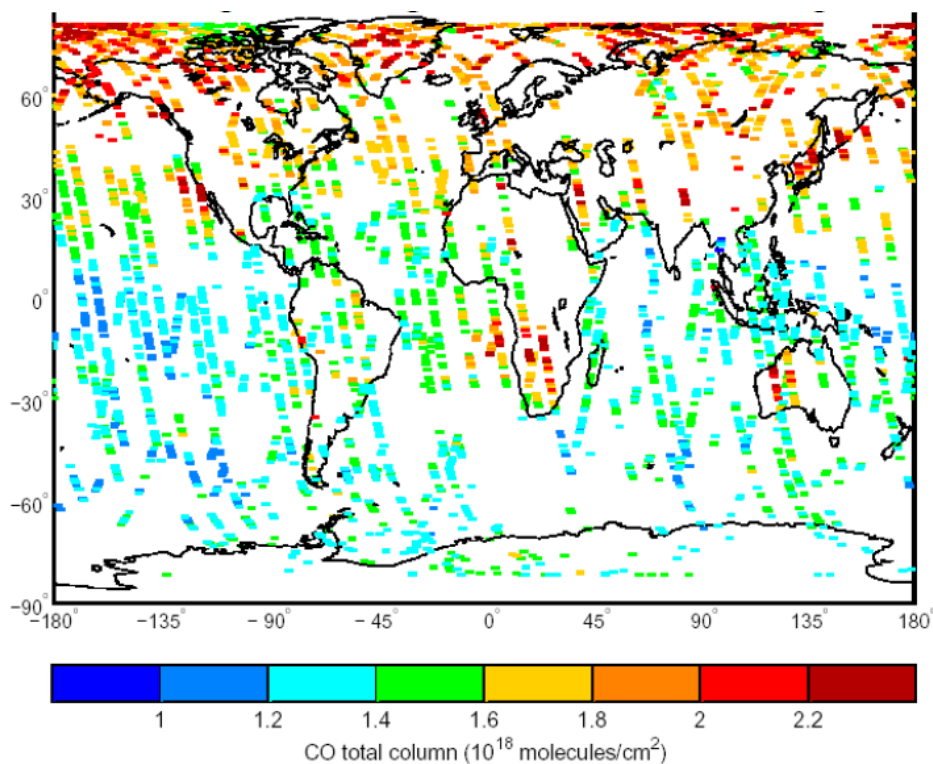


Figure 32. Mesure par IMG de la colonne de CO (16 au 19 Juin 1997, Service d'Aéronomie du CNRS).



En particulier, ces objectifs s'articulaient autour de plusieurs thématiques :

- pollution d'origine industrielle : étudier l'impact des grandes métropoles des pays industrialisés et/ou en voie de développement, contribuer à caractériser les panaches urbains et à comprendre les processus de leur advection/dispersion/transport à longue distance et suivre la transformation chimique des polluants primaires
- impact du brûlage de la biomasse : détecter et surveiller les épisodes majeurs de brûlage massif en zone intertropicale ou des feux de forêt majeurs dans d'autres régions. Contribuer à établir le bilan des espèces chimiques qui sont injectés par ces phénomènes dans la troposphère libre et suivre la transformation chimique des précurseurs de O<sub>3</sub>
- interaction chimie-climat : quantifier de façon globale la distribution et les sources des espèces qui contribuent à l'effet de serre, avec comme priorité (en plus de H<sub>2</sub>O) les espèces CH<sub>4</sub>, O<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O et les chlorofluorocarbones. Essayer d'atteindre une précision suffisante pour séparer les sources et les puits océaniques et continentaux du CO<sub>2</sub>. Contribuer à démontrer la faisabilité et commencer la mise en œuvre d'un système spatial qui permettrait le suivi de l'impact des protocoles de Montréal et de Kyoto sur la chimie et le climat. Mieux comprendre en cas d'éruption volcanique majeure les phénomènes de dispersion/transformation des panaches volcaniques riches en SO<sub>2</sub> et suivre les processus qui les convertissent en aérosols contribuant au changement climatique.

Le projet a été développé en collaboration avec le Canada (*Environment Canada*, Toronto), la Belgique (IASB), l'Allemagne (IMK), les Pays Bas (KNMI). Des scientifiques d'une dizaine de pays ont participé également comme utilisateurs potentiels des mesures de l'expérience (en tant que membres du *Science Team*) et je me suis particulièrement investi dans la préparation de cette proposition.

Une orbite polaire a été retenue pour la mission (Figure 33). Elle devait permettre de survoler (à des moments différents du cycle diurne ou nocturne) la même région avec un espacement de quelques jours. Les mesures devaient échantillonner le cycle diurne de certaines espèces (NO<sub>2</sub>) ou encore de quantifier l'impact dans le temps et l'espace de phénomènes comme les brûlages de biomasse ou les éruptions volcaniques.

L'agence spatiale européenne (ESA) a classé la proposition TROC à la 5<sup>ème</sup> place sur une liste courte de 6 propositions (une trentaine de projets avaient été déposés). La mission TROC a donc été considérée favorablement par l'ESA, mais n'a pas été retenue pour une phase A (étude technique de faisabilité avec mise en concurrence de deux industriels). Toutefois, ce bon rang et les besoins de la communauté scientifique pour les données géophysiques correspondantes nous ont conduits à maintenir et poursuivre nos recherches dans le domaine des sondeurs infrarouges en visée au nadir pour le sondage de la troposphère (voire également le paragraphe 3.3 sur l'expérience IASI-ballon, et le paragraphe suivant sur la proposition TRAQ).

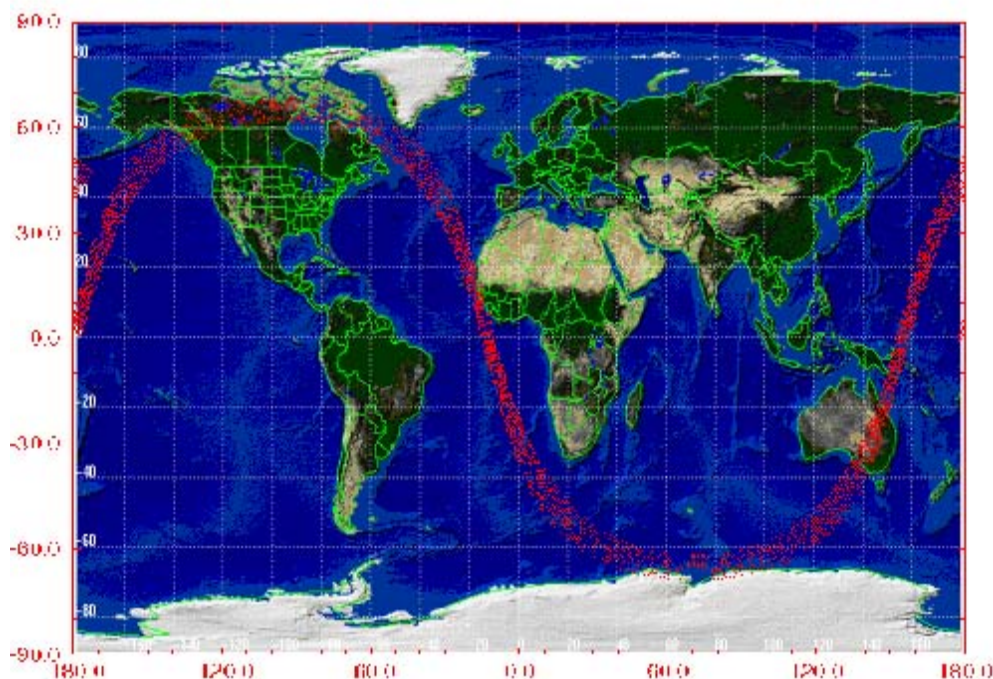


Figure 33 : Couverture de TROC sur une orbite.

#### 4.3.2.4 Proposition TRAQ

Après la proposition initiale TROC, une proposition de mission spatiale sur la composition troposphérique et la qualité de l'air « *Tropospheric composition and Air Quality* » dite TRAQ a été soumise à l'ESA en 2005 en réponse à l'appel d'offre des missions *Earth Explorer* dans le cadre du programme *Living Planet* [Levelt and Camy-Peyret, 2005]. TRAQ devait être la première mission totalement dédiée à la qualité de l'air et aux études scientifiques de la composition de la basse atmosphère et du changement climatique. TRAQ devait pouvoir fournir des informations de très grande qualité sur la troposphère, avec une résolution spatiale élevée, par une synergie optimale entre trois instruments complémentaires. Une orbite optimisée a été proposée qui offre une couverture spatiale presque globale et un échantillonnage temporel diurne élevé avec jusqu'à 5 passages par jour sur l'Europe et dans les autres régions à latitude moyenne. Avec ces capacités améliorées, TRAQ pouvait également servir de mission de démonstration pour le développement de futurs sondes opérationnels dans le cadre de GMES (*Global Monitoring for Environment and Security*).

Ainsi TRAQ devait permettre de contribuer à 3 champs scientifiques essentiels :

- Qualité de l'air et composition de la troposphère à l'échelle globale et régionale.
- Sources et puits de gaz à l'état de trace et d'aérosols.
- Composition de la troposphère et changement climatique.

Les objectifs de la mission TRAQ visaient donc la basse atmosphère et plus particulièrement la mesure avec une résolution spatiale et temporelle adéquate des constituants primaires pour la qualité de l'air : O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, CO, SO<sub>2</sub>, les aérosols, et les constituants liés au climat, CH<sub>4</sub>, les aérosols, l'ozone troposphérique et ses précurseurs. Un ensemble équilibré de 3 instruments complémentaires a été choisi pour atteindre les objectifs de la mission:

- Un spectromètre imageur à réseau (TROPOMI) visant au nadir dans l'UV, le visible et le proche infrarouge.

- Un nouveau spectromètre à transformation de Fourier statique (SIFTI) visant au nadir dans l'infrarouge thermique et l'infrarouge courte longueur d'onde.
- Un radiomètre imageur multi visée résolvant la polarisation (OCAPI)

Cet ensemble d'instruments combinait d'une manière innovante l'héritage d'instruments actuels mesurant la composition troposphérique. La mission TRAQ a été classé 2<sup>ème</sup> par l'ESA au sein d'un groupe de six missions qui ont fait l'objet d'études de phase 0. J'ai été plus particulièrement impliquée dans l'étude du sondeur infrarouge SIFTI en réalisant un ensemble de simulations des performances de l'instruments durant l'étude de phase 0 de l'ESA et l'étude de phase A menée en parallèle au CNES.

Il s'agissait, par exemple, de déterminer les meilleurs domaines spectraux que devait couvrir SIFTI. On constate à partir de ce que peut mesurer potentiellement un instrument depuis l'espace (cf. Figure 34 basé sur les observations de l'instrument japonais IMG en 1996) que pour mesurer l'ozone et CO, deux régions spectrales sont particulièrement adaptée. Toutefois, pour des raisons techniques, opérationnelles et financières, les bandes spectrales de ces espèces ne peuvent pas être complètement couvertes et le meilleur intervalle (la largeur étant contrainte par les caractéristiques techniques de l'instrument) doit être déterminé de manière à obtenir l'information la plus complète sur la distribution verticale des espèces cibles.

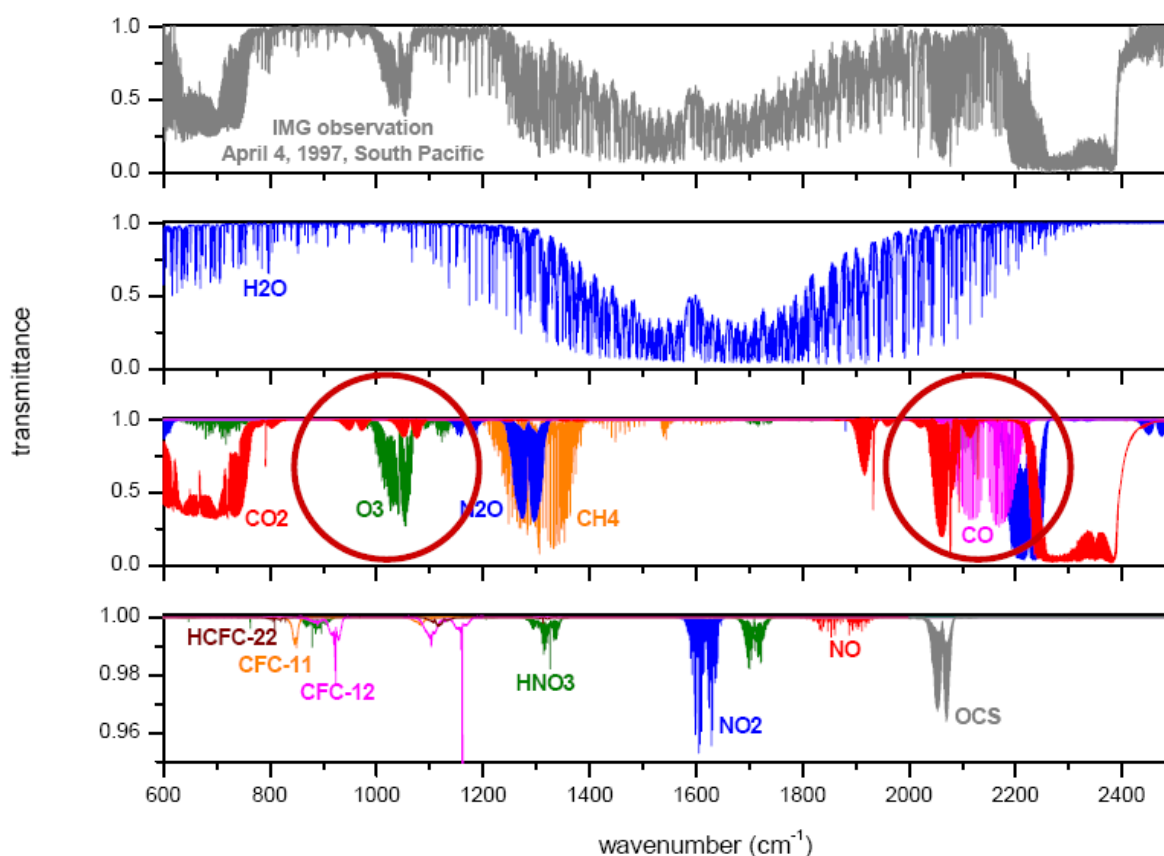


Figure 34 : Spectre mesuré au nadir par l'expérience satellitaire IMG en 1996 et simulation de la transmission des principales espèces contribuant au transfert radiatif (C. Clerbeaux, SA)

J'ai participé aux activités du groupe scientifique TRAQ (GST) coordonné par le CNES. Dans ce cadre, nous avons par exemple mené pour le CNES une étude visant à

déterminer, le domaine spectral ayant été fixé grâce aux études précédentes, le seuil du rapport signal sur bruit et la résolution spectrale (différence de marche maximale) qui conduisent au meilleur compromis entre complexité instrumentale et contenu en information.

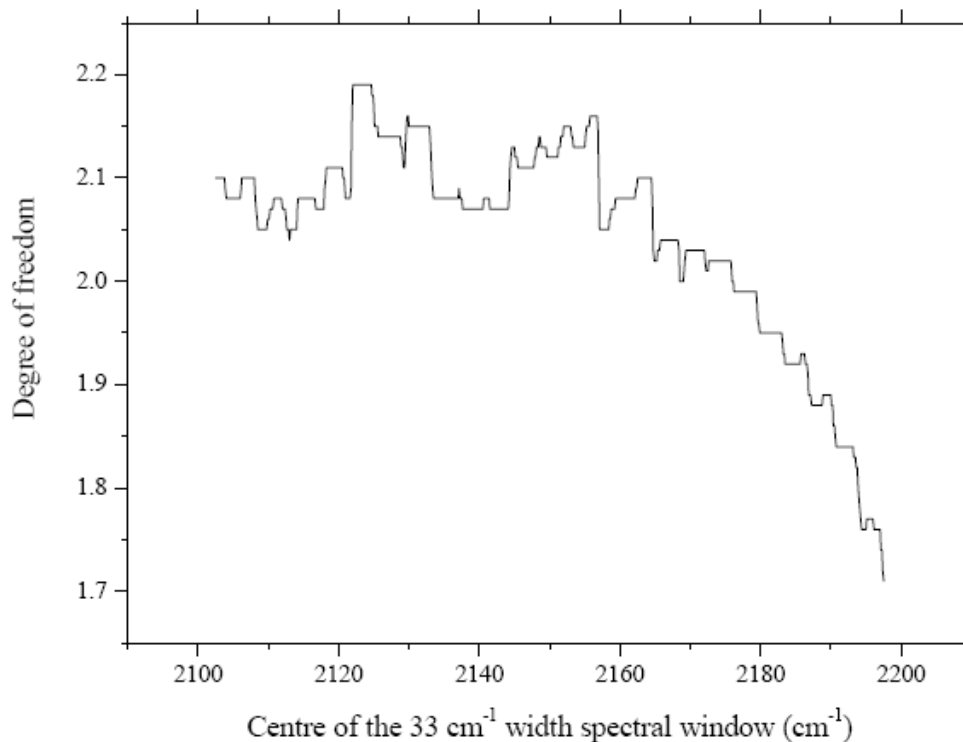


Figure 35 : Nombre de degré de liberté obtenu par inversion du profil vertical de CO dans un domaine spectral dont la largeur est fixée à 30 cm<sup>-1</sup>, mais dont le centre varie de 2100 à 2200 cm<sup>-1</sup>.

#### 4.4 Autres projets spatiaux

Je tenais à mentionner en quelques lignes la participation à quelques projets dont je ne présenterais pas ici les détails. Ces projets ou études ont consisté par exemple à utiliser les mesures MIPAS-Envisat pour inverser les vents dans la stratosphère à partir du déplacement spectral des raies de CO<sub>2</sub> par effet Doppler, de la participation à la préparation de mission spatial pour le sondage de la stratosphère (PREMIER) ou encore de la définition des caractéristiques instrumentales optimales pour la mesure depuis l'espace de différentes (CAMELOT).

Dans le projet ON TRAQ, nous avons participé à l'élaboration d'une architecture algorithmique appropriée à une mission de type TRAQ (cf. § 4.3.2.4). Les algorithmes devaient être à même de générer les produits géophysiques cibles de la mission (colonne verticale de NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>CO, CH<sub>4</sub>, colonne troposphérique, profils verticaux de O<sub>3</sub> et CO, ...). L'architecture proposée est construite sur l'expertise acquise et propose des synergies entre instruments (observations effectuées dans des domaines spectraux différents). C'est le cas par exemple pour l'ozone et le monoxyde de carbone. La contribution du LPMAA a aussi porté sur l'algorithme de caractérisation des scènes visées par les sondeurs et sur la décontamination nuageuse des spectres infrarouges (en amont des algorithmes propres à chacune des espèces cibles).

Un dernier exemple de projet auquel j'ai participé est lié aux mesures de paramètres physico-chimiques depuis l'espace concerne la mesure simultanée de l'ozone et des vents dans la stratosphère en utilisant un jeu bien documenté de raies spectrales de cette espèce et la détermination de leur déplacement par effet Doppler. Ce projet ESA a eu un prolongement par un deuxième contrat d'étude (avec l'Agence Spatiale Canadienne) obtenue par l'équipe "Vibration-rotation" du LPMAA pour la mesure au laboratoire de paramètres spectroscopiques de  $O_3$  et  $NH_3$  à la précision requise pour les mesures atmosphériques correspondantes.

## 5 La plateforme expérimentale QUALAIR

### 5.1 Contexte

La couche limite, est la « tranche d'atmosphère » dans laquelle nous vivons. D'une épaisseur d'un à trois kilomètres, elle est le siège d'une pollution visible, directement ou quasi-directement influencée par les émissions polluantes que nous y injectons. Contrairement aux impacts climatiques des émissions de gaz à effet de serre qui se manifestent sur des dizaines ou centaines d'années, l'impact des émissions polluantes sur la qualité de l'air dans la couche limite est beaucoup plus rapide : de quelques heures à quelques semaines. Ces temps caractéristiques dépendent des processus physiques et chimiques agissant sur les polluants : la dispersion, les transformations chimiques et le dépôt au sol et sur la végétation [Delmas, 2005]. Malgré les progrès enregistrés ces dernières années, l'air des villes reste souvent une menace pour la santé humaine et pour l'environnement.

La qualité de l'air est aujourd'hui principalement quantifiée par l'intermédiaire d'espèces clés comme les  $\text{NO}_x$ ,  $\text{CO}$ ,  $\text{SO}_2$ , les espèces organiques (les composés organiques volatils d'origine industrielle ou biogénique), et l'ozone. Les questions actuelles en lien avec la qualité de l'air sont intrinsèquement liées à la chimie troposphérique de l'ozone. Les émissions dites primaires, la pyroconvection, le transport intercontinental et la chimie représentent tous une part significative de la photographie générale de la qualité de l'air à l'échelle locale ou régionale. Les éclairs par exemple jouent un rôle important dans la production de  $\text{NO}_x$ , alors que les interactions avec la surface (végétations, océans) modifient les concentrations de gaz à l'état de trace qui interviennent dans la chimie troposphérique.

Pour le dioxyde d'azote, les questions essentielles portent aujourd'hui sur les tendances à long terme en modélisant précisément la très forte variation diurne sur une échelle temporelle et spatiale plus fine que ce que l'on sait modéliser aujourd'hui. Pour le dioxyde de soufre le seuil de détection de  $\text{SO}_2$  doit être amélioré afin de pouvoir faire le lien avec les quantités d'aérosols, et pour quantifier les émissions par les volcans. Depuis peu de temps, on mesure  $\text{CO}$  par satellite (MOPITT, IMG, IASI) et ces mesures ont permis des progrès importants sur les sources de cette espèce, mais il est nécessaire de mieux comprendre le transport vertical et de mieux quantifier le transport intercontinental. Une résolution verticale plus élevée constituerait une amélioration significative. Les mesures des composés organiques (récemment avec Schiamachy, MIPAS, ACE ou IASI) sont importantes à la fois pour quantifier les émissions (particulièrement les émissions biogéniques tropicales) et pour explorer leur impact potentiel sur l'abondance de OH et des aérosols organiques secondaires. Parmi ces espèces, on peut citer ici le formaldéhyde, le glyoxal, l'éthane et le peroxy acetyl nitrate (PAN) et bien d'autres composés aujourd'hui mesurés mais avec des précisions et une couverture géographique ou verticale limitée en fonction des espèces. Leurs bilans et leurs variabilités nécessitent d'être mieux comprises. Toutes ces familles de composés ont un effet très marqué sur l'abondance de l'ozone troposphérique dont la distribution, la variabilité et les tendances doivent être déterminées et les données assimilées pour la prévision de la qualité de l'air. Enfin, le rôle des aérosols a été souligné par leur transport à grande échelle, leurs effets radiatifs et leurs impacts comme noyaux de condensation nuageux.

Les gaz d'intérêt pour la qualité de l'air sont intrinsèquement liés au climat au travers de leur impact sur l'ozone troposphérique et du fait qu'ils sont des composantes du cycle du carbone, comme le méthane ou le monoxyde de carbone qui modifient l'abondance de OH et donc celui de l'ozone. Ces interactions chimie-climat représentent un processus clé qui doit être étudié et mieux compris.

Pour revenir aux problèmes de santé, l'air que nous respirons n'a donc pas toujours une bonne qualité. Il contient parfois des gaz ou des particules toxiques par leurs propriétés physiologiques ou chimiques. Ce type de pollution, qui affecte directement la santé des hommes, accompagne le développement économique des pays les plus industrialisés. Nos sociétés ont pris conscience récemment de ce problème. En effet, vers le milieu du XX<sup>e</sup> siècle, les rejets industriels de polluants dans l'atmosphère étaient tels que des épisodes de pollution très graves ont eu lieu, tuant par exemple un millier de personnes à Londres en 1952. La forte canicule de 2003 en France et en Europe a également conduit à des épisodes de forte pollution : les deux phénomènes sont liés et les impacts sur la mortalité se combinent. Depuis ces événements, nos sociétés ont cherché à surveiller la qualité de l'air et à contrôler les émissions polluantes.

Mais la pollution urbaine est complexe et difficilement mesurable dans sa globalité. Aujourd'hui, on mesure régulièrement dans les villes certains gaz ou aérosols considérés comme des indicateurs « réglementés » de la qualité de l'air urbain (dioxyde de soufre, oxydes d'azote, particules en suspension, ozone, monoxyde de carbone, composés organiques volatils et plomb). D'autres gaz devraient être mesurés comme les organochlorés (dioxines et furanes), les hydrocarbures aromatiques (polycycliques/monocycliques), les métaux lourds et les gaz à effets de serre même si ces derniers ne sont pas des polluants urbains au sens strict du terme.

Les sources émettrices de polluants dans l'atmosphère peuvent être d'origine anthropique (domestique, industrie, agriculture, transports, etc.) ou naturelle (volcans, feux, forêts, etc.). Dans le cas des pollutions industrielles (où le dioxyde de soufre est un des principaux traceurs), le contrôle, l'amélioration des processus industriels, la désindustrialisation ont permis une baisse rapide et significative des émissions à l'échelle du globe. Par contre, pour la pollution automobile, les bénéfices dus à l'amélioration du parc de voitures (pots catalytiques, réduction de la consommation) sont réduits par l'augmentation continue du trafic. Le transport est actuellement un des secteurs les plus importants d'émission de polluants notamment pour les NO<sub>x</sub> et les COV qui produisent une pollution photochimique sous l'effet de l'ensoleillement qui s'accompagne de la production d'ozone, source majeure de pollution en zone urbaine et périurbaine.

Pour mieux évaluer le bénéfice des mesures de réduction des émissions polluantes, les pouvoirs publics mettent en œuvre des programmes de recherche scientifique complexes. Ces derniers sont indispensables à une meilleure compréhension des mécanismes de transport et de transformation chimique des polluants dans l'air.

## 5.2 Objectifs de la plateforme QualAir

La caractérisation et la mesure précise des concentrations des polluants de l'air urbain sont donc devenues une priorité non seulement pour la recherche dans le domaine de l'environnement atmosphérique, mais également pour les autorités de santé publique. Le projet QualAir que nous avons développé à l'UPMC avec l'IPSL s'insère dans les actions nationales et internationales qui visent à comprendre, contrôler et prévoir les phénomènes de pollution en milieu urbain et périurbain et plus généralement la chimie troposphérique d'une grande métropole urbaine comme Paris. La station QualAir est une plate-forme expérimentale de recherche et d'observation mise en place par le LPMAA et le LATMOS, avec le soutien de l'Université Pierre et Marie Curie (UPMC) et de l'Institut Pierre Simon Laplace (IPSL). Une des grandes questions actuelles est de bien comprendre les processus de pollution locale (sources d'émission, précurseurs) et longue distance (transport, sources secondaires).

L'objectif de la station QualAir est multiple et porte sur le développement d'instrumentation et de méthodes d'analyse innovantes permettant :

- de constituer un noyau de recherche sur la composition de l'air troposphérique urbaine avec des instruments innovants adaptés aux enjeux liés à l'environnement
- de disposer dans une grande métropole de moyens de mesures de paramètres atmosphériques à un niveau d'altitude (tours de Jussieu) permettant une utilisation optimale des observations au sol du réseau de pollution de la ville de Paris (AIRPARIF),
- de fournir des moyens de validation au sol dans une zone d'émission de polluants atmosphériques, pour les nouvelles observations spatiales qui visent à évaluer de façon globale les émissions de polluants gazeux et particulaires
- de disposer d'une base de données inscrites dans la durée et si possible en continu dans le milieu urbain, compartiment atmosphérique qui est actuellement sous échantillonné par rapport aux zones non polluées (besoins des modélisateurs pour évaluer la dispersion ou le transport, la variabilité, ...).
- de coupler les mesures de composition atmosphérique aux problèmes de santé publique (pneumologie, physiologie respiratoire) dont l'importance a été mise en évidence lors des épisodes récents de canicule et de pollution par l'ozone
- Participer à la formation des étudiants de l'UPMC attirés par les problèmes liés à l'environnement en leur offrant la possibilité de se familiariser avec des techniques instrumentales de pointe (travaux pratiques, stages de licence et master, thèses, postdoctoraux, ...).

Je donne ci-dessous une brève présentation de la plateforme expérimentale et je présente ensuite quelques résultats et perspectives.

### 5.3 Instrumentations

La plateforme expérimentale est localisée sur le campus Jussieu dans une pièce expérimentale de l'IPSL. La station QualAir regroupe plusieurs instruments mis en commun par notre équipe et par une équipe du LATMOS.

La mise en place des 3 instruments du LPMAA (le spectromètre à transformation de Fourier de QualAir, le CO11M et la station météorologique) a été menée par Pascal Jeseck, Isabelle Pépin et Yao Té, ils s'occupent également de l'acquisition et l'analyse des données de ces instruments. La station météorologique (équipement commercial) fournit la température, la pression, l'humidité et la direction du vent sur la terrasse qui surplombe la pièce expérimentale. Ils ont également implanté un analyseur commercial (Environnement SA) du monoxyde de carbone CO11M et écrit le logiciel de contrôle de cet instrument ainsi que le logiciel qui permet de le contrôler depuis Ivry-Sur Seine (le laboratoire n'est pas sur le même site que la plateforme Qualair). Cet instrument permet d'effectuer des mesures en continu de la concentration de CO sur la terrasse depuis 2007. Les données sont accessibles sur le site web de QualAir (<http://qualair.aero.jussieu.fr/>) depuis janvier 2009. Ces données seront également transférées vers la base de données ETHER de l'IPSL. Un exemple d'une série temporelle de mesure de CO est présenté dans la Figure 36.

La pièce maîtresse du dispositif consiste en un spectromètre à transformation de Fourier, STF QualAir [Té *et al.*, 2008]. Le cahier des charges de l'instrument a été préparé par Claude Camy-Peyret, Pascal Jeseck, Yao Té et Isabelle Pépin qui ont assuré l'achat (FTS, héliostat, dôme de protection, ...) son installation, les nombreux réglages et tests, et sa mise en œuvre sur la plateforme en mars 2007. Ils ont réalisés les premiers spectres solaires le 15 mars 2007. L'instrument effectue le sondage de l'atmosphère en absorption solaire. Les mesures réalisées jusqu'à présent sont optimisées pour étudier le dioxyde d'azote NO<sub>2</sub> vers



2914  $\text{cm}^{-1}$ . Mais il est possible de sonder d'autres espèces atmosphériques suivant les besoins scientifiques. L'instrument dispose d'un ensemble complet d'éléments optiques ou de détection pour couvrir l'ensemble du spectre de l'UV à l'infrarouge (250 nm à 18  $\mu\text{m}$ , cf. Figure 37. Les mesures spectroscopiques de laboratoire spécifiques en lien avec les programmes d'observation spatiaux sont possibles. L'instrument a par exemple été utilisé pour l'enregistrement de spectres de  $\text{NH}_3$  à différentes températures et pressions dans le cadre de la consolidation des données spectroscopiques pour l'instrument SWIFT du satellite Chinook de l'agence spatiale canadienne.

En parallèle, le LATMOS a mis en place un micro-lidar pour étudier la hauteur des nuages et la structure de la couche limite, un SAOZ (un spectromètre UV-vis à réseau utilisé pour mesurer  $\text{O}_3$  et  $\text{NO}_2$  à partir du rayonnement solaire rétrodiffusé) et un photomètre (du laboratoire d'Optique Atmosphérique, Lille, sous la responsabilité du LATMOS) fournissant des informations sur l'épaisseur optique des aérosols.

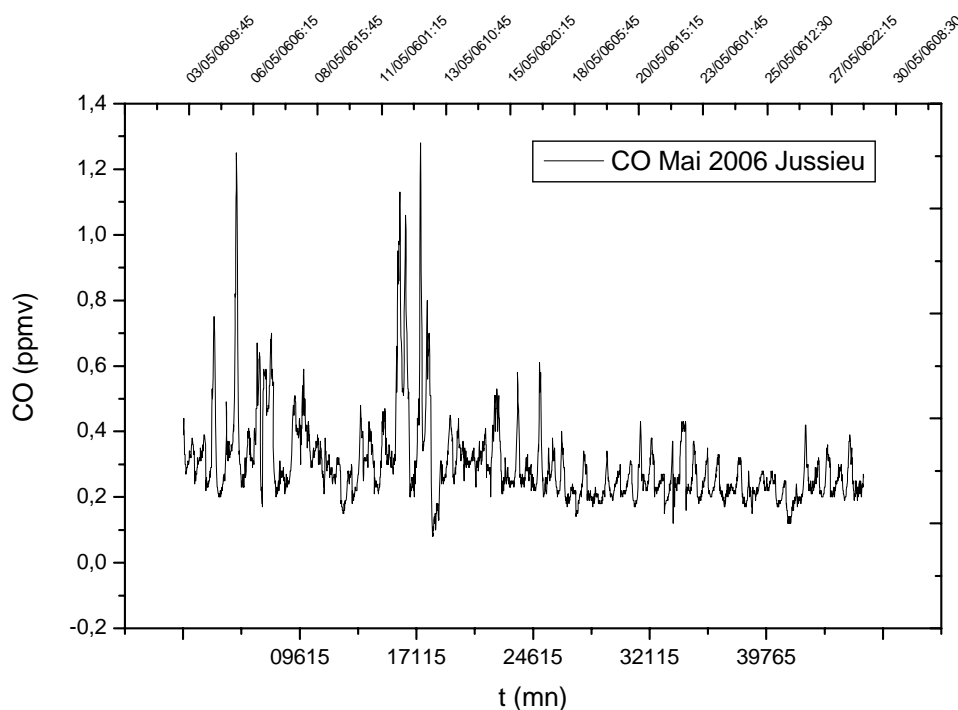


Figure 36. Mesures de la concentration du monoxyde de carbone avec une prise d'air sur le toit de l'université Pierre et Marie Curie.

## 5.4 Les premiers résultats

Le spectromètre QualAir couvre d'un très large domaine spectral, cf. Figure 37, de l'infrarouge à l'UV proche (250 nm à 18  $\mu\text{m}$ ) grâce à un ensemble très complet de sources internes (globar, lampe à tungstène, lampe UV), de séparatrices (KBr,  $\text{CaF}_2$ , quartz, ...) et de détecteurs (HgCdTe, InSb, Si, ...). Un tel domaine spectral permet d'accéder aux signatures spectrales pour une multitude de molécules telles que  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{O}_3$ , NO, CO et les hydrocarbures dans l'infrarouge moyen;  $\text{NO}_2$  et  $\text{NO}_3$  dans le visible;  $\text{H}_2\text{CO}$ ,  $\text{SO}_2$ ,  $\text{O}_3$  et le toluène dans l'UV. La différence de marche optique du spectromètre peut atteindre la valeur maximale de 258 cm fournissant une résolution spectrale meilleure que  $0.0025 \text{ cm}^{-1}$ . A la résolution maximale, l'acquisition d'un spectre atmosphérique (6 interférogrammes moyennés) ne nécessite que 10 minutes assurant une bonne rapidité pour suivre les variations rapides de la photochimie de

jour. Des filtres optiques (filtres disponibles au laboratoire et d'autres filtres qui permettent d'utiliser les mêmes domaines spectraux que le réseau NDACC) sont utilisés pour étudier certaines espèces spécifiques et pour optimiser le rapport signal sur bruit, cf. Figure 38 pour  $\text{NO}_2$  autour de  $2914,6 \text{ cm}^{-1}$ .

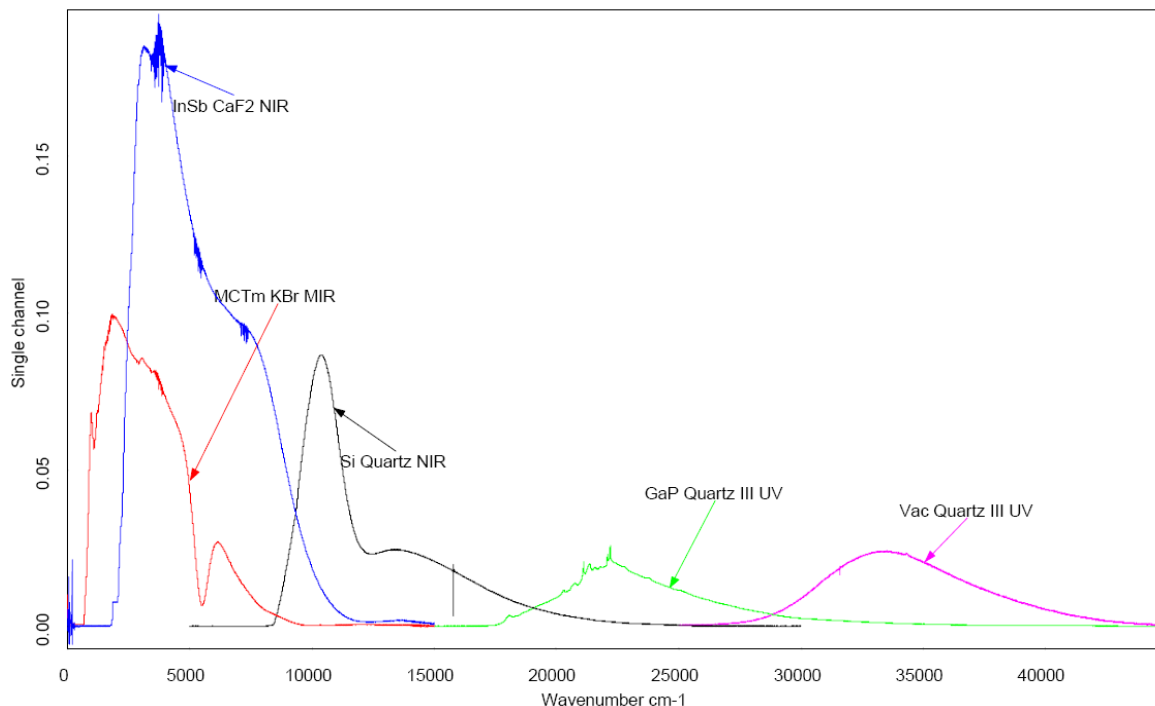


Figure 37. Domaine spectral couvert par le spectromètre QualAir (sources internes)

La troposphère est un milieu oxydant dans lequel de nombreux gaz comme le méthane  $\text{CH}_4$ , le monoxyde de carbone  $\text{CO}$  et autres COV sont détruits par oxydation, les principaux gaz oxydants étant l'ozone  $\text{O}_3$  et le radical hydroxyle  $\text{OH}$ . Avec à terme pour objectif de caractériser la chimie de l'ozone dans la troposphère, nous nous sommes tout d'abord intéressé au dioxyde d'azote,  $\text{NO}_2$  en raison de son rôle dans la pollution urbaine. En effet, il existe deux régimes chimiques : dans un milieu pauvre en  $\text{NO}_x$ , l'émission de COV conduit à la destruction d'ozone, alors que dans un milieu riche en  $\text{NO}_x$  elle conduit à sa formation. L'étude de la chimie troposphérique en milieu urbain nécessite donc la mesure simultanée de plusieurs espèces, dont  $\text{NO}_2$ . Ceci confirme le besoin d'une inversion multi-espèces, mais aussi d'une forte diversification des méthodes de mesures pour pouvoir couvrir toutes les espèces chimiques mises en jeu.

Nous avons déterminé des profils de dioxyde d'azote en utilisant la micro-fenêtre spectrale  $2914,51\text{-}2914,86 \text{ cm}^{-1}$  (Figure 38) dans laquelle se trouve la bande rovibrationnelle  $\nu_1 + \nu_3$  de  $\text{NO}_2$ . D'autres raies plus intenses de  $\text{NO}_2$  sont présentes dans le spectre, mais la présence de fortes raies d'absorption d'autres espèces (telles que  $\text{CH}_4$  ou  $\text{H}_2\text{O}$ ) autour des signatures spectrales de  $\text{NO}_2$  justifie ce choix.

La présence dans la micro-fenêtre de plusieurs raies d'absorption de  $\text{CH}_4$  permet d'inverser cette espèce simultanément à  $\text{NO}_2$ , et permet de contraindre d'autant plus les paramètres de l'inversion.

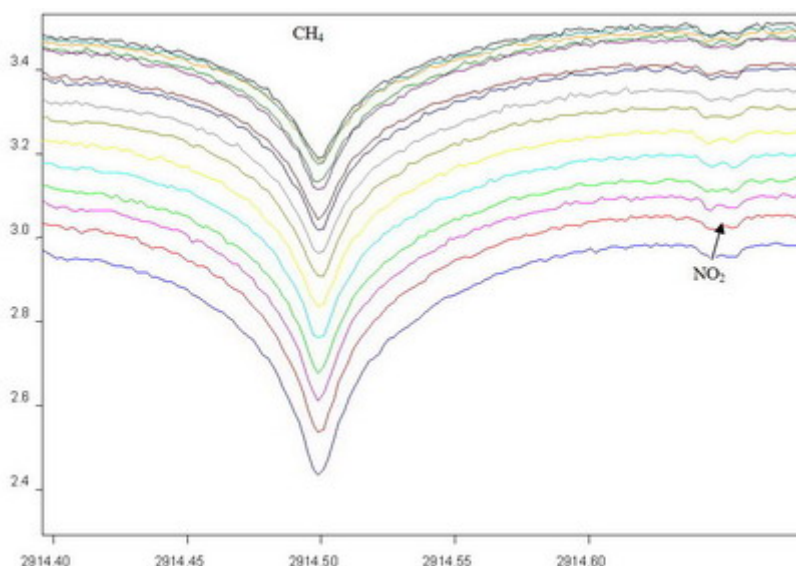


Figure 38. Micro-fenêtre spectrale pour l'étude de NO<sub>2</sub> tirée des spectres QualAir enregistrés le matin du 20/04/07

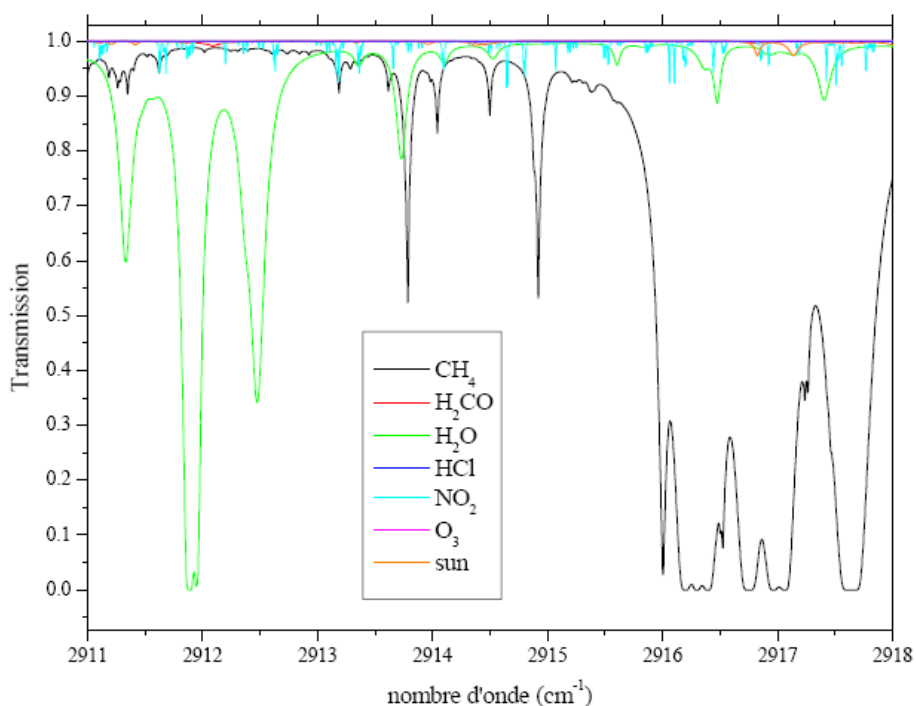


Figure 39. Transmission calculée des 6 espèces considérées dans notre inversion de NO<sub>2</sub> à partir des mesures du FTS-QualAir.

La Figure 39 présente la transmission calculée des 6 espèces considérées dans notre inversion de NO<sub>2</sub>. La contribution du spectre solaire est également présentée. Il s'agit du calcul à résolution infinie, c'est à dire avant la convolution par la fonction d'appareil du STF-QualAir.

La fonction d'appareil est calculée sur 4 cm<sup>-1</sup> de part et d'autre de son centre. Le domaine spectral de calcul du spectre à résolution infinie est donc plus grand que la micro-fenêtre utilisée pour l'inversion.

Nous avons procédé à l'inversion des 41 spectres enregistrés le 20 avril 2007. Un exemple d'ajustement est donné dans la Figure 40.

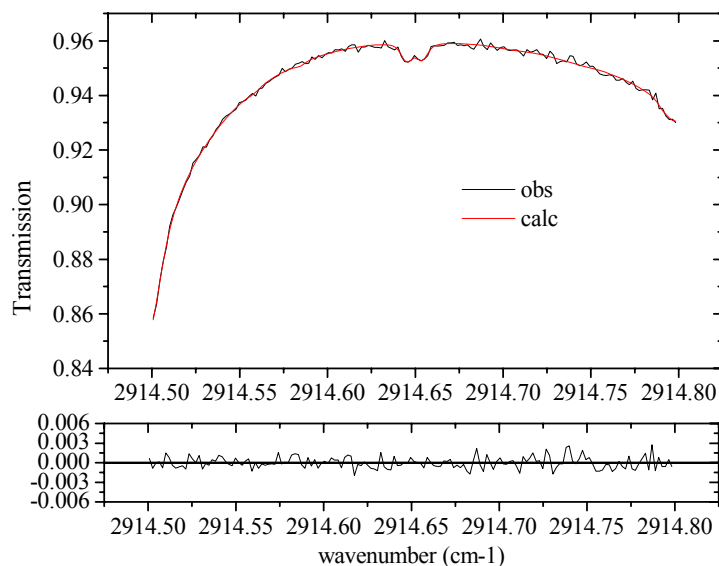


Figure 40. Exemple d'ajustement pour l'inversion de  $\text{NO}_2$  (ajustement du spectre 10 enregistré à 08:51 UT le 20 avril 2007 pour une élévation solaire de  $37.46^\circ$ )

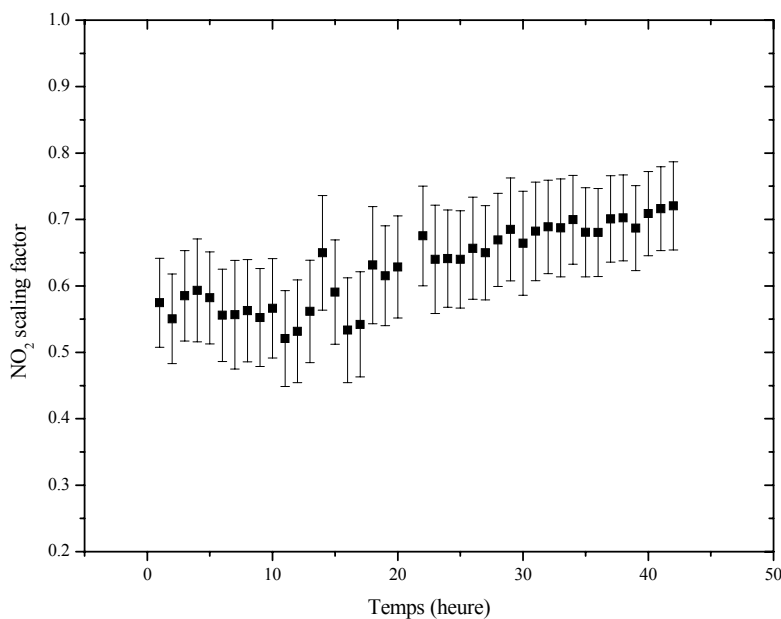


Figure 41. Résultat de l'inversion de  $\text{NO}_2$  sous la forme d'un coefficient multiplicatif de la colonne initialement considérée dans l'inversion.

Toutes les colonnes de concentration des espèces en présence dans cette micro-fenêtre ont été inversées, ainsi que les différents paramètres modélisant le décalage spectral et le fond continu. La Figure 41 présente le résultat de l'inversion de la colonne verticale de  $\text{NO}_2$  sous la forme d'un facteur multiplicatif de la colonne initialement injectée dans le modèle inverse. Les barres d'erreurs sont assez grandes, mais on observe bien l'évolution attendue de

la colonne de NO<sub>2</sub> au cours de la journée. C'est principalement le NO<sub>2</sub> stratosphérique qui est observé par cette méthode de spectroscopie infrarouge à haute résolution. Mais nous avons pour objectif de corrélérer la forme de la signature spectrale de NO<sub>2</sub> avec les épisodes de forte pollution afin de séparer la colonne troposphérique de la colonne totale mesurée.

Récemment, des paramètres tels que ceux liés au *line mixing* (interférences entre raies, cf. § 6.5), à la réfraction le long de la ligne de visée ou encore à la fonction d'appareil propre à cet instrument ont été pris en compte dans l'algorithme d'inversion pour à la fois augmenter la sensibilité de la mesure et réduire les erreurs obtenues sur les profils de concentration.

L'élaboration d'un algorithme de calcul des fonctions de moyennage, propre au STF-QualAir, est une perspective importante pour optimiser l'inversion. Néanmoins, le nombre de degrés de liberté du signal que l'on pourra inverser pour cette micro-fenêtre sera probablement faible comme l'on montré des études effectuées précédemment [Sussmann *et al.*, 2005] notamment. Il est donc nécessaire d'optimiser au maximum tous les paramètres intervenant dans la l'enregistrement des spectres ou leur modélisation lors de l'inversion.

Nous envisageons également d'utiliser d'autres micro-fenêtres pour des inversions multi-fit Cette approche présente un double intérêt : à la fois mieux contraindre l'inversion pour une mesure plus précise des concentrations de ces espèces, mais aussi permettre, par le caractère simultané des résultats obtenus pour ces différentes espèces, de corrélérer entre-elles les évolutions des concentrations de ces espèces dans le cadre de l'étude physico-chimique de l'atmosphère en milieu urbain.

## 5.5 Evolutions et projets

Plusieurs évolutions techniques sont prévues à moyen terme afin de tendre vers une automatisation des mesures. Il s'agit notamment de l'automatisation du STF QualAir actuel. En effet, le STF nécessite la présence d'un expérimentateur pour être mis en œuvre dans des bonnes conditions de fonctionnement. Cela rend son utilisation difficile en raison de l'éloignement du laboratoire (situé actuellement à Ivry-sur-Seine) et du manque de personnel dans l'équipe. Une automatisation de la procédure et un contrôle du STF à distance doivent permettre d'augmenter le nombre de sondages et par là d'améliorer la couverture temporelle des espèces mesurées.

Une deuxième évolution à moyen terme consiste à faire évoluer le STF QualAir dans une configuration en émission pour permettre de sonder l'atmosphère au-dessus de Paris dans l'infrarouge thermique par visée verticale au zénith (sans utilisation de la source solaire). Cette configuration offrira une mesure locale (par inversion des spectres comme on le fait avec IASI-ballon ou depuis l'espace avec IASI) des polluants de l'air urbain d'une grande métropole. Ces mesures fourniront également une meilleure corrélation avec les sondeurs satellitaires dans le cadre de validation (cf. chapitre 8 consacré aux perspectives). La mise en place de corps noirs de calibration (nécessaires à l'étalonnage radiométrique) est en cours en même temps qu'une étude de la meilleure stratégie pour conserver la possibilité de facilement passer d'une configuration en occultation solaire à celle en émission.

La dernière évolution instrumentale prévue sur le STF QualAir doit permettre d'analyser la composition de l'air présent entre 2 tours de Jussieu (long parcours horizontal en absorption). Une étude approfondie (collaboration possible avec le GSMA ou le LADIR) est nécessaire pour montrer la faisabilité d'une telle configuration (simulation des niveaux détectables), déterminer les contraintes et sélectionner les espèces (polluants, COV, ...) d'intérêt scientifique mais aussi pour la santé humaine (collaboration avec les médecins). Une utilisation couplée avec le PTR-MS du projet Expair permettra de valider et donc de qualifier cette configuration en absorption à parcours ouvert, mais également, dans certains cas,

d'identifier les espèces observées par le PTR-MS qui ne différencie pas les espèces ayant le même rapport de masse ( $m/z$ ). Après validation de ses mesures sur les COV avec celles du PTR-MS, le STF QualAir permettra de disposer d'une mesure continue de ces polluants (au moins lors des campagnes dans cette configuration). Cette évolution et les études correspondantes (participation au groupe EXPAIR, stage de formation, ...) sont confiées à Yao Té et Pascal Jeseck

L'équipe a également identifié le besoin d'un algorithme d'inversion simplifiée, fiable et routinier, rendu nécessaire avec l'accroissement des données enregistrées par le STF Qualair. Un suivi détaillé des polluants de l'air urbain permettra d'étudier la variabilité naturelle ou anthropique dans le temps (variations horaire, journalière, saisonnière ou annuelle, ...). À terme les instruments de la station Qualair doivent fournir des mesures pour améliorer notre compréhension des processus de formation (transformations physico-chimiques, oxydation, ...) des polluants (CO, O<sub>3</sub>, COV, hydrocarbures, ...), des aérosols (primaires et/ou secondaires). La collaboration avec les modélisateurs est nécessaire (comme nous l'avons fait pour la chimie stratosphérique, cf. chapitre 7), soit pour utiliser les mesures d'une telle station expérimentale dans les modèles, soit pour initier des projets scientifiques en réponse aux besoins de la communauté scientifique (atmosphéristes ou modélisateurs) afin d'améliorer la compréhension, la modélisation et la prévision de la composition troposphérique et des épisodes de pollution.



## 6 Transfert radiatif, spectroscopie, traitement des données

### 6.1 Contexte

Au sens large du terme, la télédétection est la mesure ou l'acquisition d'information de certaines caractéristiques d'un objet ou d'un phénomène, par le biais d'un instrument qui n'est pas en contact direct ou intime avec l'objet ou le phénomène étudié [Lillesand and Kiefer, 1994]. Par exemple, ce peut-être l'utilisation depuis le sol, un ballon, un avion, un satellite, ou encore un bateau, d'un appareil pour récolter des informations pertinentes sur l'environnement, comme des mesures de paramètres physiques, de rayonnements électromagnétiques ou d'énergie acoustique. Par extension, le terme de télédétection se rapporte à toute technique faisant des mesures sans l'utilisation d'instruments *in situ*.

De la surveillance de la qualité de l'air que nous respirons à l'échelle locale jusqu'au suivi de l'évolution de la composition atmosphérique à l'échelle globale, il faut pouvoir mesurer les concentrations d'espèces moléculaires qui, même faiblement abondantes (gaz à l'état de trace), sont susceptibles d'avoir un impact notable sur la santé des êtres humains (pollution), le climat [Houghton *et al.*, 1996] (gaz à effet de serre) et la stabilité de la couche d'ozone [*Scientific Assessment of Ozone Depletion*, 2007] qui protège la biosphère du rayonnement solaire ultraviolet nocif. Les mesures de la composition atmosphérique, de l'échelle locale à l'échelle globale, constituent donc un enjeu important, aussi bien pour les autorités politiques et sanitaires (qui doivent fixer des seuils et qui demandent des mesures fiables) que pour les scientifiques (géophysiciens, physiciens, physico-chimistes, chimistes) qui cherchent à comprendre et à modéliser les processus et l'évolution du système atmosphérique.

Mais malgré de larges efforts, le comportement et l'évolution des atmosphères planétaires sont encore loin d'être parfaitement compris [Flaud and Hartmann, 2005]. Pour ce qui concerne la physico-chimie atmosphérique, les dernières années ont vu une augmentation notable des travaux visant à une meilleure compréhension des différents processus qui déterminent l'état du système atmosphérique. L'objectif est la prédiction de son évolution dans le futur puisque les activités humaines, depuis le début de l'ère industrielle, changent fortement la composition de l'atmosphère terrestre.

Ces problèmes sont abordés du point de vue théorique par le développement de modèles afin de simuler la distribution et l'évolution des constituants des atmosphères mais aussi au plan expérimental via des mesures *in situ* ou à distance. Les techniques de télédétection, si ce ne sont pas les seules, sont très utilisées et sont souvent les seules permettant le sondage vertical de l'atmosphère. Elles assurent la détermination, non intrusive, de nombreuses propriétés des milieux sondés (température, pression, abondances des constituants, etc.). De telles mesures sont effectuées dans tout le domaine spectral, des micro-ondes à l'ultraviolet à partir de différentes plateformes (sol, avions, ballons, satellites). Notons que les mesures depuis l'espace sont les seules qui offrent une couverture à l'échelle continentale et qui donnent une vision d'ensemble de l'atmosphère. De plus, une très large variété de techniques est utilisée : passives (radiomètres, spectromètres à réseau, à transformation de Fourier, etc.) comme actives (lidars).

Dans tous les cas, la spectroscopie moléculaire est largement mise à contribution et la précision des paramètres utilisés conditionne directement la qualité des sondages atmosphériques. L'analyse des spectres atmosphériques repose en effet sur des paramètres



spectroscopiques (positions, intensités, profils des raies, . . .) fournis par des bases de données, la précision des quantités géophysiques obtenue et très largement tributaire de la qualité des informations spectroscopiques utilisées, ces dernières provenant d'études expérimentales et/ou théoriques de laboratoire. Au début de la deuxième moitié du 20<sup>ème</sup> siècle, plusieurs technologies ont permis de progrès considérables : ordinateurs, détecteurs infrarouges, traitements de l'hamiltonien moléculaire, et instruments à haute résolution au laboratoire [Rothman *et al.*, 2005a]. Avec ces nouvelles technologies, il est devenu possible de calculer rapidement la transmission et la radiance (sur des trajets optiques à long parcours) dans l'atmosphère et ce pour un grand nombre de scénarios. La conjonction des technologies a conduit à la publication en 1973 de la première banque de donnée standardisée : HITRAN, pour *High-resolution TRANsmission* [McClatchey *et al.*, 1973]. Cette première banque de données était limitée aux espèces infrarouges les plus absorbantes ( $H_2O$ ,  $CO_2$ ,  $O_3$ ,  $N_2O$ ,  $CO$ ,  $CH_4$ , and  $O_2$ ) dans l'atmosphère terrestre. En 1976, un travail similaire débuta au Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMD) avec le développement de GEISA (Gestion et Etude des Informations Spectroscopiques Atmosphériques) [Chédin *et al.*, 1980]. En plus de l'atmosphère terrestre, GEISA s'orienta vers l'atmosphère des planètes joviennes. Ces deux banques de données évoluèrent pour inclure aujourd'hui un grand nombre d'espèces comme  $NO$ ,  $SO_2$ ,  $NO_2$ ,  $NH_3$ ,  $PH_3$ ,  $C_2H_4$ ,  $GeH_4$ ,  $C_3H_8$ ,  $C_2H_2$ ,  $HC_3N$ ,  $HCOOH$ ,  $C_3H_4$ ,  $HF$ ,  $HCl$ ,  $ClONO_2$ , ...

D'autres compilations de paramètres spectroscopiques ont été créées ces dix dernières années avec différentes priorités. On peut citer par exemple, le catalogue de transmission micro-onde et submillimétrique du Jet Propulsion Laboratory [Poynter and Pickett, 1980], la liste de raies [Brown *et al.*, 1987] sélectionnées pour l'expérience ATMOS (*Atmospheric Trace Molecule Spectroscopy*), la base donnée du Smithsonian Astrophysical Observatory (SAO database) [Chance *et al.*, 1998], ou encore la banque de donnée pour l'expérience MIPAS [Flaud *et al.*, 2003].

Les banques de données spectroscopiques moléculaires sont donc des compilations des paramètres spectroscopiques nécessaires au calcul du coefficient d'absorption des espèces moléculaires dont on a besoin dans les codes de transferts radiatifs. Comme le sondage de l'atmosphère terrestre a beaucoup progressé dans ces dernières années, la communauté scientifique a exprimé une demande accrue pour que les banques de données étendent leur couverture, aussi bien en termes d'espèces moléculaires, de domaine spectral mais aussi de précision. Malgré un effort considérable des spectroscopistes, il existe diverses lacunes des banques actuelles (positions des raies, intensités, profils spectraux, . . .) ou des manques (interférences entre raies, déplacement par la pression ...). Pour aller plus loin le lecteur pourra consulter un numéro spécial des comptes rendu de physique (tome 6, n°8) qui présente une revue intéressante des problèmes de spectroscopie infrarouge des atmosphères et des techniques de télédétection.

De nombreuses méthodes spectroscopiques ont été développées dans le domaine infrarouge du spectre électromagnétique pour permettre la mesure des constituants et des polluants atmosphériques [Payan *et al.*, 2005]. La spectroscopie à haute résolution est un outil puissant qui peut être utilisé de façon quantitative pour la mesure de la composition atmosphérique grâce à des instruments permettant de réaliser des mesures *in situ* (au niveau du sol ou à bord d'une plate-forme aéroportée) ou des mesures à distance (à partir du sol ou à partir de porteurs appropriés : avion, ballon, satellite). Avec la technologie actuelle, seules les méthodes passives de sondage à distance permettent une mesure globale de la composition atmosphérique depuis l'espace [Payan *et al.*, 2005].

Je ne parlerai pas ici des méthodes actives comme les lidars [Godin *et al.*, 1989], ni des méthodes chimiques (titrimétrie, chromatographie en phase gazeuse, méthodes électrochimiques, ...) qui sont largement utilisées dans les réseaux de mesure de la qualité de l'air mais qui sont limitées par leur nature ponctuelle.

De façon générale, les processus de transfert radiatif jouent un rôle clé dans le bilan énergétique terrestre et mettent en jeu des radiations de courte et grande longueur d'onde réfléchies, émises et absorbées par le système. Le rayonnement électromagnétique du soleil interagit de manière complexe avec tous les milieux qu'il rencontre, notamment l'atmosphère. Par exemple les nuages réfléchissent une grande part du rayonnement solaire visible mais absorbent fortement les radiations du domaine proche infrarouge. Ces processus d'interactions rayonnement-matière influent sur les mesures de télédétection. Il faut donc bien comprendre ces processus pour interpréter correctement de telles mesures, et pour étudier ces processus on utilise des codes de transfert radiatif.

L'objectif de nombreuses équipes scientifiques dans le monde est d'améliorer les codes existants pour les adapter aux nouveaux besoins liés à l'observation satellitaire : haute résolution, information multi-spectrale sur une large gamme de longueurs d'onde, directionnalité du signal, polarisation du rayonnement. Plusieurs codes de transfert radiatif sont ainsi utilisés au sein de ces équipes avec diverses applications qui vont de l'interprétation d'images (comme POLDER ou MODIS), la mesure d'indices de végétation, la détection de panaches volcaniques, la mesure de concentration de gaz à l'état de trace, ...

C'est dans ce contexte que je me suis impliqué depuis ma thèse dans le traitement et l'analyse des mesures spectrales atmosphériques. Cette thématique constitue une part importante de mon activité de recherche [Payan *et al.*, 2005]. En effet, la modélisation du transfert radiatif, la mesure de nouvelles espèces intervenant dans la chimie troposphérique par exemple, l'amélioration de l'inversion de paramètres géophysiques sont encore très largement perfectibles et de nouveaux développements sont en cours d'étude. Citons par exemple la mesure de CO<sub>2</sub> dans la basse atmosphère avec une précision meilleure que 1% ou la caractérisation et l'analyse de mesures pour des scènes partiellement nuageuses (visée vers le bas en émission thermique).

Il faut aussi introduire dans les algorithmes les caractéristiques instrumentales qui perturbent le signal atmosphérique utile. C'est le cas par exemple dans le domaine du détecteur MCT de l'instrument ballon LPMA où une sinusoïde liée au filtre du détecteur à double bande-passantes vient modifier le spectre atmosphérique. Il faut également introduire dans les calculs (mesure en occultation solaire ou rayonnement solaire réfléchi ou rétrodiffusé), la modélisation à haute résolution du spectre solaire.

Sans une modélisation précise des caractéristiques instrumentales ou géophysiques, l'inversion des spectres pour déterminer le profil vertical des espèces qui nous intéressent n'est pas possible ou est moins précise. La variation des conditions expérimentales lors d'un vol ballon stratosphérique (mouvements de la nacelle, variation de la température et de la pression) conduisent à une variation des caractéristiques des spectres au cours du temps et rendent donc difficile leur modélisation en vue de l'inversion.

J'ai développé au fil des ans et des projets un algorithme d'inversion spectrale, LARA (*LPMAA Atmospheric Retrieval Algorithm*), et je continue aujourd'hui à travailler en permanence à son amélioration. Cet algorithme est utilisé pour inverser les données spectrales enregistrées par les instruments embarqués IASI-ballon en émission thermique par visée au nadir et LPMA en absorption solaire par visée au limbe. Il est également utilisé pour l'inversion de spectres enregistrés depuis des plateformes spatiales, et pour le traitement des spectres enregistrés à partir du sol, en particulier ceux de l'instrument STF QualAir.

## 6.2 Modèle direct et inverse LARA

Pour simuler les spectres atmosphériques et pour traiter les spectres enregistrés soit par les instruments FTIR de notre équipe (LPMA, IASI-ballon, FTS-QualAir), soit les spectres d'expériences spatiales (ILAS, IMG, IASI) ou embarquées (SPIRALE), dans les configurations en émission thermique (IMG, IASI, IASI-ballon) ou en absorption solaire (LPMA, ILAS) j'ai développé depuis ma thèse le code LARA qui a été utilisé de façon intensive et dont les performances ont été comparées à d'autres codes de calcul direct ou inverse (4AOP avec le LMD et Noveltis, Atmosphit avec l'ULB, Kopra avec le LISA).

L'amélioration des codes de transfert radiatif et des modèles inverses est fondamentale pour sonder les constituants atmosphériques avec les précisions requises. C'est le cas par exemple du dioxyde de carbone que l'on cherche à mesurer à mieux que le pourcent pour identifier les puits et les sources de ce gaz à effet de serre (cf. § 8.3 avec GOSAT).

J'ai travaillé avec l'équipe autour de plusieurs axes permettant d'améliorer l'analyse des spectres ballon et des spectres mesurés depuis des plateformes spatiales :

- modélisation fine du transfert radiatif dans l'atmosphère,
- développement d'une nouvelle procédure d'inversion des mesures ballon,
- développement d'une banque de données de section efficaces (look-up tables),
- modélisation d'effets instrumentaux (fonction d'appareil, cannelure dans le canal MCT),
- test de paramètres spectroscopiques ou prises en compte d'effets fins (inversion de H<sub>2</sub>O en tenant compte de son continuum, effets de d'interférences entre raies, rétrécissement collisionnel, ...),
- modélisation et prise en compte du spectre solaire dans l'infrarouge,
- utilisation de CO<sub>2</sub> pour les corrections de pointage solaire.

La simulation de la mesure à distance par sondage infrarouge nécessite, compte-tenu de la résolution et du rapport signal à bruit que l'on obtient aujourd'hui, de modéliser finement le transfert radiatif. Cela commence par la modélisation de la transmission atmosphérique et donc du coefficient d'absorption traduisant l'échange d'énergie molécule-rayonnement lié aux des transitions électroniques, vibrationnelles et rotationnelles. On doit considérer différemment les spectres de raies (transitions rovibrationnelle) et les spectres continus (transitions électroniques, spectres induis par collisions, continuum de la vapeur d'eau).

La loi de Beer-Lambert en absorption (en l'absence de diffusion et d'émission propre du milieu) s'exprime pour la luminance (milieu homogène de longueur D) :

$$L_{\nu}(D) = L_{\nu}(0) \exp(-\tau_{\nu}(D,0))$$

où  $\tau_{\nu}(D,0)$  est l'épaisseur optique entre le point d'abscisse 0 et celui d'abscisse D au nombre d'onde  $\tilde{\nu}$ .

Pour un gaz pur à la température T et la pression P absorbant au voisinage de  $\tilde{\nu}$  :

$$\tau_{\nu}(D,0) = N D \sigma(\tilde{\nu}, P, T)$$

Dans cette équation N est la densité volumique (molecule.cm<sup>-3</sup>) et  $\sigma(\tilde{\nu}, P, T)$  est la section efficace d'absorption (cm<sup>2</sup>/molecule). Lorsqu'on a à prendre en compte un spectre de raies (presque toujours dans l'infrarouge) l'expression de l'épaisseur optique s'écrit :

$$\tau_{\tilde{\nu}}(s) = \sum_i \sum_j \int_0^s k_{\tilde{\nu}_j}^{N_i}(T(s)) \Phi(\tilde{\nu} - \tilde{\nu}_j, P(s), T(s)) N_i(s) ds$$

dans cette équation :

- $i$  est un indice qui caractérise les différentes espèces absorbantes.
- $j$  est l'indice qui caractérise chaque raie (transition) de l'espèce  $i$
- $N_i(s)$  est la densité locale (en molécule/cm<sup>3</sup>) de l'espèce  $i$ .

Dans les banques de données spectroscopiques  $k_{\tilde{\nu}_j}^{N_i}$  est donné de façon standard en cm<sup>-1</sup>/(molécule cm<sup>-2</sup>) à une température de référence  $T_{\text{ref}} = 296\text{K}$ . A l'équilibre thermodynamique local on peut, connaissant l'énergie du niveau inférieur de la transition ( $E''$  en cm<sup>-1</sup> qui est tabulé dans les banques de données), convertir cette intensité à la température  $T$  voulue en calculant la fonction de partition totale et en tenant compte de la dépendance en température du terme d'émission stimulée.

Le profil spectral  $\Phi(\Delta\tilde{\nu}, P, T)$  de la raie correspondante dépend à la fois de la pression et de la température. On calcule le profil de Voigt, résultat de la convolution du profil Doppler (résultat de la distribution des vitesses des molécules) et du profil Lorentz (résultant de l'influence des collisions). Ce dernier profil nécessite pour chaque raie des paramètres spécifiques tabulés dans les banques de données.

Pour le calcul de l'épaisseur optique, on doit à la fois considérer la dépendance rapide de  $\tau_{\tilde{\nu}}$  comme fonction de  $\tilde{\nu}$  (d'où le terme de calcul raie-par-raie) et on doit, pour l'intégration le long de la ligne de visée, réaliser un découpage de l'atmosphère en couches d'épaisseur suffisamment fine pour que les variations rapides de l'intensité  $k_{\tilde{\nu}}^N(T(s))$  et du profil spectral  $\Phi(\Delta\tilde{\nu}, P(s), T(s))$  soient bien prises en compte lors de l'intégration sur la variable d'espace  $s$ .

Même si cette expression de la transmission est compliquée, on comprend que, puisque les concentrations  $N_i(s)$  interviennent, on puisse en principe par un processus mathématique (décrit sous le terme général de méthode d'inversion discuté plus loin) remonter de la transmission  $T_{\tilde{\nu}}(s, 0)$  aux profils de concentration  $N_i(z)$ .

La forme intégrée de l'équation du transfert radiatif s'écrit aussi après intégration entre deux points 0 et  $s$ :

$$L_{\tilde{\nu}}(s) = L_{\tilde{\nu}}(0) t_{\tilde{\nu}}(s, 0) + \int_0^s J_{\tilde{\nu}}(s') \frac{\partial t_{\tilde{\nu}}(s, s')}{\partial s'} ds'$$

Où  $t_{\tilde{\nu}}$  est la transmission et  $J_{\tilde{\nu}}$  le terme source.

Selon le domaine spectral et selon la géométrie utilisée il est possible que seul le premier ou seul le second des deux termes de l'équation soit prépondérant. Dans le premier cas on parlera d'absorption, dans le second cas d'émission. Mais l'équation a une validité générale couvrant les cas où les phénomènes d'émission et d'absorption doivent être simultanément considérés.

Enfin, l'équation du transfert radiatif devient plus complexe lorsqu'on tient compte :

- de la propriété émissive des surfaces et de leur propriété réfléchissante ou diffusante,
- du rayonnement solaire réfléchi (avec les raies d'absorption de la photosphère solaire et double passage dans l'atmosphère),

- et aussi du flux atmosphérique descendant et réfléchi ou diffusé par la surface (ou les nuages),
- d'une épaisseur optique par couche (absorption) et d'un coefficient de réflexion par couche (soleil) pour modéliser les aérosols ou les nuages.

Pour plus de détails, le lecteur pourra se reporter à la référence [Goody and Yung, 2000] ou [Payan, 2009a]. Notons que LARA intègre ces différents éléments du transfert radiatif. Dans certain cas, il pourrait être nécessaire de tenir compte d'effets de non-équilibre thermodynamique local, ce que je n'ai pas fait jusqu'à présent, ces effets restant négligeables pour les observations que j'ai eues à analyser.

LARA est un code scientifique de recherche : il n'a pas été optimisé comme les codes 4AOP ou LBLRTM par exemple, mais il est bien maîtrisé et sa structure évolutive permet de tester de nouvelles modélisations comme celle des interférences entre raies dans CO<sub>2</sub> [Niro *et al.*, 2005] et CH<sub>4</sub> [Tran *et al.*, 2006] ou comme celle de la dépendance en fonction de la température des largeurs et du couplage entre raies dans le cas de CH<sub>4</sub> [Mondelain *et al.*, 2007 ; 2008].

A partir de l'information contenue dans les spectres atmosphériques, nous cherchons à restituer les profils de concentration (ou rapport de mélange) de différentes espèces à l'état de trace jouant un rôle important dans l'atmosphère (chimique, climatique, météorologique ou de traceur). Si l'information n'est pas suffisante on pourra ne restituer que la colonne intégrée le long de la ligne de visée, ou SCD (*slant column density*). L'information contenue dans les spectres est caractéristique de leur géométrie, du type d'instrument, de la technique de mesure, ... . Par exemple, dans les spectres de l'expérience LPMA enregistrés à la montée du ballon (cf. § 3.2), l'information provient essentiellement de la couche située autour du ballon, là où la densité moléculaire est la plus importante alors que pour les spectres en occultation (limbe), elle provient principalement de la région située de part et d'autre de l'altitude tangente de la visée considérée (couche tangente) puisque le trajet dans cette couche et la densité atmosphérique y sont les plus importants.

Les paramètres atmosphériques que l'on cherche à restituer n'étant pas reliés simplement aux radiances (aux spectres) mesurées [Rodgers, 2000], il est nécessaire de disposer d'un algorithme adapté à chaque instrument permettant de remonter aux profils de concentration. Ces algorithmes sont nommés *algorithmes d'inversion* ou plus généralement *méthodes d'inversion*. Différents problèmes sont à considérer afin de réaliser l'inversion des spectres, ils sont résumés sur la Figure 42. Dans un premier temps, il faut savoir résoudre le problème direct, c'est-à-dire être capable de calculer le signal que reçoit l'instrument pour un état de l'atmosphère et une géométrie donnés (le transfert radiatif explicité ci-avant). Ensuite, la méthode inverse, souvent itérative et avec amortissement (« problème mal posé ») doit être précise et performante afin de tenir compte au mieux de l'information contenue dans le signal atmosphérique.

Pour restituer les paramètres atmosphériques (mais également instrumentaux dans le cas de LARA), les spectres calculés (problème direct) sont comparés aux spectres mesurés. L'écart entre le spectre calculé et le spectre mesuré est réduit au sens des moindres carrés en ajustant les paramètres atmosphériques à restituer. Une contrainte supplémentaire est ajoutée via l'information *a priori* sur l'état de l'atmosphère connu avant la mesure. Une procédure séquentielle d'inversion est utilisée. La stratégie d'inversion adoptée est basée sur la méthode de minimisation de Levenberg-Marquardt. Pour plus de détails, le lecteur pourra se reporter à la référence [Rodgers, 2000] ou [Payan, 2009b].

Je développe dans la suite de ce paragraphe quelques exemples de travaux (menés pour certains d'entre eux avec l'aide de thésitifs).

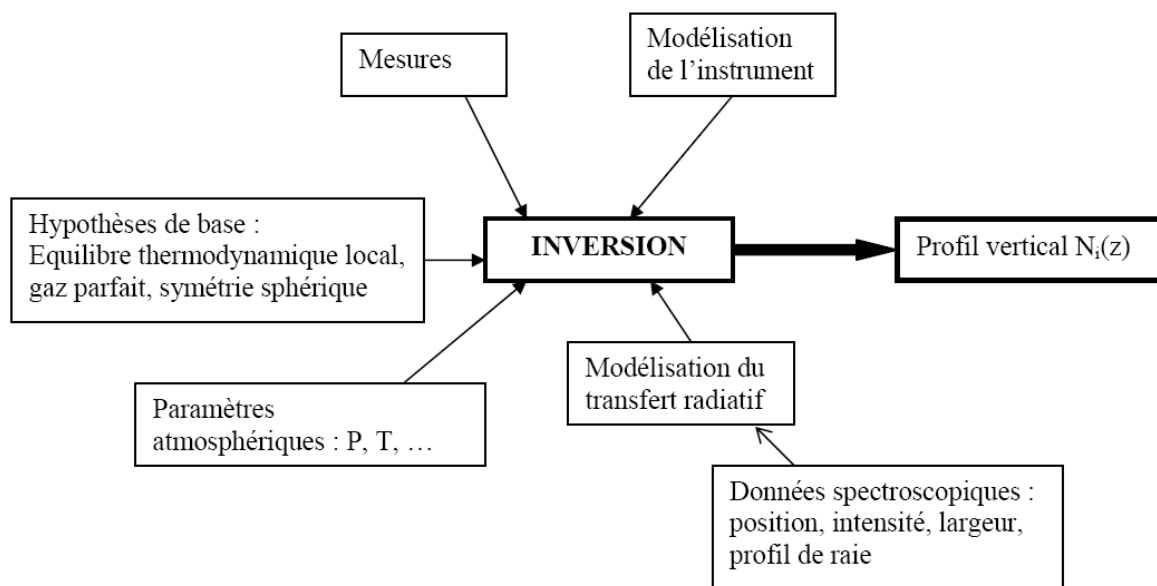


Figure 42. Processus d'inversion.

### 6.2.1 Approche Multi-fit

Pour l'analyse des spectres de l'expérience LPMA (cf. § 3.2), la concentration ou le rapport de mélange des espèces sont déterminés par ajustement, au sens des moindres carrés, de spectres calculés aux spectres observés. Lors d'une première étape, les colonnes intégrées le long de la ligne de visée sont restituées par ajustement de micro-fenêtres spectrales, spécifiques à une ou plusieurs molécules. Les colonnes obtenues sont ensuite ajustées afin d'inverser les profils verticaux de concentration des différentes espèces absorbant dans les micro-fenêtres considérées.

Lors de ma thèse nous avons constaté une assez forte corrélation entre plusieurs paramètres ajustés dans nos inversions, comme ceux de la fonction d'appareil. En effet, compte tenu des conditions expérimentales très variables au cours d'un vol ballon, la fonction d'appareil instrumentale peut varier (et donc n'est pas complètement déterminée *a priori*). L'enregistrement de spectres de cuve avant le vol permet de mieux déterminer la fonction d'appareil, mais cette dernière peut varier de façon significative en cours de vol. C'est pourquoi nous utilisons une fonction paramétrique pour modéliser et « inverser » cette fonction d'appareil [Payan, 1996]. Mais dans le cas d'une inversion avec une seule micro-fenêtre, ces paramètres sont assez corrélés aux paramètres géophysiques recherchés. Une nouvelle approche que nous avons appelée multi-fit consiste à ajuster simultanément plusieurs micro-fenêtres afin de décorréler les paramètres inversées [Dufour, 2004].

Le Tableau 3 ci-dessous présente le multi-fit de 5 micro-fenêtres permettant d'inverser simultanément le profil vertical de 8 espèces stratosphériques à partir des mesures LPMA dans la configuration LWIR (infrarouge grande longueur d'onde). Deux fonctions d'appareils distinctes ont été prises en compte (2 voies optiques : MCT et InSb). Alors que peut de changements sont observés sur les profils inversés de  $\text{CH}_4$ , le multi-fit a permis de diminuer les effets de compensation qui conduisent à des oscillations non physiques du profil vertical d'autres espèces. Par exemple, l'inversion de  $\text{HNO}_3$ , espèce contaminée par  $\text{CH}_4$  et  $\text{N}_2\text{O}$  dans la micro-fenêtre que nous utilisons, a été notablement améliorée.

Comme le montre la Figure 43, cette nouvelle procédure améliore l'ajustement des spectres : la somme des écarts observé-calculé au carré, représentative de la qualité de l'ajustement (cette somme est proportionnelle au  $\chi^2$ ), est fortement réduite.

| Intervalle spectral en $\text{cm}^{-1}$ | Fonction d'appareil / Voie optique | Espèces   |
|---|------------------------------------|---|
| 1240.380 – 1243.650                     | 1 / MCT                            | $\text{N}_2\text{O}$ , $\text{CH}_4$ , $\text{H}_2\text{O}$ , $\text{CO}_2$ |
| 1292.000 – 1292.998                     | 1 / MCT                            | $\text{HNO}_3$ , $\text{N}_2\text{O}$ , $\text{CH}_4$                       |
| 2914.353 – 2915.164                     | 2 / InSb                           | $\text{NO}_2$ , $\text{H}_2\text{O}$ , $\text{O}_3$ , $\text{CH}_4$         |
| 2944.711 – 2945.113                     | 2 / InSb                           | $\text{HCl}$ , $\text{CH}_4$ , $\text{NO}_2$                                |
| 3040.034 – 3040.850                     | 2 / InSb                           | $\text{O}_3$ , $\text{H}_2\text{O}$ , $\text{CH}_4$                         |

Tableau 3

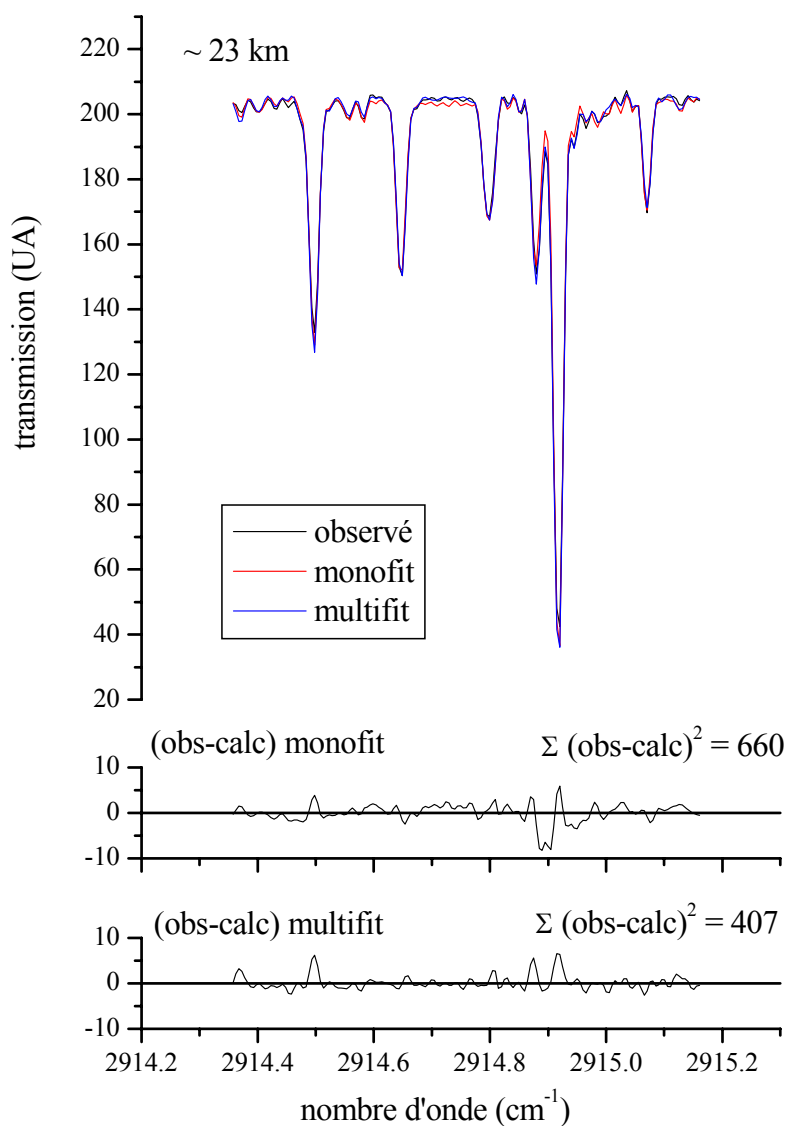


Figure 43. Comparaison d'un ajustement obtenu avec le mono-fit et le multi-fit sur la micro-fenêtre utilisée pour l'inversion de  $\text{NO}_2$ .

L'utilisation de cette méthode a permis également de diminuer les corrélations entre les paramètres inversés et ainsi d'améliorer la qualité des profils inversés. La Figure 44 montre comment le coefficient de corrélation de NO<sub>2</sub> avec les autres paramètres inversés est réduit lorsque plusieurs micro-fenêtres sont utilisées simultanément.

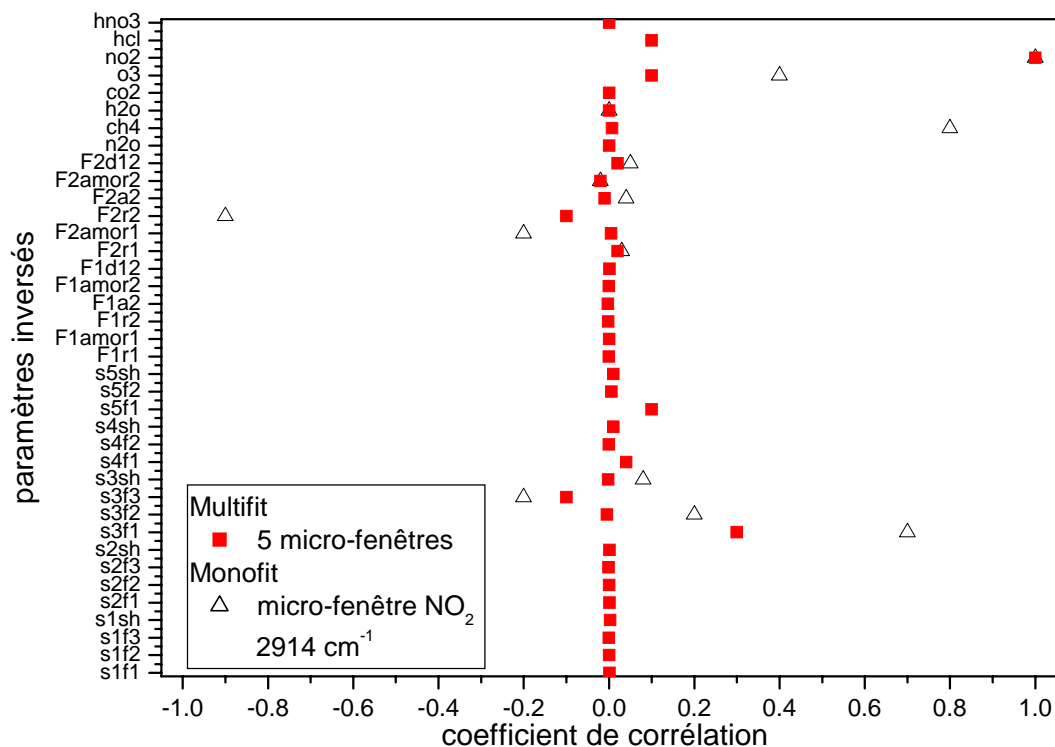


Figure 44. Corrélation de NO<sub>2</sub> avec les autres paramètres inversés. Les S<sub>i</sub> correspondent au numéro de la micro-fenêtre, les f<sub>i</sub> aux paramètres du fond continu, s<sub>h</sub> au décalage spectral, F<sub>i</sub> au numéro de la fonction d'appareil (une par détecteur), r<sub>1</sub>, amor<sub>1</sub>, r<sub>2</sub>, a<sub>2</sub>, ... aux paramètres ajustables de la fonction d'appareil [Dufour, 2004].

L'application de cette nouvelle procédure a permis d'améliorer la qualité des profils verticaux de HNO<sub>3</sub> et de N<sub>2</sub>O. De plus, grâce à cette nouvelle procédure d'une part, et à la prise en compte de la variation en température des sections efficaces de NO<sub>2</sub> dans l'ultraviolet d'autre part, un très bon accord est obtenu entre les colonnes de NO<sub>2</sub> mesurées par l'instrument LPMA, opérant dans l'infrarouge, et l'instrument DOAS, opérant dans l'ultraviolet (cet instrument est embarqué à bord de la même nacelle que l'instrument LPMA et utilise le même capteur solaire) [Ferlemann *et al.*, 1998 ; Ferlemann *et al.*, 2000]. Enfin, cette méthode permet d'inverser les profils verticaux de molécules présentant une absorption relativement faible comme ClONO<sub>2</sub>. La Figure 45 donne un exemple d'un profil de ClONO<sub>2</sub> inversé à partir des spectres LPMA et comparé aux résultats d'un modèle de chimie-transport à une dimension.



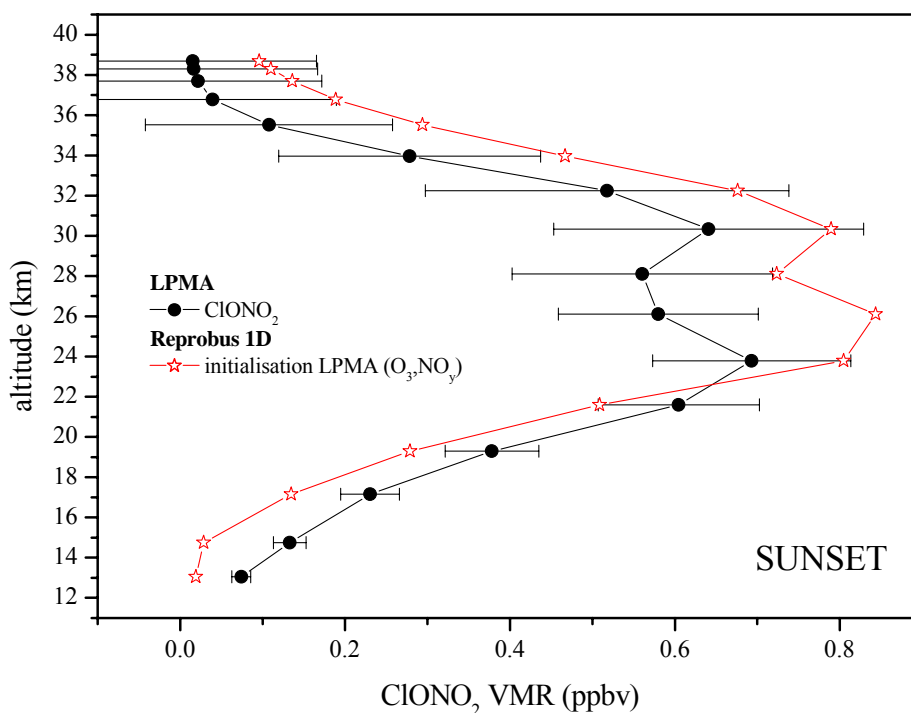


Figure 45. Profil de ClONO<sub>2</sub> mesuré par LPMA et comparé à un modèle de chimie.

Un autre résultat très intéressant a été obtenu pour l’ozone. Pour cette espèce, deux inversions mono-fit indépendantes utilisant deux micro-fenêtres différentes conduisaient à des colonnes d’ozone présentant un désaccord significatif comme on peut le constater dans la Figure 46. Parmi les hypothèses avancées, cette différence pouvait être attribuée à la spectroscopie. Le multi-fit a permis d’expliquer cette différence : en introduisant la micro-fenêtre à 3040 cm<sup>-1</sup> on obtient des colonnes d’ozone en accord avec celles obtenues dans la micro-fenêtre à 1084 cm<sup>-1</sup>. C’est donc une détermination imprécise des paramètres annexes (fond continu, fonction d’appareil) qui était à l’origine des différences observées entre les deux inversions.

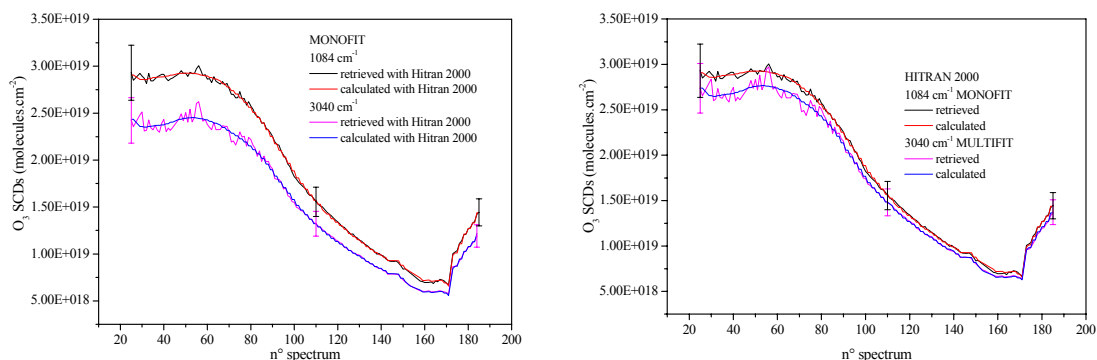


Figure 46. Inversion mono-fit (à gauche) de l’ozone dans deux micro-fenêtres, comparé à l’inversion (à droite) mono-fit dans la première micro-fenêtre et multi-fit dans la seconde.

### 6.2.2 Correction de visée.

Comme nous l'avons vu précédemment, les spectres atmosphériques mesurés par l'expérience LPMA sont des spectres d'absorption obtenus par occultation solaire (coucher et lever de soleil). L'appareil vise le soleil, qui est utilisé comme source naturelle de rayonnement. L'interféromètre est doté d'un système permettant d'asservir la direction de la visée sur le centre du disque solaire. Ce système est composé de deux éléments : un système de contrôle primaire en azimut opéré par l'équipe Nacelles Pointées du CNES permettant de maintenir la nacelle dans la direction générale du soleil et un héliostat (pointeur fin développé au LPMA, [Hawat *et al.*, 1995]) qui permet de suivre le soleil et d'envoyer le rayonnement reçu par le spectromètre parallèlement à son axe optique. Cet instrument est piloté par électronique à l'aide d'une caméra CCD. Le calcul en temps réel du barycentre de l'image du soleil et l'asservissement de l'instrument sur ce barycentre permettent de maintenir la visée au centre du disque solaire à chaque instant. Cependant, pour les visées les plus basses où la réfraction par l'atmosphère n'est plus négligeable, l'image du soleil prend la forme d'un disque aplati et le calcul du barycentre est compliqué par l'absorption différentielle entre le bord supérieur et le bord inférieur du soleil ainsi que par la diffusion du rayonnement solaire par les éventuels nuages. L'instrument ne vise donc pas forcément le centre du soleil dans ce cas. Ceci conduit à des erreurs sur les angles de visée calculés en faisant l'hypothèse que l'on vise le centre du disque. Pour prendre en compte ces éventuelles erreurs de pointage, nous avons mis au point une méthode de correction de la géométrie *a posteriori* [Dufour, 2004]. Les angles de visée calculés pour représenter la géométrie de mesure sont corrigés en comparant les colonnes de CO<sub>2</sub> le long de la ligne de visée restituées aux colonnes théoriques correspondant à un rapport de mélange connu.

Toutefois, cette méthode de correction de pointage n'est précise que si l'on considère un ensemble assez grand de raies de CO<sub>2</sub>. Dans le canal MCT, il faut donc reproduire avec précision la cannelure qui apparaît dans le spectre (cf. § 6.2.4 et [Eremenko, 2003]). Pour d'autres régions spectrales, le spectre solaire vient se superposer au spectre atmosphérique. Il faut alors déterminer les paramètres des raies du spectre solaire pour pouvoir reproduire les spectres mesurés (cf. § 7.5).

### 6.2.3 Look-up tables et spectroscopie

Le développement de look-up tables avait pour objectif d'améliorer notre code de transfert radiatif (LARA) afin de pouvoir analyser de grands domaines spectraux avec des temps calculs acceptables [Eremenko, 2003]. Le principe consiste à précalculer les sections efficaces d'absorption des espèces qui contribuent dans les domaines spectraux considérés, pour un ensemble bien choisi de températures et de pressions. Ces tables permettent ensuite, en utilisant une interpolation adaptée, de calculer ces sections efficaces pour n'importe quel couple de pression et de température, et ce, avec une précision suffisante (i.e. sans perte significative de précision). Nos études ont montré qu'une interpolation logarithmique des sections efficaces précalculées avec une grille appropriée en température ( $\Delta T = 5$  K) et en pression ( $\Delta \ln P = 0.25$ ) permet de reproduire les sections efficaces avec une précision meilleure que le dixième de pourcent avec un effet très inférieur à la précision de l'inversion sur les profils mesurés. Un exemple est donné ci-dessous avec l'inversion du CFC-12 à 921 cm<sup>-1</sup> (Figure 47). Comme l'absorption de cette espèce se présente sous la forme d'une bande large, il est nécessaire de traiter un domaine spectral assez étendu. Un problème supplémentaire apparaît pour cette inversion. Il existe dans le canal MCT une cannelure (fond continu ayant une forme sinusoïdale avec une amplitude et une période légèrement variable). Un premier modèle a été développé pour reproduire cette cannelure et a été introduit dans le code de transfert radiatif.

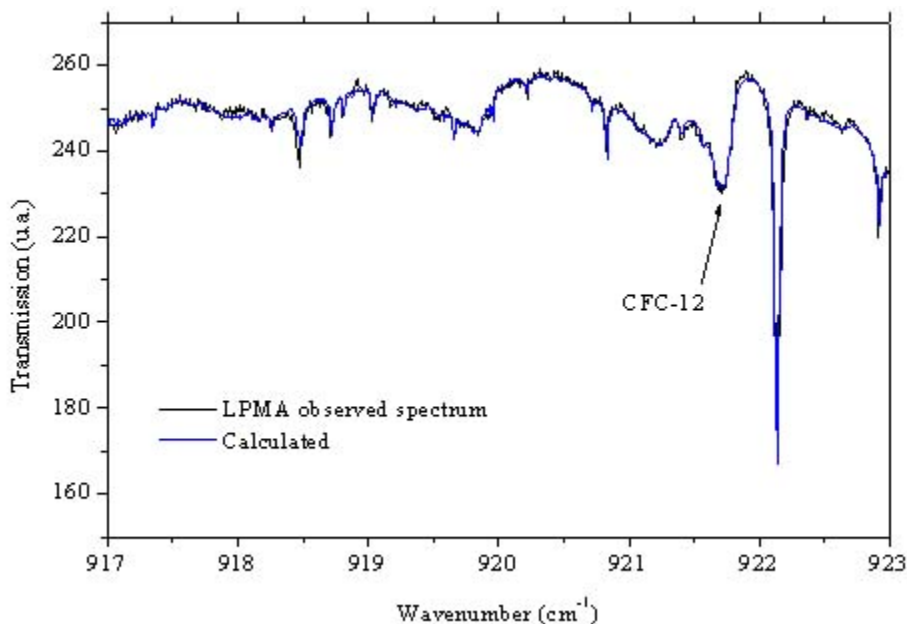


Figure 47 : Inversion du CFC-12 à partir des spectres ballon LPMA.

La qualité de l'inversion est étroitement liée à celle des paramètres spectroscopiques utilisés pour simuler les spectres. Lors de cette étude nous utilisons la banque de donnée HITRAN dont une partie des données ont été mise à jour en 2004 [Rothman *et al.*, 2005] (une version plus récente a été publiée depuis [Rothman *et al.*, 2009]). Lorsque les paramètres spectroscopiques sont changés, il est nécessaire de quantifier l'impact de ces changements sur les paramètres inversés. C'est un travail délicat qui demande de comparer les inversions déjà effectuées avec les anciennes données (HITRAN 96 ou HITRAN 2000) avec celles réalisées avec les versions de 2004 et 2008.

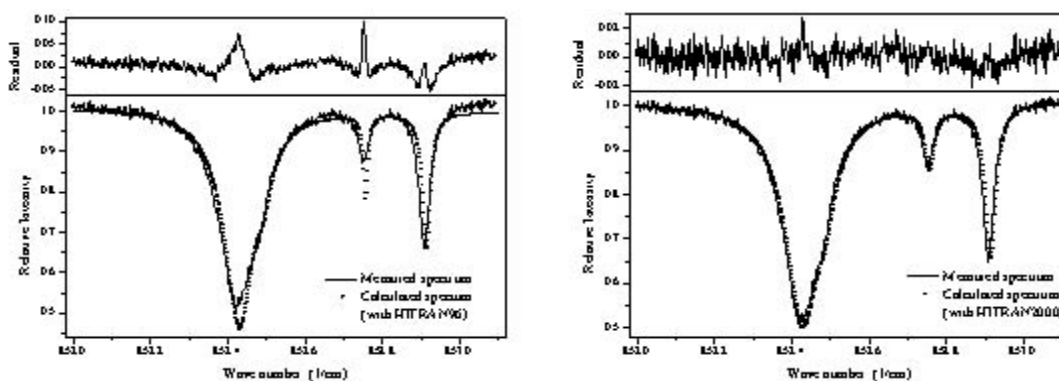


Figure 48 : Spectre FTIR en occultation solaire enregistré depuis le Zugspitze le 25 mars 2002 pour l'inversion de la vapeur d'eau. Deux ajustements sont présentés, l'un en utilisant HITRAN 96 (en haut) et l'autre HITRAN 2000 (en bas).

Un exemple de l'impact de l'amélioration des données spectroscopiques (en passant de HITRAN 96 à HITRAN 2000) pour la modélisation précise des spectres atmosphériques est montré Figure 48. Les spectres ont été obtenus à partir du sommet de la Zugspitze (altitude de 2964 m) avec un instrument FTIR du réseau NDSC (*Network for Detection of Stratospheric Change*) dans le cadre du projet AIRSVAL de validation des données du sondeur AIRS à bord du satellite américain Aqua [Sussman *et al.*, 2009]. L'amélioration de la qualité des paramètres spectroscopiques des raies de H<sub>2</sub>O est clairement visible sur la qualité des inversions de la colonne de vapeur d'eau (et dans le futur de son profil vertical) au-dessus du site. La prise en compte de profils non-Voigt pour H<sub>2</sub>O dans les programmes d'inversion des

profils (LARA et SFIT2) était un des objectifs de la coopération entre le LPMAA et IMK/IFU (avec Ralph Susmann).

#### 6.2.4 Caractéristiques instrumentales

Pour bien reproduire le signal de la mesure atmosphérique (et donc pour extraire avec la meilleure précision les informations géophysiques utiles) il est nécessaire d'introduire dans les algorithmes les caractéristiques instrumentales qui perturbent la mesure. C'est le cas par exemple dans le domaine du détecteur MCT où une sinusoïde liée à la fenêtre d'entrée de l'interféromètre vient modifier le spectre atmosphérique (cf. Figure 49). Sans une modélisation précise de cette sinusoïde, l'inversion des spectres pour déterminer le profil vertical des espèces qui nous intéressent n'est pas possible. La variation des conditions expérimentales lors d'un vol ballon stratosphérique (mouvements de la nacelle, variation de la température et de la pression) conduisent à une variation de cette sinusoïde au cours du temps et rendent donc difficile la modélisation du fond sinusoïdal. C'est avec une décomposition en série de Fourier que nous avons pu faire la modélisation de ce fond et inverser le profil vertical du CFC-12 présenté dans la Figure 50 [Eremenko, 2003].

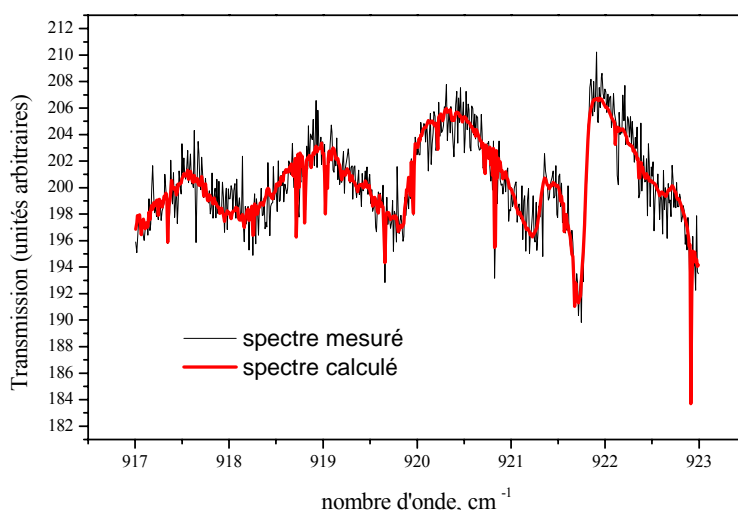


Figure 49. Prise en compte de la sinusoïde dans le domaine MCT pour l'inversion du CFC-12

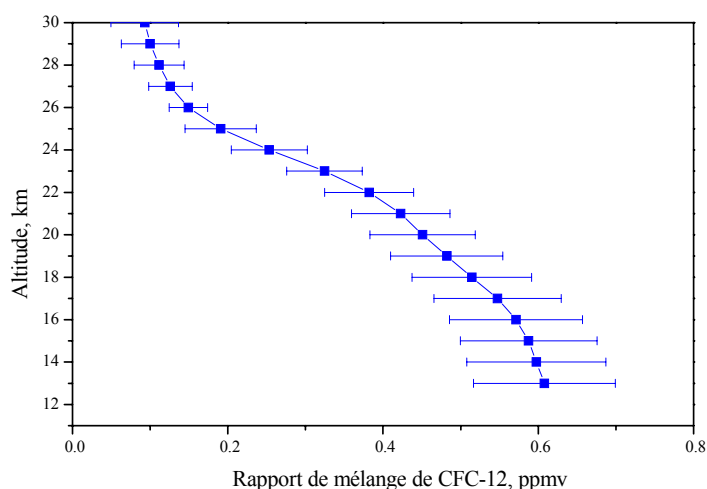


Figure 50. Profil vertical de CFC-12 inversé après modélisation de la sinusoïde dans les spectres MCT.

### 6.3 Comparaison « UV et IR » avec les mesures DOAS et LPMA

Je présente dans ce paragraphe un travail concernant le problème de l'intercomparaison des mesures LPMAA et DOAS [Butz *et al.*, 2006], et dans un cadre plus général, celui de la comparaison des mesures dans l'infrarouge et l'UV. Le LPMAA accueille fréquemment sur sa nacelle d'autres expériences. C'est le cas de l'expérience DOAS de l'université de Heidelberg qui consiste en un spectromètre UV-visible collectant une partie du rayonnement solaire capté par l'héliostat du LPMAA [Gurlit *et al.*, 2005]. Les deux expériences mesurent donc le rayonnement solaire ayant traversé les mêmes masses d'air et avec le même trajet atmosphérique. Les colonnes de NO<sub>2</sub> le long de la ligne de visée (mesurées par les deux expériences, SCD = *slant column density*) devraient donc être identiques. Or, pour plusieurs vols communs, des désaccords significatifs ont été observés et les deux équipes ont cherché à expliquer puis à réduire les différences entre les deux ensembles de mesures. Pour l'équipe DOAS, la prise en compte dans l'inversion de la variation avec la température des sections efficaces d'absorption de NO<sub>2</sub> a permis de réduire le désaccord (il est fréquent dans l'UV d'ignorer la dépendance en température souvent faible des sections efficaces). D'un autre côté, pour l'équipe LPMA, l'approche multi-fit a permis de décorréliser NO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> (cf. § 0) la deuxième espèce contaminant assez fortement la première [A. Butz, 2006]. A titre d'exemple, la Figure 51 montre le bon accord obtenu après les corrections introduites pour l'inversion dans l'UV et dans l'infrarouge dans le cas du vol LPMA17 (Kiruna, Suède, Août 2001).

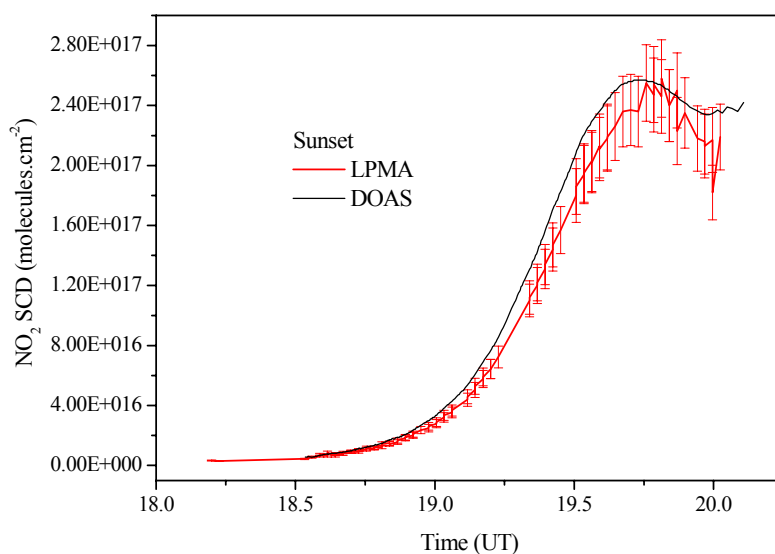


Figure 51. Comparaison des colonnes le long de la ligne de visée de NO<sub>2</sub> mesurées simultanément par l'expérience LPMA et l'expérience DOAS durant le vol LPMA17.

### 6.4 Bande A de l'oxygène moléculaire

Ce paragraphe me permet d'illustrer l'interaction fructueuse entre observation ballon et calcul de transfert radiatif. La Figure 52 montre l'impact de l'amélioration des paramètres spectroscopiques des raies de la bande A de l'oxygène et de ceux des raies solaires sur la modélisation du spectre atmosphérique enregistré dans la configuration LPMA NIR (infrarouge proche) autour de 765 nm. La bande correspondante de l'oxygène moléculaire est utilisée pour la restitution des profils de densité et de température aussi bien par les instruments spatiaux réalisant des mesures en occultation (ILAS, SAGE, GOMOS, SCIAMACHY) que par des instruments opérant en visée au nadir pour le sondage des

constituants et pour la caractérisation des aérosols/nuages/surfaces (POLDER, SCIAMACHY). Plus de détails sont donnés dans le paragraphe 4.3 de ce manuscrit. On mesure bien l'importance de bien modéliser le spectre solaire en comparant dans la Figure 53 un spectre observé (expérience LPMA, visée au limbe avec une altitude tangente de 20 km) et le même spectre simulé respectivement avec l'oxygène moléculaire seul, et le spectre solaire seul. Dans le cas d'une expérience spatiale avec une résolution spectrale dégradée, le problème est encore plus critique car les deux signaux (tellurique et solaire) sont indissociables. La Figure 28 du paragraphe 4.3 illustre bien cet aspect.

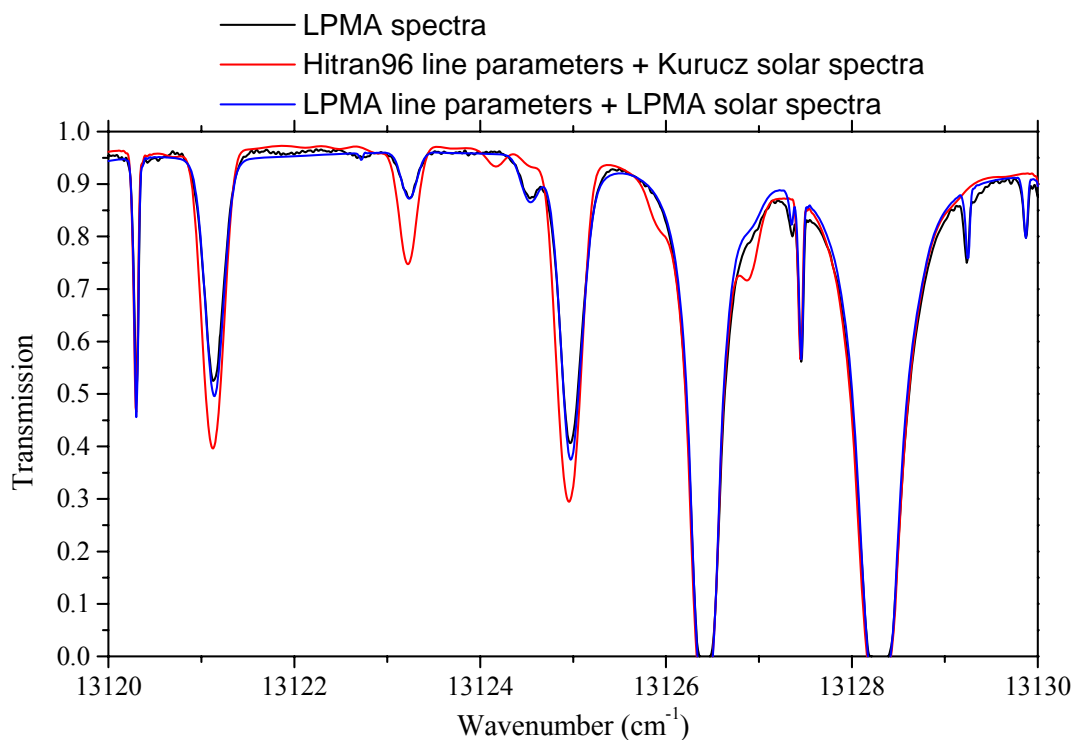


Figure 52. Transfert radiatif dans la bande A de l'oxygène moléculaire : comparaison des mesures et du calcul avec et sans les paramètres spectroscopiques améliorés au LPMAA.

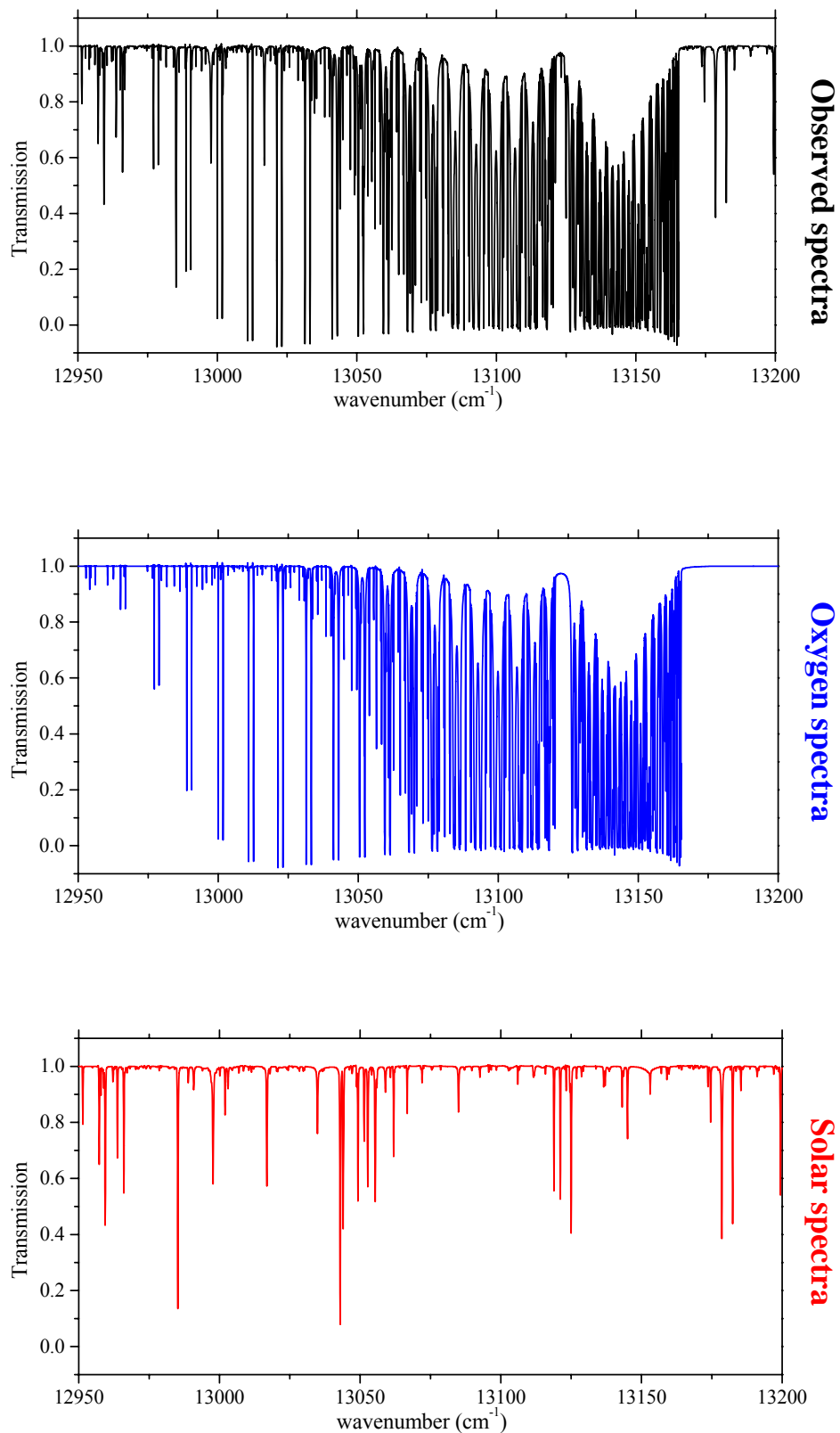


Figure 53. Transfert radiatif dans la bande A de l'oxygène moléculaire : comparaison d'un spectre observé (noir) et d'une simulation du spectre de l'oxygène moléculaire seul (rouge) et du spectre solaire seul (bleu).

## 6.5 Interférences entre raies

Mon programme de calcul du transfert radiatif est conçu pour prendre en compte certains effets comme les interférences entre raies (*line mixing*, *line coupling*) ou encore les effets de rétrécissement collisionnel. L'objectif est double : tester l'impact de la prise en compte de ces effets sur la modélisation des spectres atmosphériques, et mesurer l'impact sur l'inversion des paramètres géophysiques (colonnes, profil, ...). La structure évolutive de LARA a permis de tester de nouvelles modélisations comme celle des interférences entre raies dans  $\text{CO}_2$  [Niro *et al.*, 2005] et  $\text{CH}_4$  [Tran *et al.*, 2006] ou comme celle de la dépendance en fonction de la température des largeurs et du couplage entre raies dans le cas de  $\text{CH}_4$  [Mondelain *et al.*, 2007 ; 2008]. A titre d'exemple, la Figure 54 présente deux simulations pour une visée au nadir: l'une lorsqu'on prend en compte les interférences entre raies dans les branches P et R de  $\text{CO}_2$  (le modèle de plus récent) et un calcul lorsque seules les interférences dans les branches Q sont considérées (modèle plus ancien). Un spectre observée « IASI-like » (cf. § 4.3.2.2) est également présenté pour comparaison. On voit bien l'amélioration importante dans l'aile de la bande de  $\text{CO}_2$  vers  $2380 \text{ cm}^{-1}$  (là où des facteurs empiriques, appelés  $\chi$  facteurs, étaient utilisées pour reproduire les spectres faute de modèle physique approprié).

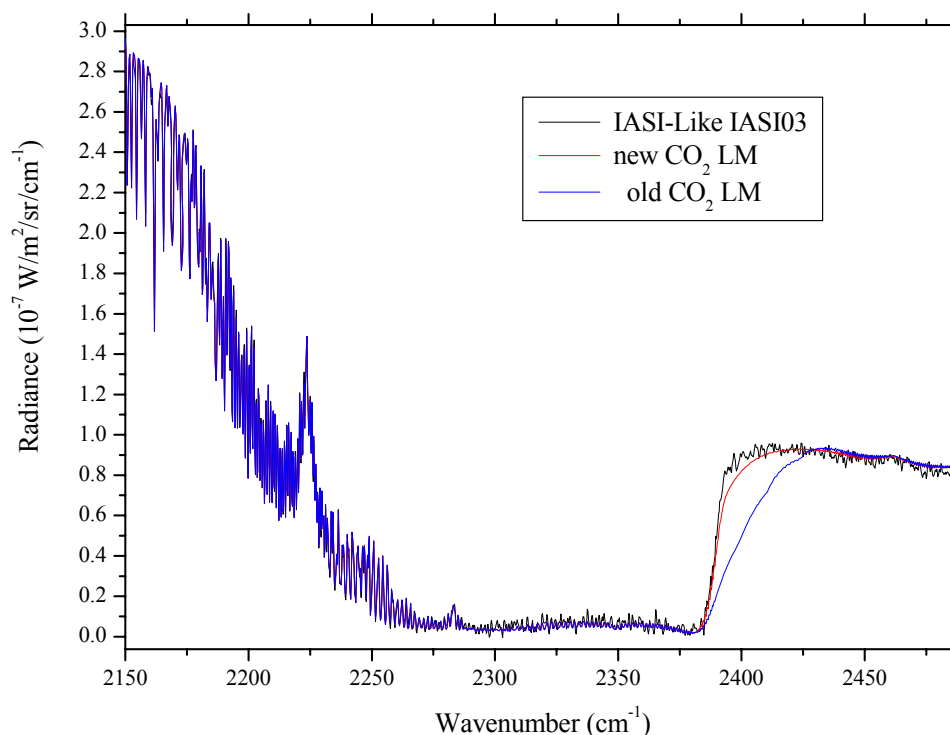


Figure 54. Prise en compte des interférences entre raies dans les branches P et R de  $\text{CO}_2$  (new LM) et comparaison avec un calcul lorsque seules les interférences dans les branches Q sont considérées (old LM). Un spectre observée IASI-Like est également présenté pour comparaison.

A l'occasion de l'étude « Sondage en température » pilotée par Noveltis à laquelle étaient associés le LPMAA et le LMD, les 2 équipes ont pu comparer l'implémentation du nouveau modèle d'interférences entre raies de  $\text{CO}_2$  [Niro *et al.*, 2005] respectivement dans LARA et dans 4AOP, ce qui a constitué une inter-validation intéressante. Le modèle permet de reproduire, par l'intermédiaire de ce qu'on appelle les interférences P/R, la forme de l'aile lointaine de la branche R de la bande  $\nu_3$  du  $\text{CO}_2$  au-delà de  $2380 \text{ cm}^{-1}$ .



Le nouveau modèle d'interférences entre raies (LM) reproduit bien les spectres IASI-ballon convolués à la résolution de IASI-MetOp. Les 2 implémentations du modèle LM dans LARA et 4AOP donnent des résultats très comparables, et montrent qu'il reste encore une certaine amélioration à apporter aux codes de transfert radiatif dans ce domaine important pour le sondage en température (incertitude sur la dépendance en température du continuum de  $N_2$  ?).

Comme nous l'avons indiqué précédemment, le logiciel LARA peut aussi être utilisé en mode absorption solaire à haute résolution spectrale à partir du sol, comme on peut le voir dans la Figure 55 pour un spectre enregistré par l'instrument Bruker HR125 du LPMAA (STF QualAir) à partir de Jussieu. La figure montre comment la prise en compte dans LARA des effets d'interférences entre raies dans les multiplets de la bande  $\nu_3$  du méthane [Tran *et al.*, 2006], permet de parfaitement reproduire le spectre observé, ce qui améliore l'inversion de  $CH_4$  à partir du sol. Dans le cas de IASI en mode visée au nadir et en émission thermique, j'ai montré l'impact du line mixing du méthane dans la bande  $\nu_4$  (qui est la seule région disponible de jour et de nuit dans les spectres IASI pour l'inversion de cette espèce importante). On pourra noter toutefois que si l'impact du line-mixing est non négligeable (ici de l'ordre de 1 K, cf. Figure 56), il reste comparable aux résidus encore importants obtenus lors des ajustements dans cette région spectrale [Razavi *et al.*, 2009].

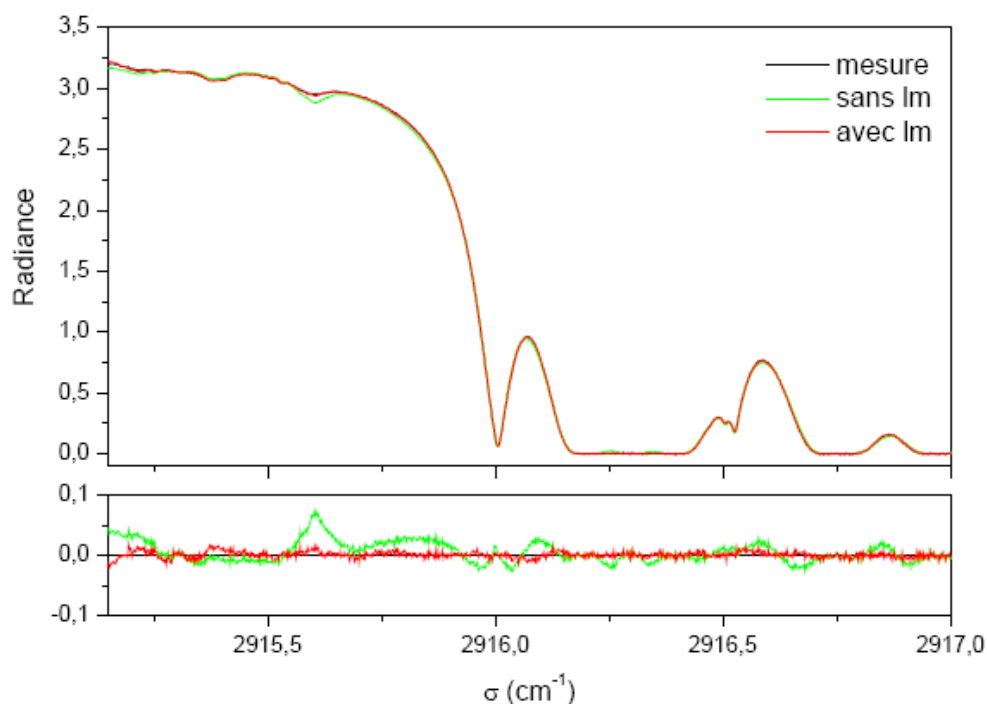


Figure 55. Spectre FTS QualAir à très haute résolution spectrale (mesure) comparé à deux ajustements avec LARA, l'un sans line mixing du méthane (sans lm) et l'autre avec prise en compte du line-mixing (avec lm).

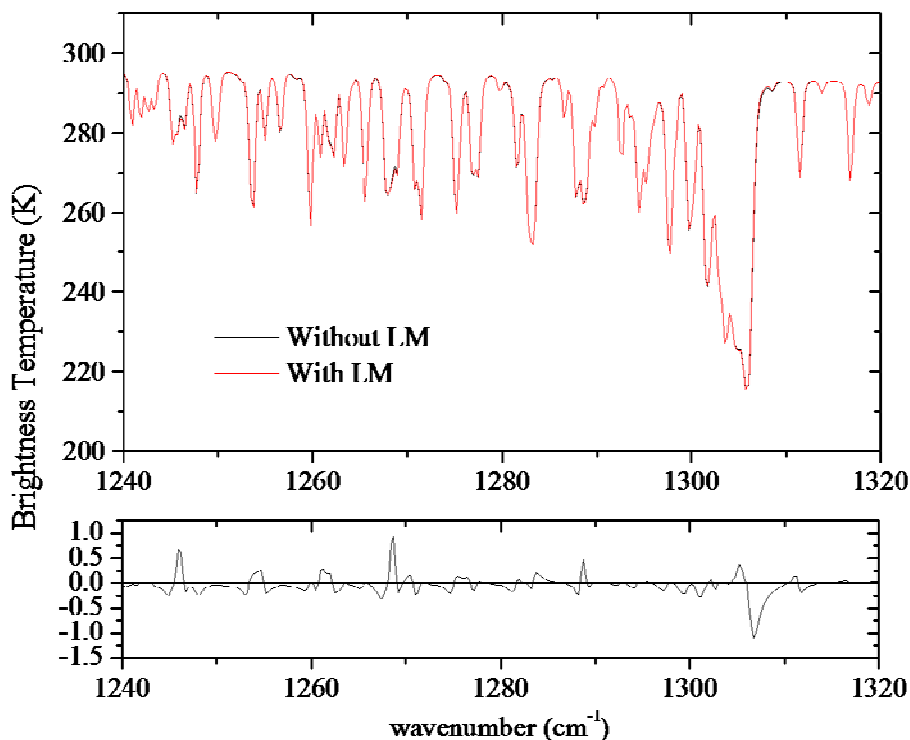


Figure 56. Comparaison de deux simulation de spectres de type IASI avec et sans la prise en compte du line-mixing dans les branches Q du méthane.

### 6.5.1 Etude de profils de raies par spectroscopie diode laser dans la bande $\nu_2 + \nu_4$ du $^{12}\text{CH}_4$

Parallèlement aux activités atmosphériques, j'ai travaillé sur des études spectroscopiques en collaboration avec l'équipe Rotation-vibration du LPMAA. Nous avons récemment travaillé sur plusieurs raies de la bande  $\nu_2 + \nu_4$  du  $^{12}\text{CH}_4$  appartenant à deux micro-fenêtres atmosphériques [Mondelain *et al.*, 2005]. La première micro-fenêtre centrée sur  $2921 \text{ cm}^{-1}$  (comprenant une raie) a été sélectionnée dans le cadre du projet européen UFTIR auquel le LPMAA était associé (*Time series of Upper Free Troposphere observations from European ground-based FTIR network*) [Barret, 2003] pour extraire la concentration troposphérique du méthane avec la meilleure précision possible, cette précision dépendant principalement de la précision des paramètres spectroscopiques (intensité et élargissement par l'air). La deuxième micro-fenêtre centrée sur  $2914,6 \text{ cm}^{-1}$  (comprenant trois raies du méthane) avait été identifiée par Claude Camy-Peyret [Camy-Peyret *et al.*, 1983 ; Flaud *et al.*, 1983] et est répertoriée dans l'atlas spectroscopique de Meier [Meier, 2004] pour quantifier la colonne de  $\text{NO}_2$ . Le problème de cette fenêtre est l'interférence avec les raies d'absorption du méthane. Le but était donc de déterminer avec la meilleure précision possible les paramètres spectroscopiques de ces raies du méthane pour obtenir une meilleure précision sur les mesures atmosphériques de  $\text{NO}_2$ .

Pour réaliser ces mesures, le spectromètre diode laser dont l'émission est asservie, via un interféromètre de Michelson, sur un laser He-Ne lui-même stabilisé en fréquence a été utilisé. Pour chaque raie (quatre au total), les différents paramètres spectroscopiques ont été mesurés de façon exhaustive, les deux paramètres les plus importants pour les applications atmosphériques étaient l'intensité et l'élargissement par l'air qui ont été mesurés avec une précision respectivement d'environ 1 % et 1,5 %.

L'élargissement par l'air a été obtenu en utilisant des profils de raies d'absorption tenant compte de l'effet Dicke (qui porte sur la partie gaussienne) et de la dépendance en vitesse (qui porte sur la partie lorentzienne). Or ces modèles ne sont pas faciles à intégrer dans les modèles atmosphériques de transfert radiatif où le profil de Voigt est généralement utilisé. L'idée est alors de remplacer le coefficient d'élargissement par l'air, obtenu avec un modèle raffiné, par un coefficient d'élargissement effectif par l'air utilisant un profil de Voigt plus facilement utilisable, ce que j'ai fait dans LARA.

### 6.5.2 Etude du multiplet P(9) du $^{12}\text{CH}_4$ dans la bande $\nu_3$ et application aux mesures atmosphériques

Le but premier de cette étude était de compléter par des mesures en laboratoire de la dépendance en température des paramètres d'élargissement et de rétrécissement, l'étude réalisée précédemment sur le méthane dans deux micro-fenêtres à 2914 et à 2921  $\text{cm}^{-1}$  de la bande  $\nu_2 + \nu_4$  [Mondelain *et al.*, 2007]. Pour cela des mesures au laboratoire de la dépendance en température ont été réalisées par l'équipe Rotation-Vibration du LPMAA pour quatre raies du multiplet P(9) de la bande  $\nu_3$  du  $^{12}\text{CH}_4$  vers 2927  $\text{cm}^{-1}$  (diode laser à sel de plomb). Cette micro-fenêtre est intéressante pour le sondage atmosphérique puisque c'est celle qu'on peut utiliser pour mesurer HCl en prenant en compte l'influence des raies de  $\text{CH}_4$ .

Les paramètres d'élargissement et de rétrécissement collisionnel ainsi que le paramètre de mélange entre raies (« line mixing ») ont été mesurés à différentes températures entre 90 K et 296 K pour du méthane mélangé avec de l'azote. De ces mesures on a pu déduire les coefficients de dépendance en température ainsi que la valeur des paramètres spectroscopiques à la température de référence de 296 K pour chacune des raies. La valeur moyenne mesurée du coefficient de dépendance en température du paramètre d'élargissement est de 0,84 ce qui est très différent de la valeur donnée dans HITRAN 2004 qui est de 0,67. Pour les paramètres de rétrécissement et de mélange entre raies aucune mesure de la dépendance en température n'existe dans la littérature pour pouvoir effectuer une comparaison.

L'effet de l'utilisation de ces résultats a été vérifié avec notre modèle d'inversion pour retrouver les profils de méthane à partir des spectres atmosphériques mesurés par l'expérience sous ballon LPMA (cf. § 3.2). La prise en compte du rétrécissement collisionnel et du mélange entre raies avec les valeurs mesurées réduit très clairement les résidus du spectre atmosphérique par rapport à l'utilisation directe de la base de données HITRAN 2004 avec un profil de Voigt. La prise en compte du mélange entre raies a ainsi un impact important sur les ailes du multiplet.

Chaque spectre acquis au cours du vol ballon LPMA a été ajusté en séparant chaque effet (dépendance en température de l'élargissement collisionnel, rétrécissement collisionnel et mélange entre raies) de manière à évaluer l'influence de cet effet sur les résidus. On voit ainsi que la prise en compte plus précise de la dépendance en température pour l'élargissement collisionnel, à la place de la valeur donnée dans HITRAN 2004, permet d'améliorer notablement les résidus pour les spectres lors de la phase de plafond et la phase d'occultation. Le même effet est observé lorsque l'on considère seulement le rétrécissement collisionnel. Par contre, la prise en compte du mélange entre raies améliore de façon importante les résidus lors de la phase d'ascension. Lorsque tous ces effets sont inclus en même temps, on obtient des résidus améliorés pour tous les spectres enregistrés lors du vol ballon (Figure 57).

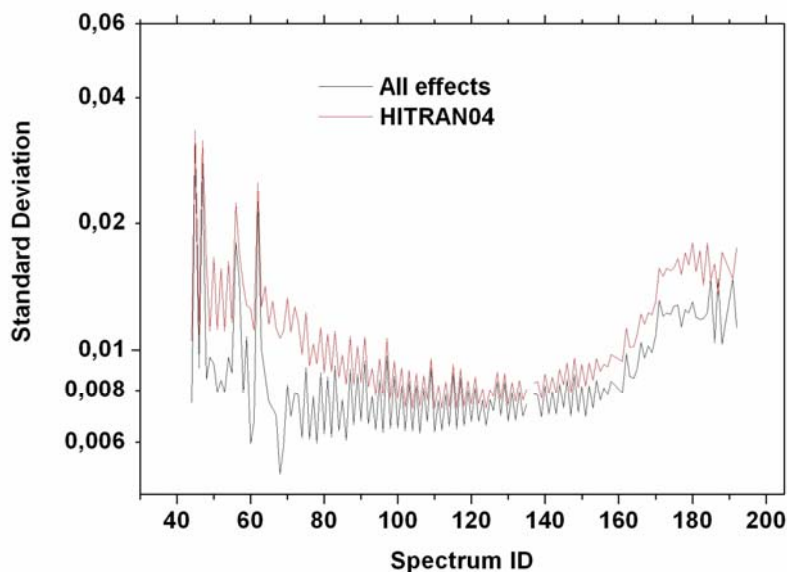


Figure 57. Résidus obtenus pour tous les spectres du vol ballon en utilisant la base de données HITRAN 2004 et un profil de Voigt (en rouge) et en prenant en compte l'effet de rétrécissement collisionnel et de mélange de raies avec les valeurs des paramètres mesurés au LPMAA (en noir).

Non seulement les résidus sont réduits mais les rapports de mélange obtenus après inversion en prenant en compte l'effet de rétrécissement collisionnel et de mélange entre raies mesurés au LPMAA sont notablement différents de ceux déterminés à partir de HITRAN 2004 avec un profil de Voigt (Figure 58). Des différences allant jusqu'à 7 % sont ainsi observées dans la moyenne et la basse stratosphère.

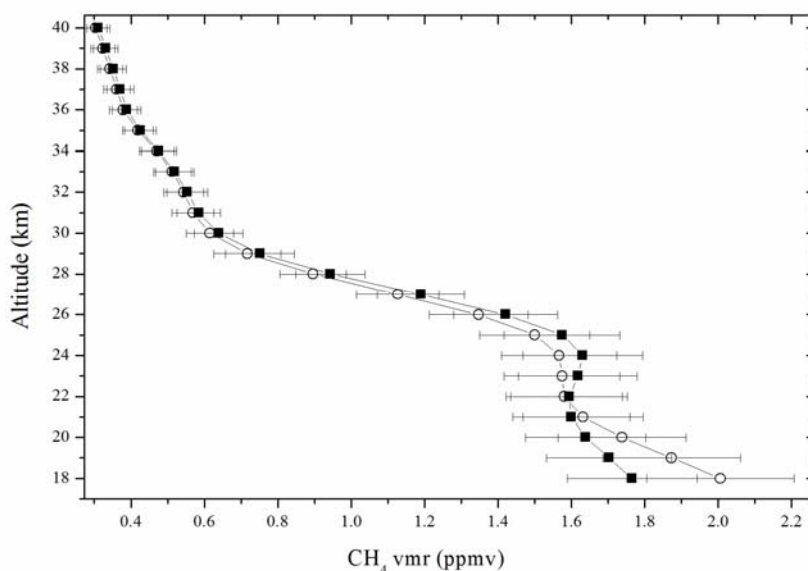


Figure 58. Rapports de mélange obtenus après inversion des spectres atmosphériques en utilisant les données HITRAN (carré noir) et les paramètres de raies du LPMAA (cercle).

Les mesures de dépendance en température du paramètre d'élargissement sont généralement modélisées avec une loi de puissance :

$$\gamma(T) = \gamma(T_{Ref}) \left( \frac{T_{Ref}}{T} \right)^n$$

Cette formule n'est en principe valable que sur un intervalle de température restreint. Grâce au grand intervalle de température sur lequel ont été réalisées les mesures au LPMAA (90 K à 296 K), on a pu constater qu'une relation différente (avec  $n$  variable avec  $T$ ) permettait un meilleur ajustement des données acquises. Concrètement on constate que lorsque la température diminue, le coefficient de dépendance en température croît continûment. Ce coefficient  $n$  peut s'exprimer en fonction de  $q$  (avec  $n = (q + 1)/(2q - 2)$ ) qui est relié au potentiel intermoléculaire  $V(R)$  par  $V(R) \propto R^{-q}$ . Ainsi, lorsque la température décroît,  $n$  augmente et  $q$  diminue, ce qui physiquement signifie que l'élargissement par collisions est plus sensible aux forces d'attraction à longue portée lorsque la température diminue.

## 6.6 Exercice d'intercomparaison

Le LPMAA a participé de façon active à la préparation scientifique de la mission IASI (cf. § 4.3.2.2). Au sein du groupe scientifique ISSWG (dont C. Camy-Peyret est co-président), le LPMAA a participé à l'exercice d'intercomparaison de codes de calcul direct de transfert radiatif avec son algorithme LARA.

Afin de documenter les performances des modèles de transfert radiatif usuels, une étude a été réalisée pour comparer, d'une part les simulations des modèles avec des observations réelles, et d'autre part les simulations entre elles. Deux ensembles d'observations ont été sélectionnées pour cette étude. Pour chacun d'eux, des mesures à haute résolution spectrale sont disponibles et l'état de l'atmosphère est connu de manière satisfaisante. Le premier ensemble de données expérimentale consiste en radiances mesurées par l'interféromètre avion HIS durant la campagne CAMEX-1 sur la côte est des USA. Le second ensemble consiste en une d'observation de l'interféromètre avion ARIES durant la campagne insulaire ASCENSION au dessus de l'Atlantique tropical. Ces mesures présentent un taux d'humidité et des températures supérieurs à ceux de CAMEX.

Au total, 13 équipes de recherche ont participé à cet exercice avec 7 modèles différents de calcul raie-par-raie du transfert radiatif atmosphérique. J'ai participé à cette intercomparaison avec LARA. Les résultats de l'étude ont démontré la capacité des différents modèles à reproduire les observations dans plusieurs régions spectrales. Dans d'autres régions, des différences parfois importantes ont été constatées entre les mesures et les simulations. Ces différences sont en général bien identifiées et comprises et des modifications ont été apportées depuis cette étude dans la plupart des modèles impliqués. Les résultats des intercomparaisons sont présentés dans [Tjemkes *et al.*, 2003] et montrent bien l'importance de ce type d'étude pour l'analyse des mesures des nouveaux sondeurs spatiaux comme AIRS, IASI ou TES pour lesquels des codes de transfert radiatif rapides sont utilisés pour simuler et inverser les mesures.

J'ai également collaboré avec le Service d'Aéronomie et l'Université Libre de Bruxelles pour la définition et la mise au point d'un algorithme pour l'inversion de CO qui combinerait la méthode du réseau de neurones du SA et la méthode d'ajustement par moindres carrés du LPMAA. Après développement par ces deux laboratoires, cet algorithme devait être « industrialisé » par le CNES et proposé à EUMETSAT (qui développe le segment sol du satellite MetOp et l'instrument IASI) pour implantation dans la chaîne de traitement opérationnelle.

Enfin, plus récemment, j'ai collaboré avec le LISA et le LATMOS dans le cadre d'un exercice d'intercomparaison pour l'inversion des mesures IASI [Keim *et al.*, 2009]

## 6.7 Autres études

Je donnerais ici deux exemples d'études dans lesquelles j'ai été impliqué récemment et qui sont en lien avec le transfert radiatif et l'inversion.

La première porte sur le sondage de la température atmosphérique dans l'infrarouge thermique qui est une des missions prioritaires de la météorologie spatiale. Dans ce domaine, IASI fournit le profil de température avec des performances très élevées. Le bruit radiométrique est un facteur déterminant pour l'inversion du profil de température. Or, dans la bande du CO<sub>2</sub> à 15 µm utilisée actuellement pour l'inversion de la température, les technologies des détecteurs sont critiques et permettent difficilement d'atteindre les performances souhaitées.

Il est donc nécessaire de trouver de nouvelles voies non encore exploitées pour le sondage en température. Ce dernier est effectué généralement dans les bandes d'absorption du CO<sub>2</sub> car c'est un composé stable de l'atmosphère et sa variabilité reste faible. Le N<sub>2</sub>O peut également être intéressant car il est également très stable dans la troposphère. Il est aussi possible de faire un sondage en température dans les raies de vapeur d'eau mais il faut pour cela inverser simultanément le profil de vapeur d'eau (qui présente une très forte variabilité).

Dans le cadre des études post-IASI conduites au CNES en 2006, à la suite desquelles une phase 0 est conduite actuellement, nous avons réalisé des simulations pour explorer de nouvelles voies permettant d'obtenir un instrument au moins aussi performant que IASI mais plus simple, basé sur le concept d'interférométrie statique. Ces études CNES, qui se placent également dans le contexte plus large des études post-EPS menées par EUMETSAT impliquant les agences spatiales et météorologiques européennes, ont permis de proposer les pistes suivantes :

- sondage en température dans la bande d'absorption du CO<sub>2</sub> à 4.3 µm uniquement,
- sondage en température dans les bandes d'absorption du N<sub>2</sub>O à 4.5 et 8.7 µm
- sondage simultané de la température et de l'humidité dans la bande d'absorption de H<sub>2</sub>O

La problématique du sondage en température peut se décliner de plusieurs façons. D'un point de vue opérationnel, les centres de prévision numérique du temps (ECMWF, Météo-France, UKMO) assimilent des radiances pour contraindre un modèle météorologique numérique qui est contraint par de nombreuses données autre que celles du sondeur infrarouge considéré (comme IASI ou son successeur par exemple). D'un point de vue de la physique de la mesure, on peut aussi examiner quelles performances et donc ultérieurement quelle technique instrumentale permettrait de réaliser de façon indépendante, i.e. dans une configuration « stand-alone », le sondage en température par inversion (plutôt que par assimilation) des radiances.

Les 2 options sont reliées conceptuellement et programmatiquement, mais c'est dans la deuxième optique que s'inscrit l'étude que nous avons faites récemment en collaboration avec le LMD et Noveltis, et pour laquelle une poursuite possible est examinée par le CNES.

Le deuxième exemple d'étude que je présente dans ce paragraphe est le projet CAMELOT de l'ESA (*Composition of the Atmospheric Mission concepts and Sentinel Observation Techniques*). L'objectif de cette étude était de définir comment exploiter au mieux les performances actuelles des sondeurs dans le cadre de la prévision de la qualité de l'air, du climat, ou encore de la couche d'ozone, et ce dans le contexte du programme européen *Global Monitoring for Environment and Security* (GMES) et la préparation des missions d'observations de la Terre Sentinelle 4 et 5 ou de précurseurs potentiels. Il s'agit

donc de préparer la surveillance de la composition de l'atmosphère durant la période 2013-2020.

Sans rentrer dans les détails du projet qui inclut 10 instituts Européens (LPMAA, KNMI, RAL, U. Leicester, SRON, FMI, BIRA-IASB, CNR-IFAC, NOVELTIS and RIU-U. Köln), je présente rapidement les résultats de l'étude que j'ai menée au sein de ce projet sur l'inversion du méthane et qui vise à déterminer les paramètres instrumentaux optimaux (résolution spectrale, largeur spectrale, rapport signal à bruit) ou le contenu en information pour un ensemble de paramètres instrumentaux fixés. Le principe consiste à utiliser la théorie de l'information et le formalisme de Rodgers [2000] pour déterminer de manière quantifiable la quantité d'information (nombre de degrés de liberté ou DOFS) qu'il est possible d'extraire d'une mesure. J'ai été chargé de mener une étude de ce type pour le méthane. Le sondage à distance de cette espèce depuis l'espace dans l'infrarouge thermique est assez récent. Un travail d'analyse des mesures de IMG a été initié en utilisant des raies de la branche  $\nu_4$  du méthane [Turquety *et al.*, 2004] et indiquait dans ce cas un DOFS maximum de 1.8 avec un maximum de sensibilité dans la troposphère libre et la haute troposphère. Des analyses récentes des données IASI confirment ce point [Razavi *et al.*, 2009]. Dans le cas de IASI un aspect intéressant consiste à utiliser de jour les informations provenant de la bande  $\nu_3$  lorsque le rayonnement solaire est réfléchi (cf. chapitre 8). Une synergie des deux bandes du méthane dans les spectres IASI peut permettre d'augmenter le DOFS jusqu'à dépasser 2 et ainsi ajouter de l'information dans la couche limite.

Dans le cas de CAMELOT, j'ai réalisé une série de calcul du DOFS et de l'erreur totale sur l'inversion de  $\text{CH}_4$  pour différents scénarios instrumentaux. Un exemple est présenté dans la Figure 59 et Figure 60. A partir de ces simulations il est possible de sélectionner un domaine spectral optimal pour l'inversion d'une espèce avec une erreur minimale. Un autre exemple est donné dans le Tableau 4. Variation du DOFS en fonction de la résolution spectrale et du bruit instrumental pour une couverture spectrale centrée à  $1286 \text{ cm}^{-1}$  et une largeur de  $42 \text{ cm}^{-1}$ . La dernière ligne du tableau correspond aux caractéristiques de IASI. Après une analyse de l'ensemble de nos résultats nous avons pu conclure les éléments suivants pour l'inversion du méthane dans l'infrarouge thermique :

- La région optimale est centrée à  $1286 \text{ cm}^{-1}$  et a une largeur de  $42 \text{ cm}^{-1}$ . Cela correspond donc à l'intervalle  $[1265 \text{ cm}^{-1}, 1307 \text{ cm}^{-1}]$ .
- L'inversion de  $\text{CH}_4$  dans cette région doit être faite simultanément avec l'inversion de  $T_{\text{surf}}$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{N}_2\text{O}$  et  $\text{HNO}_3$ . Si ce n'est pas le cas l'erreur *a priori* correspondante serait la principale dans l'erreur de la colonne inversée de  $\text{CH}_4$ .
- L'émissivité de surface doit être fixée (banque de donnée *ad hoc* comme l'IGBP) afin de décorréler l'inversion de  $T_{\text{surf}}$ .
- L'erreur sur le profil de température ne représente pas une source principale d'erreur sur la colonne inverse du méthane.
- L'abondance de  $\text{CO}_2$  peut-être fixée sans conséquences puisque la prise en compte de son erreur *a priori* n'induit pas de changement significatif dans l'erreur totale de  $\text{CH}_4$ .
- L'abondance de  $\text{SO}_2$  doit être considérée de manière différente dans le cas « normal » et dans celui d'une éruption volcanique. Dans le cas volcanique,  $\text{SO}_2$  doit être inversé simultanément avec les autres paramètres critiques. Ce n'est pas nécessaire dans le cas non volcanique.
- Pour atteindre un objectif de 0.5 % d'erreur sur la colonne de  $\text{CH}_4$  (i.e. une précision de 9 ppmv pour un rapport de mélange au sol actuel de 1800 ppmv), les caractéristiques instrumentales doivent être les meilleurs testées dans cette étude (résolution spectrale de  $0.125 \text{ cm}^{-1}$  et bruit NEDT de 0.100 K). Avec ces performances le nombre de degré de liberté est alors de 3 pour le profil de méthane. Toutefois, cette

estimation ne tient compte que de l'erreur purement instrumentale et l'erreur *a priori*, elle n'intègre pas les erreurs induites par les autres paramètres dont la contribution devrait être au moins égale à 1 %. Un DOFS égal à 3 assure toutefois de pouvoir obtenir de l'information sur le méthane dans la basse troposphère, la troposphère moyenne, et l'UT/LS.

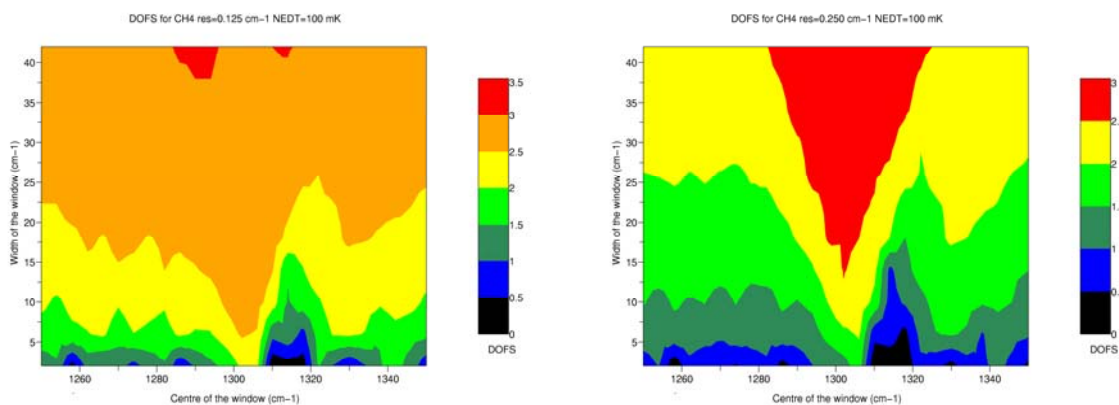


Figure 59. Information verticale (DOFS) comme fonction du nombre d'onde dans la région TIR de l'absorption du méthane, pour différents choix d'intervalle spectraux (centre de bande, largeur de bande). Le scénario présenté ici est une moyenne des conditions géophysique au dessus de l'Europe ( $T_{\text{surf}}=292\text{ K}$ ). La figure de gauche correspond au cas [FWHM = 0.125 cm<sup>-1</sup> / NEAT = 0.10 K] et celle de droite au cas [FWHM = 0.250 cm<sup>-1</sup> / NEAT = 0.10 K] pour la combinaison résolution spectrale et valeur de bruit instrumental.

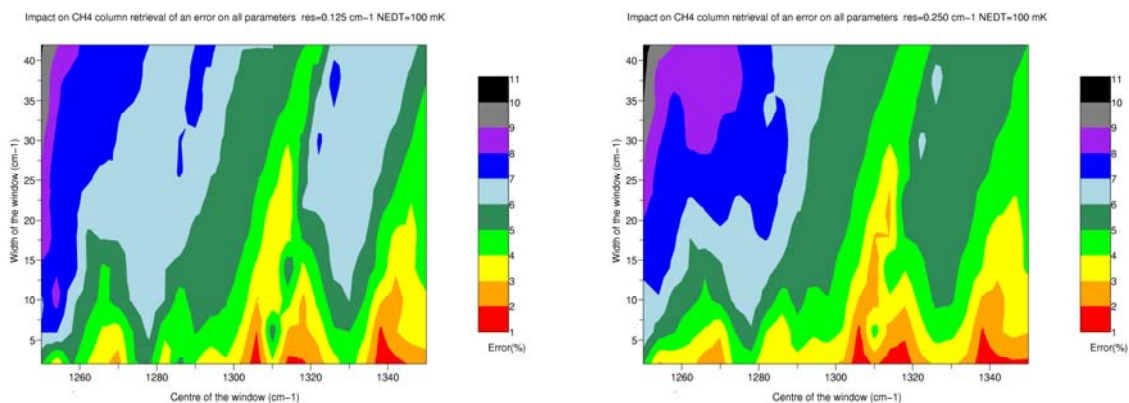


Figure 60. Erreur totale sur CH<sub>4</sub> (%) comme fonction du nombre d'onde dans la région TIR de l'absorption du méthane, pour différents choix d'intervalle spectraux (centre de bande, largeur de bande). Le scénario présenté ici est une moyenne des conditions géophysique au dessus de l'Europe ( $T_{\text{surf}}=292\text{ K}$ ). La figure de gauche correspond au cas [FWHM = 0.125 cm<sup>-1</sup> / NEAT = 0.10 K] et celle de droite au cas [FWHM = 0.250 cm<sup>-1</sup> / NEAT = 0.10 K] pour la combinaison résolution spectrale et valeur de bruit instrumental.



| Résolution spectrale ( $\text{cm}^{-1}$ ) | Bruit instrumental (NEDT en mK) | DOFS |
|---|---------------------------------|------|
| 0.125                                     | 100                             | 3.04 |
| 0.125                                     | 142                             | 2.85 |
| 0.125                                     | 200                             | 2.62 |
| 0.166                                     | 100                             | 2.92 |
| 0.166                                     | 142                             | 2.70 |
| 0.166                                     | 200                             | 2.43 |
| 0.250                                     | 100                             | 2.73 |
| 0.250                                     | 142                             | 2.46 |
| 0.250                                     | 200                             | 2.14 |
| 0.500                                     | 100                             | 2.34 |
| 0.500                                     | 142                             | 2.00 |
| 0.500                                     | 200                             | 1.63 |
| 0.500                                     | 250                             | 1.39 |

Tableau 4. Variation du DOFS en fonction de la résolution spectrale et du bruit instrumental pour une couverture spectrale centrée à  $1286 \text{ cm}^{-1}$  et une largeur de  $42 \text{ cm}^{-1}$ .

## 7 Physico-chimie atmosphérique

### 7.1 Contexte

La découverte d'une diminution massive de l'ozone stratosphérique en Antarctique au milieu des années 80 a provoqué une mobilisation sans précédent de la communauté scientifique pour tenter de comprendre et quantifier les mécanismes principaux qui conduisent à la destruction de l'ozone en région polaire. On sait maintenant que cette destruction est liée à la conjonction de plusieurs processus. La destruction de l'ozone est due à des cycles catalytiques faisant intervenir des radicaux halogénés actifs (Cl, ClO, Br, BrO) qui sont régénérés à la fin de chacun des cycles. En amont de ces cycles catalytiques, la prise en compte d'autres phénomènes est nécessaire pour expliquer la destruction d'ozone. La présence d'espèces halogénées dans la stratosphère provient majoritairement de l'injection par l'homme de composés inertes dans la troposphère. Leur longue durée de vie dans la basse atmosphère leur permet d'atteindre la stratosphère où ils sont photodissociés et conduisent à la formation d'espèces réactives. Ils peuvent de façon intermédiaire être transformés en espèces réservoirs, non réactives sur l'ozone. La présence de radicaux détruisant l'ozone dans la stratosphère résulte de la formation de nuages stratosphériques polaires (ou PSC pour *Polar stratospheric cloud*) qui transforment les espèces réservoirs en espèces actives par le biais de réactions hétérogènes à leur surface.

L'ozone est également la molécule clé de l'équilibre chimique de la basse atmosphère (troposphère - stratosphère). Sa physico-chimie fait intervenir l'ensemble des autres molécules et la plupart des réactions se produisant dans ces deux régions, la troposphère et la stratosphère, conduisent plus ou moins directement à la production ou à la destruction d'ozone. Cependant, l'étude du bilan de l'ozone ne peut pas se limiter à la seule chimie de cette espèce, les processus de transport notamment jouent un rôle essentiel. La haute troposphère et la basse stratosphère sont deux régions clé dans le bilan de l'ozone. Ce sont dans ces deux régions que les conséquences des activités humaines sont les plus importantes : la forte destruction d'ozone se produisant au printemps polaire a principalement lieu dans la basse stratosphère, alors que son augmentation dans la haute troposphère reflète les émissions croissantes de polluants par l'homme. Dans cette première partie, nous discuterons les principaux processus chimiques et dynamiques régissant l'équilibre physicochimique de ces deux régions, en soulignant les points encore mal compris.

La distribution d'ozone dans la stratosphère est contrôlée principalement par le cycle de Chapman et par plusieurs cycles catalytiques faisant intervenir les radicaux hydrogénés (OH et HO<sub>2</sub>), azotés (NO et NO<sub>2</sub>), chlorés (Cl, ClO) et bromés (Br, BrO). Cette distribution est soumise à une variabilité naturelle annuelle et interannuelle due, par exemple, à la variation de l'ensoleillement ou aux changements dans les processus de transport au cours de l'année. Pour comprendre les changements dans la concentration d'ozone imputables aux activités humaines, il est donc important de comprendre, dans un premier temps, la distribution d'ozone naturelle et son évolution temporelle sur les deux échelles de temps saisonnière et interannuelle. Le cycle saisonnier de l'ozone a été largement étudié aussi bien par des mesures au sol que satellitaires. D'une manière générale, les quantités totales intégrées (colonnes totales) d'ozone sont maximales pendant les périodes de faible ensoleillement et minimales pendant les périodes de fort ensoleillement. L'amplitude des variations est donc de plus en plus grande au fur et à mesure que la latitude augmente. La saisonnalité est très faible aux tropiques de l'ordre de  $\pm 4\%$  alors qu'elle peut atteindre  $\pm 20\%$  aux hautes latitudes suivant les régions considérées. La plupart des variations de la colonne d'ozone se produisent dans la

basse stratosphère entre 10 et 20 km. Etant donné la durée de vie photochimique de l'ozone, relativement longue dans cette région, les variations saisonnières sont principalement attribuables au transport [Perliski *et al.*, 2002].

Dans la majeure partie de la stratosphère, l'ozone est en équilibre photochimique : sa concentration résulte d'un équilibre entre les taux de production et de destruction chimique de l'ozone pour ces altitudes et latitudes. Dans la basse stratosphère aux hautes latitudes en été, cet équilibre se déplace au profit de la destruction de  $O_3$ . L'augmentation du temps d'ensoleillement au cours de la journée à partir du printemps, conduit à une augmentation des concentrations de  $NO_x$  (leur réservoir  $N_2O_5$  étant rapidement photodissocié) et ainsi à une augmentation de l'efficacité du cycle catalytique de l'ozone par les oxydes d'azote. Les quantités d'ozone dans la basse stratosphère tropicale sont, quant à elles, contrôlées à la fois par la production d'oxygène impair  $O_x$  ( $O + O_3$ ), qui est rapide aux tropiques, et par le transport de masses d'air pauvre en ozone de la troposphère vers la stratosphère. Dans la stratosphère polaire durant la nuit polaire, le transport devient prépondérant. Le maximum saisonnier se produit dans les deux hémisphères à la fin de l'hiver et au printemps. Dans l'hémisphère nord, le maximum se produit dans les régions polaires alors que dans l'hémisphère sud, il a lieu entre  $40^\circ S$  et  $60^\circ S$ , avec un minimum relatif au-dessus du pôle. Ce maximum provient dans les deux cas, de la circulation de Brewer-Dobson qui transporte l'ozone des tropiques (région de forte production de l'ozone) aux pôles durant l'hiver et le printemps. Dans l'hémisphère sud, le maximum d'ozone se produit entre  $40^\circ S$  et  $60^\circ S$  à cause de la forte descente diabatique dans la basse stratosphère sur le bord du vortex (le vortex Antarctique étant fortement isolé contrairement au vortex Arctique). Le minimum relatif d'ozone au-dessus du pôle sud en hiver est donc dû à un effet climatologique lié au transport. Concernant la variabilité de l'ozone interannuelle, elle est comparable, dans les tropiques, à la variabilité saisonnière et elle est principalement dominée par l'oscillation quasi-biennale (QBO). Aux moyennes latitudes, la variabilité interannuelle est plus faible que la variabilité saisonnière. Elle est influencée par la variabilité temporelle des processus de transport comme, par exemple, l'oscillation quasi-biennale (QBO), les oscillations zonales liées à El Niño. Un faible signal ( $\pm 1\%$ ) lié au cycle solaire de 11 ans est aussi observé dans les colonnes d'ozone, de même que l'effet des éruptions volcaniques augmentant la charge en aérosols de l'atmosphère épisodiquement [WMO, 1998].

Les tendances observées dans la colonne totale d'ozone (diminution), en dehors de sa variabilité naturelle, reflètent principalement les changements dans la basse stratosphère aussi bien aux latitudes moyennes qu'aux latitudes polaires. Ces deux régions possèdent plusieurs propriétés qui favorisent la destruction d'ozone :

- elles sont situées assez loin de la zone principale de production d'ozone, les tropiques.
- le chlore et les oxydes d'azote sont principalement libérés par leurs précurseurs dans la basse stratosphère
- la plupart des aérosols sulfatés sont relâchés dans cette région lors des éruptions volcaniques et donc résident dans cette zone, la rendant plus vulnérable aux processus de chimie hétérogène
- la basse stratosphère est la partie la plus froide de la stratosphère augmentant ainsi la réactivité des aérosols sulfatés. Les réactions hétérogènes jouent donc un rôle majeur dans cette région
- dans les régions polaires, le refroidissement radiatif pendant la nuit polaire conduit à la création d'un vortex pendant l'hiver et au début du printemps, inhibant les échanges entre le vortex et les régions extrapolaires. A l'intérieur de ce vortex, les températures peuvent alors être suffisamment froides pour entraîner la formation de nuages polaires stratosphériques.

Dans les régions polaires, la destruction d'ozone est saisonnière (printemps) et elle n'est pas masquée par la variation de l'ozone discutée ci-avant. Cette destruction d'ozone est toujours associée à des températures froides, à une faible production d'ozone dans cette région (résultant d'un transport à partir des régions tropicales limité par la barrière dynamique que constitue le vortex polaire) et à la rapide perte d'ozone se produisant lorsque les parcelles d'air polaire sont à nouveau exposées au rayonnement solaire au printemps [WMO, 2007].

L'activation des chlores et des bromes par des processus de chimie hétérogène n'est possible que dans deux conditions : de très basses températures et la présence de rayonnement solaire. Pendant la nuit polaire, les températures atteignent le seuil de formation des PSCs. A ces températures, l'adsorption des molécules de HCl gazeuses sur les particules liquides ou solides est très efficace. Des réactions hétérogènes ont alors lieu à la surface de ces particules (liquides ou solides), libérant le chlore (brome) des réservoirs HCl et ClONO<sub>2</sub> (HBr et BrONO<sub>2</sub>). Au printemps, les pôles sont à nouveau illuminés par le rayonnement solaire. Les molécules en phase gazeuse Cl<sub>2</sub>, HOCl, BrCl et HOBr sont alors rapidement photodissociées, libérant ainsi des atomes de chlore et de brome très réactifs. Les cycles catalytiques de destruction d'ozone, impliquant ces espèces, sont alors enclenchés. A noter qu'en présence de N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, d'autres réactions peuvent avoir lieu. Toutes ces réactions sont doublement impliquées dans la destruction de l'ozone stratosphérique : d'une part, elles activent les cycles de destruction de l'ozone lié au chlore et au brome et d'autre part, elles réduisent l'efficacité de l'inactivation du chlore (brome) par NO<sub>2</sub> en piégeant HNO<sub>3</sub> dans les particules solides ou liquides.

Les molécules de HNO<sub>3</sub> piégées dans les PSCs s'évaporent lorsque les conditions de température ne permettent plus leur existence, régénérant ainsi le dioxyde d'azote NO<sub>2</sub> soit par réaction avec OH, soit par photodissociation au printemps polaire : cette renitrication est temporaire. On parle alors de noxification. Il peut également se produire une dénitrification irréversible et définitive résultant de la formation de grosses particules contenant du HNO<sub>3</sub>, probablement sous la forme d'hydrates d'acide nitrique [Fahey *et al.*, 2001; Northway *et al.*, 2002]. Les instruments actuels permettent d'observer ces grosses particules en faible concentration dans la stratosphère [Carslaw *et al.*, 2002]. Ces grosses particules tombent sous l'effet de la gravité à des altitudes inférieures à leur altitude de formation supprimant en moyenne plus de 60 % de HNO<sub>3</sub> vers 20 km en Arctique et plus de 80 % en Antarctique [Santee *et al.*, 1999]. Typiquement, cette dénitrification par sédimentation se produit sur environ 2 à 3 km entre 18 et 21 km en Arctique [Irie *et al.*, 2002] et sur plus de 10 km en Antarctique [Tabazadeh *et al.*, 2000]. Cette dénitrification expliquerait 30 % de la destruction d'ozone d'après les mesures [Waibel *et al.*, 1999] et les modèles [Chipperfield et Pyle, 1998 ; Drdla et Schoeberl, 2002] en Arctique, où elle est la moins importante.

Parallèlement à la dénitrification, une déshydratation, pouvant supprimer jusqu'à 1 ppm de vapeur d'eau sur 1 à 2 km [Pan *et al.*, 2002], peut se produire aussi bien en Arctique qu'en Antarctique. Ce phénomène tempère la destruction d'ozone en rendant la formation des PSCs moins facile et en diminuant les taux des réactions hétérogènes (ils diminuent exponentiellement avec la diminution de l'humidité) [Portmann *et al.*, 1996 ; Chipperfield et Pyle, 1998]. En Antarctique, la diminution de la colonne d'ozone peut être réduite d'environ 20 % grâce à la déshydratation [Portmann *et al.*, 1996 ; Brasseur *et al.*, 1997]. Cependant, en Arctique, les températures ne sont pas suffisamment basses pour déclencher une forte déshydratation et réduire significativement la destruction d'ozone [Tabazadeh *et al.*, 2000].

De gros efforts ont été faits ces dernières années d'une part pour étudier ces phénomènes de dénitrification et d'autre part pour étudier les processus de formation des nuages stratosphériques polaires.

Les importantes pertes d'ozone durant le printemps polaire (communément appelées « trou d'ozone ») ont été observées pour la première fois dans le milieu des années 80 en Antarctique. Ces pertes sont liées à l'augmentation des quantités de chlore dans l'atmosphère depuis les années 70. Hormis le chlorure de méthyle, seule source naturelle de chlore, les principales sources de chlore dans l'atmosphère proviennent de l'utilisation industrielle des composés organochlorés, comme les CFCs (Chlorofluorocarbones). Ces composés ont des durées de vie suffisamment longues pour atteindre la stratosphère où ils sont photodissociés libérant ainsi du chlore actif et augmentant la charge en chlore de la basse stratosphère. L'émission de ces substances est réglementée depuis 1987 par le Protocole de Montréal et ses différents amendements. Un rapport de l'Organisation Mondiale de Météorologie [WMO, 2002] souligne que les quantités de CFC-11 et CFC-113 (deux des plus abondants CFCs) ont commencé à diminuer depuis 1996 et le taux de croissance de CFC-12 s'est stabilisé. L'évolution des concentrations de ces différentes molécules doit être surveillée afin de mesurer leur impact sur la couche d'ozone et de pouvoir prédire un rétablissement aux niveaux observés avant les années 1970. En revanche, les produits de remplacement des CFCs sont en constante augmentation. Leur effet sur l'ozone est faible par rapport à celui des CFCs. Cependant, ces molécules sont des puissants gaz à effet de serre. Connaissant mal leur transformation dans la troposphère et leur taux de transport dans la basse stratosphère, il est nécessaire de développer les mesures de leur distribution dans la haute troposphère et la basse stratosphère (ces espèces sont à l'heure actuelle principalement mesurées au sol par les réseaux de mesures AGAGE [Prinn *et al.*, 2000] et NOAA/CMLD [Hall *et al.*, 2002]).

Les modèles les mieux adaptés pour tester notre compréhension de l'équilibre de la basse stratosphère semblent être les modèles de chimie-transport à 3 dimensions (notés CTMs). Grâce à leur capacité à prendre en compte l'ensemble des réactions chimiques (connues) ayant lieu dans l'atmosphère et grâce à leur capacité à décrire l'interaction entre la chimie et le transport sur des échelles de temps comparables, ces modèles conduisant à de bonnes simulations des mesures effectuées. La prise en compte des schémas de formation des PSCs et des processus de chimie hétérogène leur permettent de capturer la destruction de l'ozone pendant le printemps polaire. Cependant, les CTMs ont tendance à sous-estimer les quantités de  $\text{NO}_2$  et de  $\text{NO}_y$  en général, en particulier dans la basse stratosphère. De plus, la plupart des modèles ont tendance à surestimer les quantités d'ozone dans la stratosphère moyenne. Ils n'arrivent généralement pas à reproduire l'amplitude totale des variations de l'ozone durant l'année, en particulier la diminution entre le printemps et l'automne. La surestimation de l'ozone et la sous-estimation des  $\text{NO}_y$  sont souvent attribuées à une mauvaise prise en compte du transport, en particulier la descente aux pôles dans la circulation de Brewer-Dobson et les phénomènes de mélange horizontaux [Fahey et Ravishankara, 1999]. Une autre source d'erreur concernant l'amplitude calculée de la destruction d'ozone provient d'une surestimation des températures au niveau de formation des PSCs. L'activation des chlores est alors sous-estimée et la quantité d'ozone surestimée [WMO, 1998]. On peut cependant noter que lorsque les modèles sont contraints par les mesures et utilisés sur une période de quelques jours, ils reproduisent bien les quantités de  $\text{NO}_y$  observées [Dufour *et al.*, 2004b]. D'autre part, bien que les améliorations apportées aux CTMs ces dernières années leur permettent d'effectuer des simulations sur plusieurs saisons, voir plusieurs années et de capturer en partie la variation saisonnière de l'ozone, ils doivent être couplés à des modèles de circulation générale (GCM) afin de pouvoir prédire les futurs changements atmosphériques [WMO, 1998]. L'activation des composés halogénés est une étape cruciale pour la quantification de la destruction d'ozone. Dans les années 2000 les modèles stratosphériques tridimensionnels avaient tendance à sous-estimer ce processus [Van den Broek *et al.*, 2000; Solomon *et al.*, 2000]. D'où l'intérêt des scientifiques pour une meilleure connaissance de la nature et du mode de formation des nuages stratosphériques polaires.

Contrairement aux régions polaires, la destruction d'ozone aux moyennes latitudes ne peut être estimée qu'en soustrayant l'effet du cycle annuel. Dans cette région, il est donc nécessaire de bien comprendre et modéliser la variabilité naturelle de l'ozone avant de pouvoir quantifier et attribuer la destruction d'ozone à un facteur ou à un autre. Aux latitudes moyennes, des réactions hétérogènes ont également lieu sur les aérosols sulfatés et sont source de destruction d'ozone. Les cycles catalytiques impliquant  $\text{NO}_x$  et  $\text{HO}_x$  sont dominants dans les processus de perte d'ozone dans cette région, mais le cycle catalytique impliquant  $\text{ClO}_x$  conduit également à une perte significative d'ozone [WMO, 1998]. L'augmentation des quantités de chlore dans l'atmosphère accroît les pertes d'ozone dans les moyennes latitudes. L'hydrolyse de  $\text{N}_2\text{O}_5$  sur ces aérosols accroît indirectement le chlore actif, les températures sont suffisamment faibles dans cette région pour une activation efficace du chlore et la zone tropicale de forte production d'ozone est éloignée. Une destruction significative d'ozone peut donc se produire même pour des taux de destruction de l'ozone plus lents que ceux rencontrés dans les régions polaires.

Cependant, la stratosphère ne peut pas être considérée indépendamment de la troposphère. En effet, les processus régissant sa structure et sa composition ne sont pas uniquement localisés dans la stratosphère. Par exemple, l'augmentation de la concentration des gaz à effet de serre dans la troposphère devrait entraîner une diminution des températures dans la stratosphère et ainsi augmenter l'occurrence des PSCs. La destruction d'ozone sera alors renforcée. Il est donc nécessaire de considérer les changements dans la troposphère pour prédire précisément le rétablissement de la concentration d'ozone. Les échanges entre la troposphère et la stratosphère, discutés plus loin, induisent également des changements dans ces deux régions.

Au sein de l'équipe Atmosphère du LPMAA, j'ai collaboré de longue date avec la communauté géophysique [Camy-Peyret, 2007b] en donnant accès et en analysant nos mesures atmosphériques. Les profils verticaux de concentration obtenus par notre équipe sont utilisés, par exemple, pour comparaison avec des modèles de chimie et de transport. Ces comparaisons permettent de mettre en évidence les manques et les anomalies dans les simulations. Par exemple, l'ozone stratosphérique [Tilmes *et al.*, 2007] reste mal modélisé dans les modèles de chimie/transport. C'est un problème majeur lorsqu'on veut estimer quantitativement les pertes d'ozone durant l'hiver polaire. Je présente dans la suite de ce chapitre une partie de mes travaux sur la chimie des composés chlorés et des oxydes d'azote, ainsi que sur la méthodologie des comparaisons mesures/modèles. J'ai mené une partie de ces travaux sur les espèces chlorées et bromées avec plusieurs thésitifs de l'équipe [Weidner *et al.*, 2005; Dorf *et al.*, 2006a; Dorf *et al.*, 2006b ; Butz *et al.*, 2007] en collaboration avec les chercheurs allemands (IUP, Université de Heidelberg) qui réalisent avec nous les vols de la nacelle ballon dans la configuration optique LPMA/DOAS.

Depuis quelques temps je m'intéresse également à la chimie troposphérique. La chimie de la troposphère est complexe. Elle fait intervenir un grand nombre d'espèces dont certains composés qui proviennent de sources naturelles telles que les massifs forestiers, les marais, les vaches, ... (sources biotiques), d'autres qui sont dus majoritairement aux activités humaines (sources anthropiques) comme la plus grande partie des oxydes d'azote ( $\text{NO}_x$ ) et certains composés organiques volatils (COV).

L'ozone est l'une des espèces les plus étudiées du fait des concentrations croissantes observées dans la troposphère et des effets nocifs, dus à son caractère oxydant, qui touchent aussi bien les populations que la végétation. Les effets à court terme de l'ozone sur la population sont principalement une réduction de la fonction respiratoire accompagnée d'une inflammation au niveau des bronches et d'une augmentation statistique de l'asthme pour des

concentrations comprises entre 0.15 et 1 ppm. L'ozone cause également des irritations des yeux et de la gorge dès 0.1 ppm [Kuentz Burchi, 1996]. Les atteintes sur les végétaux se caractérisent en général par une perturbation des mécanismes de photosynthèse qui ralentit la croissance des plantes ou diminue le rendement des cultures : dommages sur les parties foliaires, sénescence précoce, etc.

L'augmentation de la concentration en ozone est souvent considérée comme un des signaux d'alerte concernant la dégradation de la qualité de l'air en milieu urbain, notamment à cause des fortes concentrations observées au cours d'épisodes de pollution photochimique. Il faut noter que l'ozone est accompagné dans ce cas de ses précurseurs comme les oxydes d'azote ( $\text{NO}_x$ ) et les composés organiques volatils (COV) et que la toxicité est plus l'effet d'une synergie entre ces composés. L'intérêt porté à l'ozone troposphérique est donc parfaitement justifié puisqu'on note une sensible augmentation de sa concentration dans la troposphère avec l'usage quasi généralisé et toujours croissant des combustibles fossiles et l'expansion de l'industrialisation [Marenco *et al.*, 1994].

Pour considérer la formation de l'ozone, on distingue généralement le cycle de formation de l'ozone en atmosphère "propre" (ou naturelle) avant de considérer la perturbation introduite par les polluants dans le cas d'une atmosphère polluée. Le lecteur pourra trouver une description complète de ces cycles dans [Bobbs, 2000] et [Jacobson, 2005]. Avec la plateforme QualAir (cf. chapitre 5), nous espérons pouvoir apporter une contribution significative dans la connaissance de cette chimie complexe de la basse atmosphère.

## 7.2 Chimie des chlores

L'activation du chlore en hiver aux hautes latitudes est le processus par lequel les réactions hétérogènes à la surface des nuages stratosphériques polaires (PSC) lorsqu'ils se forment quand la température stratosphérique est suffisamment basse, transforment les réservoirs habituels HCl et  $\text{ClONO}_2$  [Payan *et al.*, 1998a] en espèces réactives comme ClO, ClOOCl, HOCl ou OCIO. C'est ce qui explique le trou d'ozone régulièrement observé au-dessus de l'Antarctique pendant l'hiver austral ainsi que les diminutions d'ozone observées pendant les hivers au cours desquels le vortex Arctique est dynamiquement stable et froid. La Figure 61 montre la différence entre les profils de HCl observés par LPMA pendant l'hiver 1998-1999 (vortex peu formé et relativement plus chaud que la moyenne climatologique) et pendant l'hiver 1999-2000 (vortex intense et très froid). Pour ce dernier cas, dans la basse stratosphère, la présence de PSCs a contribué à la transformation d'une grande proportion de HCl en espèces chlorées activées qui ont notablement contribué à la destruction de  $\text{O}_3$  par rapport à l'hiver précédent.

Il est donc clair qu'un suivi des espèces chlorées est nécessaire sur le moyen terme. Il faut en particulier s'assurer que, compte tenu de l'augmentation des gaz à effet de serre ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ , ...), la diminution prévue de la température stratosphérique (un effet opposé à ce qui se passe dans la troposphère) ne conduira pas à une probabilité de formation de PSC plus élevée et ne réduira pas l'effet bénéfique pour l'ozone de la diminution du chlore stratosphérique (qui commence à se matérialiser grâce aux limitations dans l'utilisation des CFCs résultant du protocole de Montréal).

Les modèles qui permettent de faire des extrapolations en fonction de différents scénarios (pour la température et les CFCs) sont d'autant plus crédibles qu'ils reproduisent raisonnablement bien les observations actuelles. Ce n'est pas toujours le cas et des différences notables existent encore [Payan *et al.*, 1999, Dufour *et al.*, 2004b] pour les espèces  $\text{NO}_x$  ( $\text{NO}_2$  +  $\text{NO}$ ) et pour  $\text{HNO}_3$ . La Figure 17 : Comparaison des profils de  $\text{HNO}_3$  mesurés par ILAS et par LPMA et calculés par Reprob. (§ 4.2.1) montre un exemple de comparaison entre les

mesures du LPMA et celles de l'instrument ILAS à bord du satellite ADEOS [Irie *et al.*, 2002] et les résultats du modèle Reprobus (un des modèles 3D les plus complets pour la chimie stratosphérique [Lefèvre *et al.*, 1994, 1998]). Des différences significatives existent encore entre observation et modèle. Nos coopérations avec le Service d'Aéronomie/LATMOS (F. Lefèvre) et le LPC2E (N. Huret) pour comprendre, expliquer et corriger ces différences s'est poursuivi en comparant des situations géophysiques différentes (campagnes d'hiver HALOMAX, THESEO ; campagne d'été SABINE) et se poursuit aujourd'hui avec le projet ANR StraPolÉté (cf. chapitre 8).

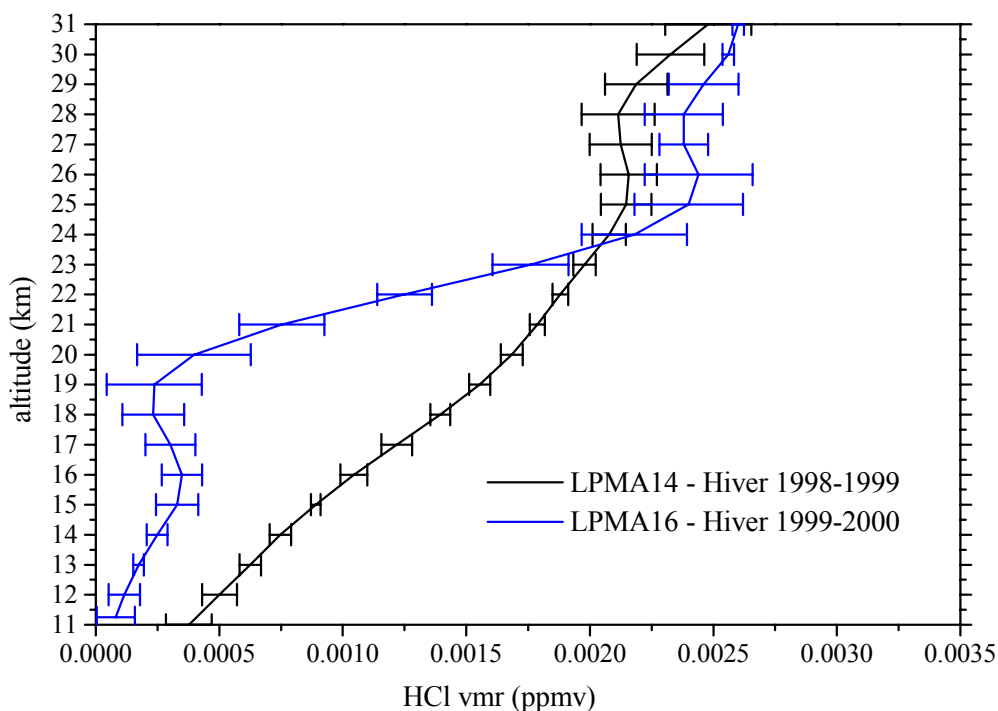


Figure 61. Profils de HCl mesurés en Arctique par l'expérience LPMA lors d'un hiver à vortex froid et bien formé (1999-2000) et lors d'un hiver à vortex plutôt chaud et faiblement creusé (1998-1999).

### 7.3 Méthodologie des comparaisons mesures/modèles

Les modèles de chimie et de transport fournissent des simulations en des points de grille en latitude et en longitude (et une grille temporelle) qui encadrent généralement les mesures sans coïncider exactement avec elles. C'est pourquoi on compare généralement les simulations aux mesures pour une position et un temps moyen représentatif au cours d'un vol. Nous avons montré que cette méthode pouvait expliquer une partie des désaccords entre mesure et modèle. En effet, on peut voir sur la Figure 62 que les variations spatiales et temporelles de la masse d'air sondée lors d'un vol LPMAA sont importantes.

Pour palier aux problèmes de coïncidence imparfaite et supprimer une source d'erreur lors de la validation, une méthode originale de comparaison à 4 dimensions utilisant un modèle de chimie-transport pour transporter les profils LPMAA à la position et au temps de la mesure à valider a été développée au sein de l'équipe. Le rapport de mélange  $X$  mesuré par LPMAA au temps  $hh_1:mm_1$  TU et à la position  $(\lambda_1, \mu_1)$  est transporté au temps de la mesure satellitaire  $hh_2:mm_2$  TU et à sa position  $(\lambda_2, \mu_2)$  en utilisant l'expression suivante :

$$X_{LPMA}^{hh_2:mm_2 \text{ et } (\lambda_2, \mu_2)} = \frac{X_{\text{Modèle}}^{hh_2:mm_2 \text{ et } (\lambda_2, \mu_2)}}{X_{\text{Modèle}}^{hh_1:mm_1 \text{ et } (\lambda_1, \mu_1)}} X_{LPMA}^{hh_1:mm_1 \text{ et } (\lambda_1, \mu_1)}$$



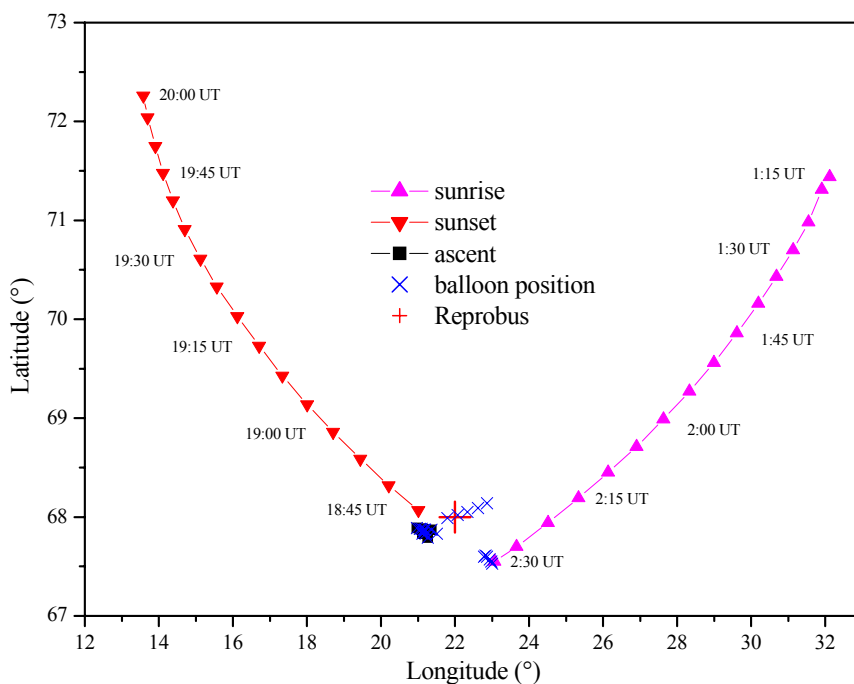


Figure 62 : Variations spatiales et temporelles des points de mesure LPMA17.

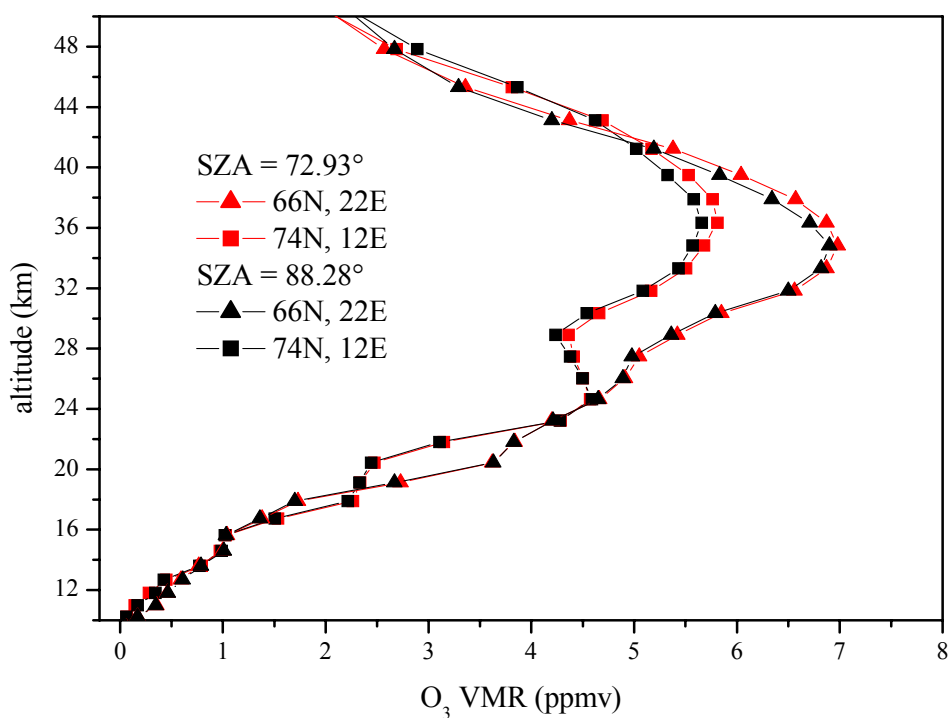


Figure 63 : Exemple de l'impact de l'interpolation spatio-temporelle des simulations d'un modèle CTM-3D sur le profil d'ozone.

Les rapports de mélange du modèle aux positions  $(\lambda_i, \mu_i)$  sont déterminés par une interpolation linéaire à 2 dimensions en latitude et en longitude et par une interpolation

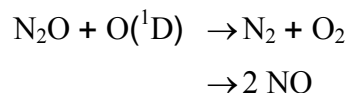
linéaire à une dimension en altitude. Le modèle de chimie-transport utilisé dans notre cas est le modèle Reprobus. On peut remarquer que dans le cas des mesures en occultation comme LPMAA, cette opération est à renouveler pour chaque altitude tangente sondée, étant donné que la position et le temps de la mesure changent au cours de l'occultation.

Cette méthode a été appliquée sur les mesures LPMA pour la validation des profils d'ozone et de dioxyde d'azote mesurés par l'instrument OSIRIS à bord du satellite suédois Odin et des profils d'ozone, de N<sub>2</sub>O et de HNO<sub>3</sub> mesurés par l'instrument SMR également à bord d'Odin (cf. § 4.2).

La Figure 63 montre un exemple de l'impact de l'interpolation spatio-temporelle des simulations d'un modèle CTM-3D sur le profil d'ozone à l'occultation : une position moyenne et un temps moyen ne suffisent pas à caractériser les mesures ce qui introduit un biais important. Nous avons donc modifié le protocole de comparaison modèle/mesure en interpolant pour chaque mesure les simulations du modèle entre ses points de grille (interpolation spatio-temporelle).

## 7.4 Chimie des oxydes d'azote

Les oxydes d'azote présents dans la stratosphère participent de manière importante au budget de l'ozone. Ils sont communément nommés et regroupés sous le terme générique de NO<sub>y</sub>. Cette famille se compose d'espèces plus ou moins réactives. L'espèce source de cette famille est l'oxyde nitreux (N<sub>2</sub>O). Elle est émise de manière naturelle et anthropogénique à la surface de notre planète, et est injectée principalement dans la stratosphère en région tropicale lors d'épisodes de convection profonde. Cette espèce est un gaz à effet de serre et prend une part non négligeable dans le bilan radiatif terrestre. Une fois dans la stratosphère l'oxyde nitreux est transporté vers les régions polaires de manière isentropique. Au cours de ce transport il est oxydé suivant les deux réactions ci-dessous avec production de monoxyde d'azote NO. La deuxième réaction est la réaction dominant la production des espèces très réactives de la sous famille des NO<sub>x</sub> : NO et NO<sub>2</sub> [McElroy and McConnell, 1971].



Ces NO<sub>x</sub> contrôlent le budget de l'ozone stratosphérique selon deux voies. Ils entrent dans la chaîne de destruction de l'ozone d'une part [McElroy *et al.*, 1992; Brühl *et al.*, 1998] et d'autre part ont un rôle modérateur auprès des espèces chlorées et du radical OH [Salawitch *et al.*, 1994; Wennberg *et al.*, 1994]. Ces NO<sub>x</sub> sont en lien étroit avec les teneurs en acide nitrique (HNO<sub>3</sub>) qui en dessous de 30 km d'altitude est le principal réservoir de la famille des NO<sub>y</sub> et producteur de NO<sub>x</sub>. La répartition des espèces au sein de cette famille des NO<sub>y</sub> peut-être fortement modifiée en présence de nuages polaires stratosphériques. En effet l'acide nitrique participe à la croissance des particules des nuages polaires stratosphériques et réagit également de manière hétérogène à la surface des aérosols sulfatés et des PSC [McElroy *et al.*, 1992; Fahey *et al.*, 1993].

De nombreuses études ont mis en évidence des différences non négligeables entre les contenus en oxyde d'azote simulés et mesurés en fonction de la latitude, l'heure locale de la mesure (jour, nuit, crépuscule) et de la saison [Sen *et al.*, 1998; Gao *et al.*, 1999; Payan *et al.*, 1999; Wetzel *et al.*, 2002; Stowasser *et al.*, 2002, 2003]. Pour comprendre les écarts observés il est pertinent de pouvoir séparer la contribution chimique de la contribution dynamique sur la variabilité de ces oxydes d'azote. Au cours de ces 15 dernières années un grand nombre d'études chimiques ont été menées lors de différentes campagnes de mesures sous ballon stratosphérique auxquelles le LPMAA a participé. Le contenu des masses d'air de la basse stratosphère en oxydes d'azote a été étudié de manière systématique par comparaison de

mesures avec les modèles (REPROBUS et MIPLASMO). Ces travaux ont permis à la fois de mieux comprendre les mécanismes chimiques régissant la distribution des composés halogénés ou des oxydes d'azote, mais également d'apporter une expertise sur les biais liés aux différentes techniques de mesures utilisées sous ballon stratosphérique, et ce en fonction de la latitude.

C'est dans ce cadre que j'ai principalement travaillé en collaboration avec le Service d'Aéronomie (LATMOS) et le LPCE (LPC2E) autour de la modélisation des oxydes d'azote grâce à nos mesures des profils verticaux de rapport de mélange de NO, NO<sub>2</sub> et HNO<sub>3</sub>, qui ont été inversés à partir des mesures des expériences LPMA et DOAS au coucher et au lever du soleil pendant l'été polaire Arctique. Il s'agit par exemple des mesures du vol LPMA17 qui ont permis d'échantillonner le cycle diurne de plusieurs espèces de la famille des NO<sub>y</sub>. Une comparaison de ces mesures avec les simulations du modèle Reprobub (Franck Lefèvre, Service d'Aéronomie) a montré que la conversion de NO (avec O<sub>3</sub>) en NO<sub>2</sub> au coucher du soleil est surestimée par le modèle (cf. Figure 64).

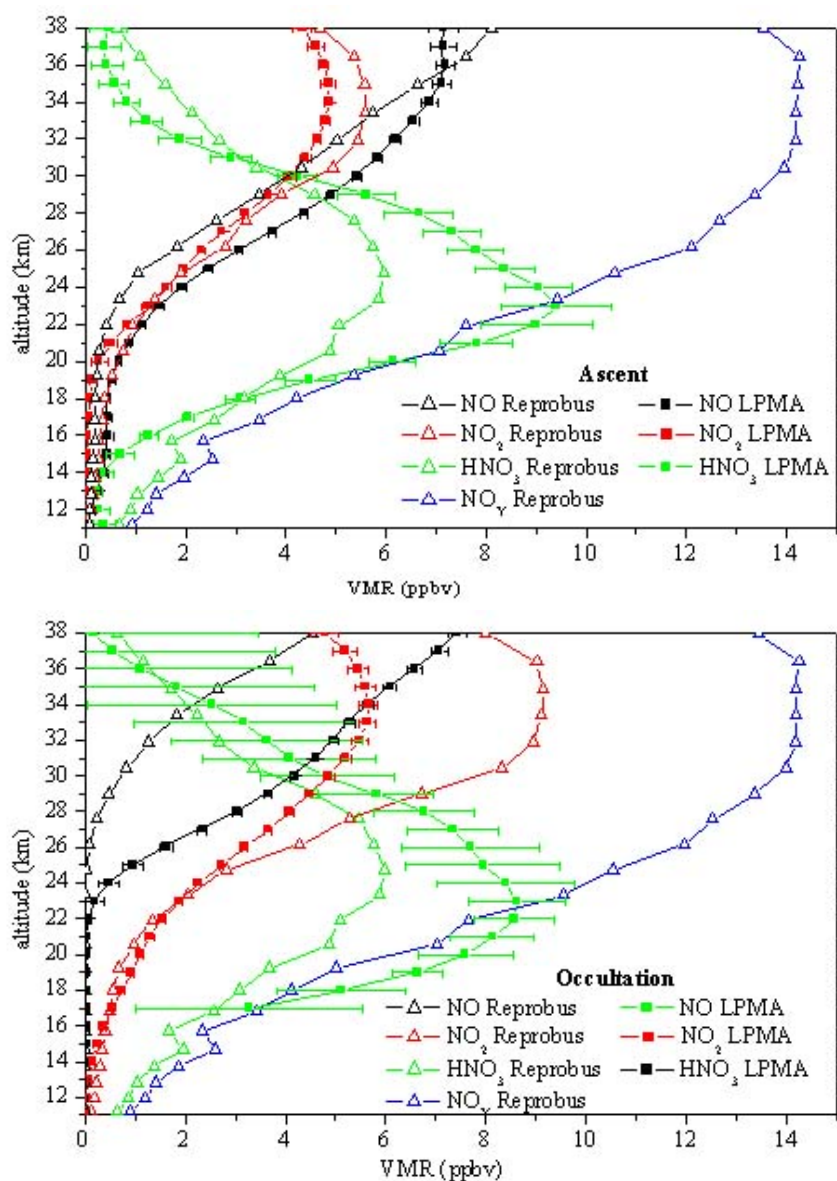


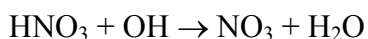
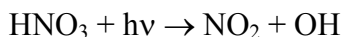
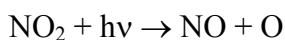
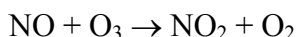
Figure 64 : Comparaison des mesures LPMA17 à la montée (en haut) et au coucher du soleil (en bas) aux simulations du modèle de chimie et transport 3D Reprobub.

Nous avons poussé nos analyses plus avant en cherchant à nous affranchir des différences spatiales et temporelles existant entre les mesures et les modèles. Que ce soit pour la validation satellitaire ou pour la comparaison avec un modèle, il est nécessaire d'avoir la meilleure coïncidence possible entre les données à valider ou les sorties du modèle en ses différents points de grille et les données de validation. La méthode que nous avons mise en place pour palier aux problèmes de mauvaise coïncidence est décrite dans le paragraphe précédent.

Pour l'étude de la photochimie des  $\text{NO}_y$  en été aux hautes latitudes [Dufour *et al.*, 2005], cette méthode a été utilisée pour initialiser le modèle de chimie utilisé. C'est dans ce cadre que nous avons utilisé le modèle 1D (module chimique de Reprobus) que nous avons implanté au laboratoire. Le modèle 1D a été initialisé avec le modèle 3D et les mesures LPMA transporté dans le temps en utilisant ce même modèle 3D. Par exemple, pour initialiser le modèle à 16:00 afin de simuler les prédictions à 21:00 (pour laquelle on dispose d'une mesure), il faut soit disposer d'autres mesures (on en dispose mais pas au même endroit, cf. Figure 62), soit pouvoir estimer une valeur réaliste à partir des mesures dont on dispose à d'autres temps. Le modèle 3D représente assez bien l'advection des espèces chimiques et il est donc utilisable pour « transporter » la concentration d'une espèce donnée d'un temps à un autre en appliquant un facteur correctif sur la mesure à un point et un temps particulier.

Les profils LPMAA ont seulement été transportés temporellement. Pour tester si le modèle reproduit bien la transition jour/nuit observée pour les  $\text{NO}_x$  et les  $\text{NO}_y$  lors du vol LPMA17 (comprenant un coucher et un lever de soleil), nous avons initialisé le modèle à 16:00 TU pour l'étude du coucher et à 1:00 TU pour celle du lever. En initialisant le modèle de chimie à l'aide des sorties du modèle de chimie-transport à 3 dimensions interpolées aux latitudes et longitudes sondées par l'instrument LPMA, nous avons montré que le modèle de chimie reproduit correctement les rapports  $\text{NO}/\text{NO}_2$  et  $\text{NO}_x/\text{NO}_y$  mais qu'il surestime les quantités d'ozone et sous-estime les quantités individuelles des  $\text{NO}_y$  mesurés par LPMA ( $\text{NO}$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{HNO}_3$ ). En revanche, lorsque le modèle est contraint par l'ozone et le  $\text{NO}_y$  total mesurés par LPMA, c'est-à-dire lorsqu'il est initialisé par les profils LPMAA transportés aux heures d'initialisation, les rapports  $\text{NO}/\text{NO}_2$  et  $\text{NO}_x/\text{NO}_y$  ainsi que les quantités individuelles de  $\text{NO}$ ,  $\text{NO}_2$  et  $\text{HNO}_3$  sont bien reproduites par le modèle (Figure 65).

Aux latitudes polaires en été, la partition des  $\text{NO}_x$  et des  $\text{NO}_y$  est principalement gouvernée par les réactions en phase gazeuse suivante :



Nous avons montré que l'impact de la charge initiale en aérosols du modèle et donc des réactions hétérogènes (impliquant principalement  $\text{N}_2\text{O}_5$  en été) sur les quantités de  $\text{NO}$ ,  $\text{NO}_2$  et  $\text{HNO}_3$  n'était pas négligeable (entre 10 et 25 %). De plus, en ajustant la charge initiale en aérosols du modèle, la partition des  $\text{NO}_x$  et des  $\text{NO}_y$  est alors modélisée à mieux que 10 % par le modèle de chimie-transport Reprobus (Figure 66). La partition entre  $\text{NO}$  et  $\text{NO}_2$  étant, quant à elle, gouvernée uniquement par des réactions chimiques en phase gazeuse, la modification de la charge en aérosol n'a aucun effet sur elle.

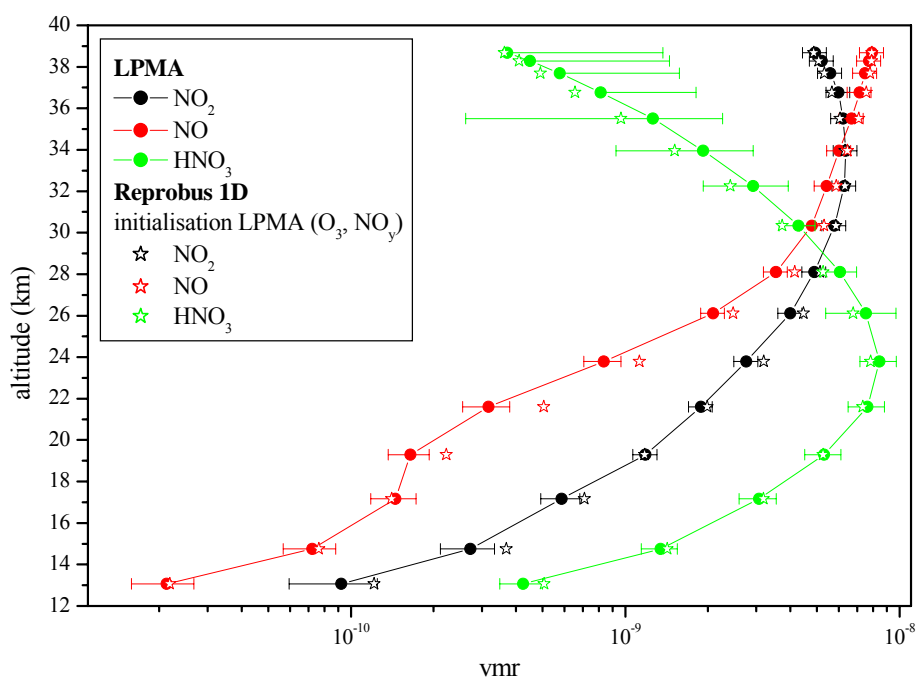


Figure 65 : Comparaison entre les profils de NO, NO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub> mesurés pendant le coucher de soleil et les profils correspondants, calculés avec le modèle de chimie Reprobus 1D contraint par l’ozone et le NO<sub>y</sub> total mesurés par LPMA.

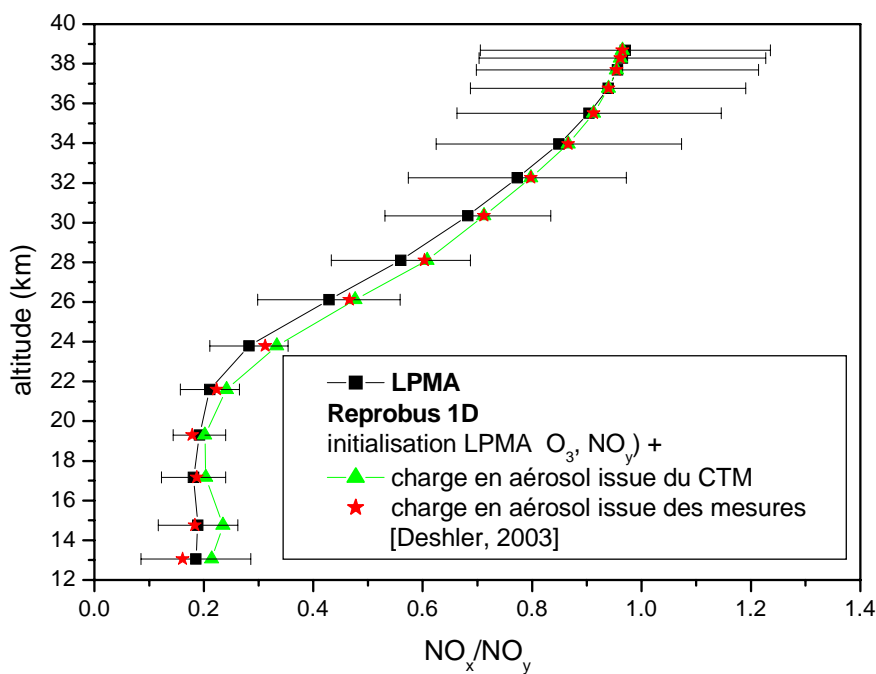


Figure 66 : Comparaison des profils verticaux de NO<sub>x</sub>/NO<sub>y</sub> obtenus au coucher pour deux charges initiales en aérosols différentes : la première est issue du CTM Reprobus et la seconde de mesures de concentrations d’aérosols.

## 7.5 Photochimie solaire.

J'avais mentionné dans le chapitre 4 (cf. § 4.3.1) notre travail sur la modélisation du spectre solaire qui nous a permis de produire un spectre solaire à haute résolution spectrale dans la bande A de l'oxygène moléculaire dans le cadre de l'expérience satellitaire ILAS et ILAS-II. Plus récemment, j'ai effectué la modélisation du spectre solaire dans la région de la vapeur d'eau vers  $0.943 \mu\text{m}$  (Figure 67) dans le cadre de validation et de l'étude du transfert radiatif de Schiamachy.

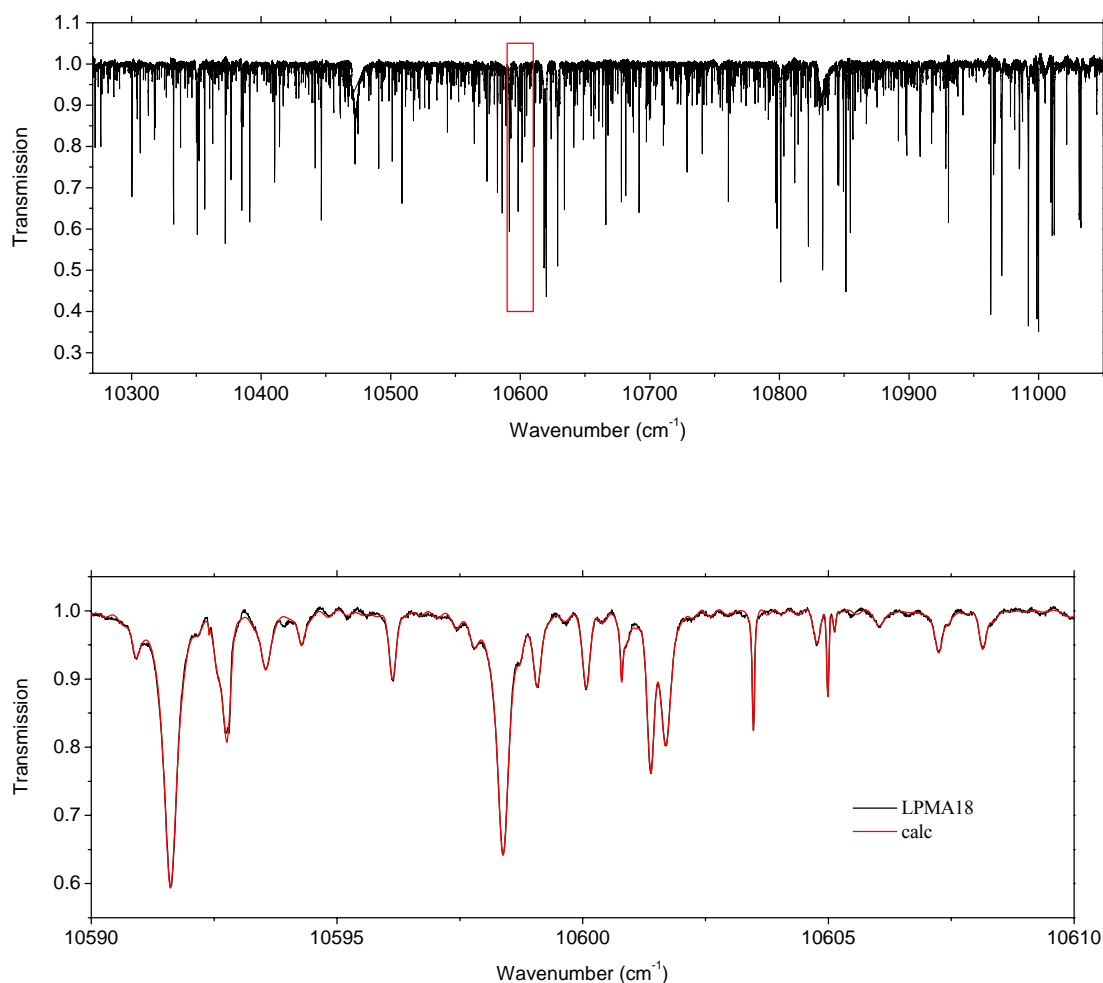


Figure 67 : Spectre solaire à haute résolution déterminé à partir des mesures LPMA dans le proche infrarouge vers  $0.94 \mu\text{m}$ .

A partir de ces spectres et dans le cadre d'un travail de thèse [Bureau, 2009], nous avons développé un modèle permettant de déterminer les concentrations des différents isotopes du monoxyde de carbone dans la photosphère du soleil. L'un des objectifs de ce travail a été de pouvoir calculer un spectre solaire synthétique avec un modèle de transfert radiatif adapté. Ce modèle de transfert radiatif prend en compte la granulation solaire en considérant les contributions des flux de matière ascendant et descendant. Un modèle chimique détermine la composition chimique de ces deux flux de matière à différents niveaux. Il est supposé que l'équilibre chimique est établi à chacun de ses niveaux.

Les rapports isotopiques du carbone, de l'oxygène, ainsi que les vitesses des deux flux, leurs proportions relatives, sont ensuite ajustés afin que le spectre synthétique soit aussi

proche que possible des spectres expérimentaux disponibles. Ces spectres expérimentaux ont été mesurés aussi bien dans l'espace (ACE, ATMOS), sous ballon (LPMA), que depuis le sol (NDACC).

## 8 Travail en cours et perspectives

Je consacre ce dernier chapitre à la mise en perspective de mon travail de recherche au sein de l'équipe dont j'assure la co-direction. Mes travaux s'inscrivent dans le contexte des mesures des constituants minoritaires de l'atmosphère par méthodes spectroscopiques (à distance ou *in situ*), la modélisation des spectres atmosphériques enregistrés à partir du sol, sur avion, sous ballon stratosphérique ou depuis l'espace, l'inversion des paramètres géophysiques, le transfert radiatif atmosphérique, l'analyse des résultats à l'aide de modèles photochimiques, et la chimie troposphérique et qualité de l'air. Je souhaite poursuivre avec Claude Camy-Peyret, Pascal Jeseck, Yao Té et Isabelle Pépin un travail de recherche sur l'utilisation et le développement des techniques de sondage de l'atmosphère *in situ* et à distance par spectrométrie (transformation de Fourier ou autre) dans le cadre de la compréhension des mécanismes qui affectent la composition de l'atmosphère, en synergie avec des travaux d'analyse physico-chimique en collaboration avec les modélistes.

### 8.1 Contexte

Les études menées depuis le début de mes travaux de thèse m'ont permis d'acquérir une expertise solide en physique moléculaire appliquée à l'atmosphère terrestre, ainsi que dans les domaines du transfert radiatif et des méthodes inverses, et dans celui des mécanismes régissant la distribution des espèces chimiques. La complexité des interactions entre les différents processus atmosphériques (microphysique, dynamique, mélange, chimique) m'a conduit à développer et/ou mettre en œuvre des outils d'analyse variés. La mise en œuvre de ces outils a permis d'identifier et de caractériser ces processus physico-chimiques. Les études menées ont toujours été effectuées en interaction forte avec les expérimentateurs. Ainsi il est possible à la fois d'expertiser les mesures et d'améliorer la prise en compte des processus dans les modèles. Cette proximité avec les expérimentateurs m'a permis d'appréhender la complexité de la physique de la mesure.

Comme je l'ai montré dans les chapitres précédents, je participe et développe depuis 15 ans une activité de recherche dans le domaine de la physico-chimie de l'atmosphère dans le cadre notamment des programmes d'observation de la Terre. Avec les deux expériences LPMA et IASI-ballon, nous sommes bien intégrées aux projets spatiaux nationaux (études de phase 0 de SIFTI et Minicarb avec le CNES par exemple), européens (Envisat avec l'ESA, IASI avec EUMETSAT/CNES, TRAQ qui était en étude de phase 0 avec l'ESA) et internationaux (ACE avec le Canada, AIRS, SAGE-3 avec les USA, GOSAT avec le Japon). Notre équipe apporte ses données ballon pour la validation des instruments satellitaires et participe à la mise au point des algorithmes d'inversion des données spatiales. Elle constitue une force de proposition par sa capacité à répondre aux appels d'offre (la proposition TRAQ avait été classée 2<sup>ème</sup> par l'ESA, et la proposition PREMIER à laquelle je participais également a été classée 4<sup>ème</sup>, dans une liste courte de 6 propositions retenues dans le cadre des missions de type Earth Explorer du programme Living Planet). Les travaux scientifiques expérimentaux de l'équipe s'articulent depuis peu autour de l'expérience SWIR-ballon et autour du projet QualAir de mesure de la pollution entre les tours de Jussieu qui monte en puissance en partenariat entre le LPMAA et le LATMOS au sein de l'IPSL. De plus, notre activité dans le domaine de la physico-chimie atmosphérique en partenariat avec les modélistes (LATMOS, LPC2E) est reconnue et se poursuit aujourd'hui dans le cadre du projet ANR StraPolÉté.



Mon activité dans le domaine de l'utilisation de la spectrométrie moléculaire quantitative et des méthodes de transfert radiatif pour la détermination de la composition atmosphérique et pour la mesure de polluants gazeux constitue donc, pour le proche et le moyen terme, un point fort à l'interface entre la physique de laboratoire avec les sciences de l'environnement.

Notre équipe collabore de longue date avec le LATMOS (anciennement Service d'Aéronomie) et le Laboratoire de Météorologie Dynamique (LMD). Nous avons entamé plus récemment une collaboration active avec le laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE). Ces trois unités avec lesquelles nous avons tissé des liens scientifiques font partie de l'Institut Pierre-Simon Laplace (IPSL) auquel nous sommes rattachés depuis janvier dernier. L'IPSL constitue à la fois une fédération de recherche et plusieurs observatoires des sciences de l'Univers (OSU). C'est donc au sein de cette fédération que se feront une grande partie de mes travaux de recherche.

## 8.2 Activité scientifique ballon

Je reprends ci-dessous une partie d'un texte rédigé avec plusieurs collègues de la communauté ballon (LPC2E, LOA, GSMA) à l'occasion d'une prospective de notre communauté.

L'étude de la chimie de la haute troposphère et de la stratosphère entre dans une nouvelle phase. Les grands principes de la chimie de l'ozone sont assez bien établis, et l'on pourrait penser que nos travaux pourraient simplement consister à suivre les effets du protocole de Montréal. Nous pourrions alors mesurer ce lent retour de l'ozone à des niveaux préindustriels, qui pourrait être contrarié par la tendance à l'augmentation des espèces bromées qui sont largement plus efficaces pour la destruction de l'ozone que les espèces chlorées. Cette démarche doit effectivement être conduite mais elle ne peut résumer à elle seule notre activité. Un examen systématique des mesures effectuées dans la stratosphère depuis des ballons (et des satellites) montre que des problèmes importants persistent dans la connaissance de la physico-chimie de certaines espèces à toutes les latitudes, et que des processus non considérés jusqu'ici semblent encore à découvrir. De plus, la chimie et les processus de transport des espèces dans les régions tropicales sont encore assez mal documentés. Le mécanisme principal de déshydratation et de réhydratation de la stratosphère n'est pas encore correctement établi. Enfin, la stratosphère polaire en été a été peu étudiée.

Il ne s'agira donc plus d'étudier seulement les grandes lignes des mécanismes dynamiques et chimiques qui contrôlent le bilan de l'ozone, mais d'analyser plus en profondeur la physico-chimie de certaines espèces. Le but est bien sûr d'obtenir un meilleur accord entre les mesures et les résultats de modélisation, afin de pouvoir disposer à terme de véritables outils de prédiction de l'état de la stratosphère et de mieux comprendre les interactions entre la stratosphère et le climat.

Certains objectifs déjà assez anciens doivent être poursuivis, et d'autres sont en émergence. Tout d'abord, même si le suivi du trou dans la couche d'ozone est moins d'actualité, l'étude des régions polaires doit être poursuivie pour surveiller l'accord entre mesures et résultats de modélisation. Ces observations doivent bien sûr être menées en hiver pour l'étude de la formation des nuages stratosphériques polaires, la descente des masses d'air mésosphériques, l'estimation de la quantité totale de composés bromés et le bilan des oxydes d'azote, mais aussi en été pour une meilleure connaissance des processus à cette période de l'année pendant laquelle peu de mesures ont été conduites jusqu'à présent. Précisons que les

équipes américaines continuent l'étude de la chimie stratosphérique polaire et s'investissent à nouveau dans l'étude de l'Arctique.

A moyenne latitude (et à haute latitude), des études devraient être conduites sur l'intrusion des masses d'air tropicales et sur les processus de mélange qui en découlent. Les régions tropicales sont assez mal documentées, et des campagnes de mesures devraient échantillonner les différentes situations géophysiques. En particulier, les observations pourraient être effectuées au-dessus des systèmes convectifs, notamment afin de mieux quantifier les échanges entre la troposphère et la stratosphère et le rôle de la convection dans les mécanismes de déshydratation.

De manière transversale, c'est-à-dire à toutes latitudes et à l'occasion de diverses campagnes, des mesures régulières devraient être menées afin de :

- suivre l'évolution du contenu en vapeur d'eau stratosphérique,
- mieux déterminer la nature des différents aérosols liquides et solides présents dans les différentes zones de la basse et moyenne stratosphère,
- estimer l'évolution du contenu en suies dans la moyenne atmosphère.

Ces mesures pourraient notamment servir à mieux étudier l'influence de l'évolution du bilan radiatif de la stratosphère sur le changement climatique, très peu pris en compte dans le dernier rapport du GIEC-IPCC.

Des travaux récents ont montré la supériorité des mesures en ballon par rapport à celles effectuées depuis les satellites dans la basse atmosphère. Ces dernières deviennent fortement imprécises notamment lors de situations dynamiquement perturbées, et de toute façon ne fournissent pas une résolution horizontale meilleure que quelques centaines de kilomètres, et verticale de plusieurs centaines de mètres à quelques kilomètres. Les instruments ballon permettent d'effectuer des mesures nettement plus précises tant en résolution spatiale qu'en seuil de détection et constituent le meilleur moyen d'étude des processus locaux

Enfin, un dernier objectif est la validation et le suivi des instruments satellitaires. Des campagnes doivent être bien sûr conduites juste après le lancement de satellites pour les premiers travaux d'évaluation des performances des instruments mis en orbite. Mais cette démarche doit être poursuivie durant toute la vie du satellite pour estimer les pertes de performances des instruments et évaluer de possibles biais à long terme. De plus, de nouveaux objectifs de validation peuvent apparaître notamment par la recherche dans les mesures d'espèces qui n'étaient pas prioritaires initialement mais qui peuvent s'avérer importantes en chimie stratosphérique. Envisat devrait être maintenu opérationnel jusqu'en 2013 et des travaux de suivi à long terme seront absolument nécessaires.

Précisons que toutes ces mesures sont comparées aux résultats de différents travaux de modélisation. La « communauté ballon » ne doit donc pas être réduite uniquement aux équipes opérant les instruments, mais doit inclure les équipes utilisant ces mesures pour des travaux plus théoriques. Elle travaille également en concertation avec les études en laboratoire qui permettent d'identifier de nouvelles espèces, d'établir de nouveaux mécanismes chimiques et de déterminer les paramètres spectroscopiques pertinents.

Des incertitudes existent donc toujours dans la chimie de l'ozone stratosphérique. Le couplage des espèces réactives chlorées et bromées ainsi que le lien avec les oxydes d'azote sont encore incomplètement compris ou sont modélisés de façon imprécise. Les espèces à courte durée de vie ( $\text{CH}_3\text{Br}$ ,  $\text{CH}_2\text{Br}_2$ ,  $\text{CH}_3\text{Cl}$ ) sont, dans certaines conditions, rapidement transférées de la troposphère à la stratosphère et ces échanges peuvent contribuer aux écarts entre observations et modèles. Une campagne coordonnée spécifique impliquant des instruments ballon de mesure à distance ou *in situ* mis en œuvre par des scientifiques français

ou allemands qui ont l'habitude de travailler ensemble : LPMA (HCL, ClONO<sub>2</sub>, HF, ...), DOAS (BrO, IO, OIO), SPIRALE (HCl, NO<sub>2</sub>, ...), SPIRALE, SALOMON et TRIPLE (ClO, BrO, CH<sub>3</sub>Br, ...) permettrait de mieux documenter les profils de concentration des espèces halogénées dans la basse stratosphère.

L'expérience LPMA doit donc être poursuivie pour pouvoir réaliser des vols dans les différentes configurations déjà éprouvées et répondre aux besoins de mesure des études à venir de physico-chimie atmosphériques de la stratosphère, et notamment celles liées aux changements qu'impliquent le réchauffement climatique. Nous souhaitons poursuivre pour ces études la collaboration avec l'Université de Heidelberg dont nous pouvons accueillir l'instrument DOAS et Mini-DOAS à bord de la nacelle LPMA. D'une manière générale, le programme à plus long terme de nos expériences ballon dépendra du calendrier des campagnes du CNES et des possibilités de financement. Nous avons affiché deux opérations prioritaires pour la période 2009-2013.

Au début des années 2000 un thème scientifique de première importance a vu le jour, il concerne l'étude des mécanismes associés aux injections d'espèces chimiques et de vapeur d'eau en région tropicale. En effet cette région contrôle le budget de nombreuses espèces stratosphériques (oxydes d'azote, méthane, ozone, vapeur d'eau) à l'échelle globale. Les espèces chimiques d'origine anthropogénique libérées dans la troposphère comme N<sub>2</sub>O (source des oxydes d'azote stratosphériques) sont principalement injectées dans la basse stratosphère lors d'événements convectifs intenses. De même des espèces à très courte durée de vie appelées VSLs (*Very short lived species*) peuvent être transportées en quelques heures depuis le sol jusqu'à 20 km d'altitude. Il est donc nécessaire de comprendre les mécanismes d'injection et la composition chimique de la couche de transition tropicale TTL (Tropical Tropopause Layer). En 2003 une étude américaine a mis en évidence une augmentation à moyenne latitude de la teneur en vapeur d'eau dans la basse stratosphère alors que dans le même temps il est apparu qu'en région tropicale les températures minimales mesurées à la tropopause diminuaient. Ces deux phénomènes sont en contradiction étant donné que plus la température diminue à la tropopause plus les masses d'air susceptibles d'entrer dans la stratosphère seront déshydratées. Les mesures ballon dans le cadre de campagnes spécifiques comme StraPolÉté (cf. également § 8.6) visent à mieux comprendre ces mécanismes complexes que les expériences spatiales seules, compte tenu de leur résolution verticale ou spatiale, ne permettent pas d'expliquer avec le niveau de précision souhaité.

Il faut également mentionner que l'étude de l'impact sur la chimie des phénomènes lumineux (*red sprites, blues jets, elves*) se déroulant dans l'atmosphère entre 20 km et 100 km est devenue un sujet d'actualité. Ces phénomènes se produisent souvent autour de régions orageuses par un couplage entre l'atmosphère neutre et les basses couches de l'ionosphère. Il est connu depuis plusieurs années que des phénomènes énergétiques d'origine solaire peuvent conduire par la dissociation des molécules de N<sub>2</sub> à la production dans la stratosphère et la mésosphère de fortes quantités de NO<sub>x</sub> (NO+ NO<sub>2</sub>) participant à la destruction d'ozone. Même si ces phénomènes lumineux sont plus locaux que les événements de précipitations de protons et d'électrons d'origine solaire, les énergies mises en jeu semblent indiquer que des quantités importantes de NO<sub>x</sub> peuvent être produites. Les mesures par des expériences embarquées sous ballon en région tropicale peuvent apporter une aide précieuse en complément d'expériences spatiales comme TARANIS pour l'étude de ces phénomènes.

Comme je l'ai déjà mentionné, notre équipe participe aux études menées dans le cadre de l'année polaire internationale (IPY, *International Polar Year*) et du projet ANR StraPolÉté, avec pour objectif d'échantillonner depuis la haute troposphère jusqu'à la moyenne stratosphère la région polaire durant l'été qui a été peu étudiée jusqu'à présent. Dans l'avenir

nous souhaitons pouvoir refaire des mesures dans les régions tropicales. C'est dans cette zone géographique que les espèces troposphériques émises à la surface (gaz source, à effet de serre, produits du brûlage de la biomasse, polluants, ...) sont injectés de la troposphère vers la stratosphère au travers de la barrière dynamique dite TTL (Tropical Tropopause Layer) dont la structure et la variabilité sont encore mal connues.

En ce qui concerne les évolutions instrumentales, plusieurs éléments sont en cours de développement ou envisagés. L'expérience IASI-ballon a évolué vers SWIR-ballon afin de couvrir simultanément des bandes de l'infrarouge thermique (TIR) et de l'infrarouge courte longueur d'onde (SWIR, *Short Wave InfraRed*) dans le cadre notamment de l'étude de la synergie TIR/SWIR (cf. § 8.5). Un premier vol a été réalisé cet été à Kiruna. La nacelle multi-instrumenté pourrait évoluer dans une configuration SWIR-ballon/mini-DOAS/imageur SWIR/spectro-O<sub>2</sub> pour le sondage troposphérique, la validation de GOSAT, et la préparation de futures missions spatiales. Des lidars peuvent aujourd'hui être embarqués et ouvrent des possibilités intéressantes en complément des mesures FTIR. Un lidar CO<sub>2</sub> par exemple serait très intéressant pour un vol avec SWIR-ballon.

### 8.3 Missions spatiales

Les vingt dernières années ont vu le développement de nombreuses expériences spatiales dédiées à l'observation de la Terre et de son atmosphère. En effet, les observations satellitaires sont nécessaires pour combler les lacunes des réseaux sols (beaucoup de stations sont situées à latitude moyenne dans l'hémisphère nord, trop peu existent sur le reste du globe). On manque par exemple de mesures dans les régions tropicales. Les émissions atmosphériques ont besoins d'être mises en relation avec les processus de surfaces comme les forêts primaires, les feux, la déforestation ou l'urbanisation. La compréhension du rétablissement de la couche d'ozone dépend des interactions avec le climat et des processus souvent complexes qui ne sont pas encore intégrés dans les modèles, ou pas de manière systématique. Il est devenu important d'améliorer les observations de références dans la tropopause tropicale et dans l'UTLS en général en combinant les traceurs à haute résolution (comme CH<sub>4</sub>) avec les gaz sources à courte durée de vie (comme CHBr ou BrO). De nouvelles expériences spatiales sont donc proposées régulièrement par les scientifiques.

Les mesures spectroscopiques au limbe sont bien adaptées pour la mesure de profils verticaux dans la stratosphère et la mésosphère, mais également dans la haute troposphère où la sensibilité climatique peut être considérée comme la plus importante, avec de nombreux exemples récents incluant la spéciation chimique dans la haute troposphère de CO, O<sub>3</sub> et HNO<sub>3</sub> (mesures de MLS), ou encore de C<sub>2</sub>H<sub>6</sub> et du PAN (MIPAS). D'un autre côté, la spectrométrie infrarouge au nadir fournit un moyen de sondage de la troposphère libre où les polluants sont transportés (par exemple les mesures de CO par MOPITT et IASI). La spectrométrie courte longueur d'onde et visible ont démontrés leur sensibilité aux couches proches de la surface où se produisent les émissions primaires. Les données de O<sub>3</sub> et NO<sub>2</sub> mesurées par GOME, SCIAMACHY, OMI (ou encore celle de CH<sub>4</sub> par SCIAMACHY) illustre bien ce point. L'imagerie visible/infrarouge a quand à elle démontré sa bonne résolution géographique des aérosols en conditions de ciel clair, avec une bonne capacité pour mesurer des niveaux élevés d'aérosols (dans la vallée du Po par exemple).

Les avancées technologiques futures sont principalement envisagées pour pouvoir résoudre des structures à des échelles plus fines. Dans le domaine de l'observation de la Terre une résolution spatiale plus fine est nécessaire pour mieux identifier ou attribuer les sources et pour améliorer l'assimilation dans les modèles de prédiction de la qualité de l'air. Les profils

verticaux (de la surface à la stratosphère) doivent être obtenus avec une couverture géographique et temporelle (pour couvrir notamment le cycle diurne) pour les espèces ayant une durée de vie chimique courte et pour les processus liés aux aérosols (émissions, panaches, transformations). Il y a également un besoin de mesurer d'autres espèces (organiques ou bromées). Les propositions de missions scientifiques de recherche TRAQ, PREMIER ou encore ASCOPE témoignent de cette volonté d'aller vers des mesures avec des échelles plus fines dans le cadre des problèmes de pollution ou de climat. Pour les applications opérationnelles, une échelle horizontale plus fine est nécessaire pour la surveillance de la qualité de l'air, alors que les mesures globales (mais à résolution spatiale plus faible) d'espèces clés (gaz à effet de serre, aérosols) sont nécessaires pour le suivi du climat.

Des développements techniques sont en cours dans plusieurs directions. Pour le sondage au limbe, on s'oriente par exemple vers des spectro-imageurs à la place de détecteurs uniques, ou encore vers des mesures dans les ondes millimétriques. Les mesures au nadir peuvent bénéficier d'une meilleure résolution verticale par l'amélioration de la résolution spectrale et/ou le couplage de mesures au limbe ainsi que par le couplage de mesures dans l'infrarouge thermique et l'infrarouge courte longueur d'onde. L'échantillonnage spatial et temporel de la basse troposphère peut être amélioré en associant plusieurs orbiteurs polaires (à différentes heures locales), ou en choisissant une orbite géostationnaire et en co-additionnant les mesures. Des technologies avancées mais non spatialisées jusqu'à présent pourrait l'être dans l'avenir : spectrométrie acousto-optique, radiométrie laser hétérodyne, spectro-imageurs remplaçant les détecteurs 1D. Les lidars embarqués ont également fait leur entrée dans les expériences spatiales. Ceux dédiés à la mesure du profil vertical d'aérosols ont notamment fait la démonstration de leurs performances, et la technique DIAL pourrait demain permettre de mesurer CO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O et O<sub>3</sub>. Enfin, les plateformes de haute altitude (HAP, *High Altitude Platforms*) pourrait permettre de contribuer à combler (avec les ballons et les avions) le gap entre le sol et l'espace.

Toutefois il ne faut pas considérer l'expérience spatiale comme indépendante des autres moyens : les mesures doivent être calibrées, elles doivent pouvoir être analysées (inversées) et validées. J'ai participé à plusieurs projets de calibration, validation ou inversion de mesures spatiale, et je prévois de poursuivre dans cette voie. Une d'entre elle consiste à tenir compte dans le processus d'inversion de l'hétérogénéité spatiale des scènes par les expériences embarquées.

Une étude a été menée récemment par Noveltis pour le CNES afin d'estimer le pourcentage des pixels IASI dans différentes catégories fonction de la fraction nuageuse (données ci-dessous en pourcentage). L'étude a porté sur 740 000 mesures en janvier 2007 avec les résultats suivant :

- Sans nuages (0%) : 21.36 %
- Partiellement nuageux < 5% : 25.36 %
- < 10% : 26.93 %
- < 20% : 29.18 %
- < 50% : 34.36 %
- < 75% : 38.72 %
- Complètement nuageux (100%) : 52.95 %

Des statistiques ont également été établies en ce qui concerne l'homogénéité des pixels du sondeur (différences de moins d'1K) et pour différents types de surface (nuage, mer, sol). Les résultats indiquent que 27.1% des pixels IASI sont homogènes, et parmi ceux-ci :

- 2.6 % au dessus de la mer
- 4.2 % au dessus des terres

- 20.3 % au dessus des nuages

L'étude conclut donc que seuls 6.8 % des pixels non nuageux sont homogènes pour les mesures considérés dans cette étude (la répartition entre mer et sol peut varier en fonction de la période de l'année). On peut alors se demander comment traiter les 93.2 % des pixels non homogènes. C'est une des questions que je souhaite aborder dans les années à venir. A titre d'exemple, la Figure 68. présente une carte dans une région proche de Kiruna échantillonnée par IASI-ballon et sur laquelle est superposé un cercle bleu de la taille d'un pixel IASI. On peut constater que la surface échantillonnée par IASI est très inhomogène (rivières, lacs, forêts, habitations, neige, ...).

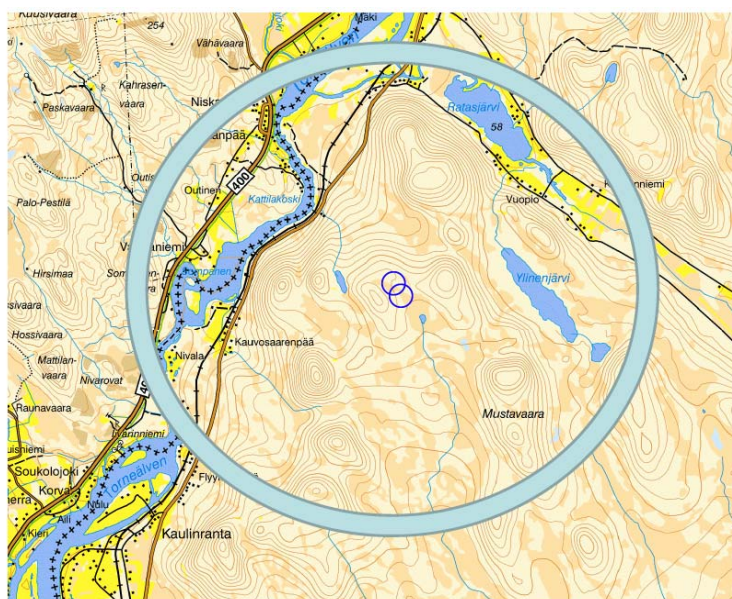


Figure 68. Carte dans une région proche de Kiruna échantillonnée par IASI-ballon et superposition d'un cercle bleu de la taille d'un pixel IASI.

D'une manière générale, l'amélioration progressive de la résolution spectrale ou du niveau de bruit rend significatifs des contributions (comme l'hétérogénéité des surfaces) qui ne l'étaient pas avant et qui nécessiteront l'amélioration des traitements de ces mesures (cf. § 8.5).

Je prévois également de poursuivre mes travaux de recherche dans le cadre de la mission IASI et dans la préparation des missions futures pour le sondage troposphérique (comme TRAQ précédemment, les Sentinel pour l'ESA, SIFTI pour le CNES). Je poursuivrai la collaboration avec le LATMOS (Cathy Clerbaux) et avec l'ULB (Pierre-François Coheur) dans le domaine de l'inversion et de l'exploitation des données « Chimie » ( $\text{CO}$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{HNO}_3$ , isotopes de  $\text{H}_2\text{O}$ , ...) du sondeur troposphérique IASI à bord de MetOp. Je suis impliqué directement ou en collaboration dans plusieurs aspects de la mission IASI. J'ai participé notamment l'année passée à l'exercice d'intercomparaison d'algorithmes d'inversion du profil et des colonnes d'ozone et je prévois de participer à un nouvel exercice de ce type pour  $\text{CO}$  et  $\text{CH}_4$ .

J'ai montré ci-dessus l'importance du traitement des pixels IASI dans le cas non clair et/ou non homogène. Je compte donc poursuivre mon travail d'inversion des spectres IASI dans le cas de pixels nuageux ou partiellement nuageux. Les mesures IASI en coïncidence avec IASI-ballon seront plus particulièrement étudiées compte tenu des données annexes accumulées durant la campagne de mesure (images de la caméra IR embarquée, spectromètre  $\text{O}_2$ , sondage PTU, ...). Il s'agira en particulier :

- d'analyser l'effet de la résolution spatiale et de l'hétérogénéité des scènes visées sur les spectres et les produits
- de comparer les produits restitués IASI-ballon et IASI-MetOp avec les produits de niveau 2 MetOp.
- d'analyser l'effet des hétérogénéités de surface à l'intérieur d'un pixel IASI
- d'examiner le bénéfice d'une prise en compte dans le transfert radiatif d'une composante « nuage » pour une partie du pixel IASI.

Je prévois donc de faire une analyse fine de l'inversion dans le cas de pixels inhomogènes. Le travail se fera tout d'abord par un calcul des visées « claires » et « nuageuses » avec un poids relatif calculé à partir des données AVHRR et des informations obtenues avec IASI-ballon et avec les données annexes. Une étape supplémentaire pourra être franchie en effectuant l'inversion de l'altitude de la couche nuageuse. En parallèle, je poursuivrai le travail sur l'influence de certains effets spectroscopiques (interférences en raies, rétrécissement collisionnel) pour fournir à la communauté IASI un diagnostic sur l'opportunité d'introduire ces effets dans les codes d'inversion.

En parallèle à IASI, j'ai débuté récemment une collaboration avec les Japonais de la JAXA et du NIES pour la plateforme GOSAT. Une meilleure compréhension et quantification de l'intensité et de la répartition spatio-temporelle des sources et puits de CO<sub>2</sub> à l'échelle globale est un enjeu majeur pour l'analyse du climat, et du rôle de l'activité humaine dans son évolution. Alors que les sources, incluant la consommation des combustibles fossiles et les autres activités humaines, contribuent à une augmentation rapide de la quantité de CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère, les puits naturels comme l'océan ou la végétation, absorbent de l'ordre de la moitié du CO<sub>2</sub> émis. Les réseaux de mesures au sol n'offrent pas une résolution suffisante pour une bonne détection des sources et puits à l'échelle globale, et une mesure spatiale précise et fiable du CO<sub>2</sub> atmosphérique permettrait une amélioration significative de notre compréhension des échanges de carbone entre la surface et l'atmosphère.

GOSAT est la première mission spatiale en vol spécifiquement conçue pour le suivi des concentrations atmosphériques du dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>) et du méthane (CH<sub>4</sub>). Un des principaux objectifs scientifiques de cette mission est d'améliorer notre compréhension de l'intensité et de la répartition globale des sources et puits de CO<sub>2</sub>. Compte tenu des besoins élevés en précision sur la mesure du CO<sub>2</sub> atmosphérique pour la restitution de flux de surface [Rayner and O'Brien, 2001 ; Chevallier, 2007], la mise en œuvre de campagnes de calibration/validation spécifiques est cruciale pour la mission GOSAT et pour son apport scientifique dans le contexte des problématiques actuelles autour des gaz à effet de serre et de leur impact sur le changement climatique.

En parallèle, de fortes incertitudes demeurent sur l'estimation du forçage radiatif des aérosols, qui sont dues, en partie, au fait que les effets radiatifs dépendent des caractéristiques optiques et physico-chimiques des aérosols, de leur altitude, de leur distribution spatiale et temporelle, et de leur épaisseur optique, quantités qui sont très variables. Il est donc nécessaire de caractériser non seulement les propriétés optiques des aérosols, mais également leur cycle dans l'atmosphère. Les données de la mission GOSAT, couplant un sondeur infrarouge haute résolution et un imageur pour la détection des nuages et des aérosols (nécessaire pour une bonne estimation des concentrations de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub>) constitueront d'un apport important pour cette caractérisation.

Je me propose avec l'équipe de contribuer à la calibration/validation des données fournies par la mission GOSAT et de préparer l'exploitation scientifique de ses produits. Nos objectifs principaux de recherche sont les suivants :

- Contribuer à la phase de calibration/validation de l'ensemble des bandes spectrales NIR, SWIR et TIR du FTS GOSAT et des algorithmes et produits opérationnels GOSAT CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> et aérosols de niveau 2 (colonne ou rapport de mélange moyen).
- Initier l'exploitation scientifique de ces données, en participant à la préparation de l'algorithme nécessaire pour l'utilisation des produits correspondants
- Consolider l'analyse de besoin en terme de mesure du CO<sub>2</sub> depuis l'espace, et contribuer à la spécification des futures missions spatiales qui pourront être proposées pour cet objectif.

Dans une première étape nous réaliserons une calibration (radiométrique et spectrale) des mesures de niveau 1 TIR, SWIR et NIR de l'instrument TANSO-FTS, au travers de la réalisation de deux vols ballon (SWIR-ballon) et de la comparaison des spectres ballon ainsi acquis avec ceux de TANSO-FTS.

Lors d'une deuxième étape nous ferons une analyse de contenu informatif, une inversion et une caractérisation des produits CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> issus de l'instrument TANSO-FTS, en utilisant ou non la synergie des bandes SWIR. Les produits CO<sub>2</sub> obtenus seront comparés aux produits CO<sub>2</sub> fournis par la JAXA.

En ce qui concerne les futures missions spatiales, je poursuivrai mon implication en participant aux appels à projets comme j'ai eu l'occasion de la faire récemment pour la mission TRAQ (*Tropospheric composition and Air Quality*) avec notamment ma contribution à la réponse coordonnée ON-TRAQ (Noveltis, LPMAA, LOA, CMS, ULB, KNMI, SRON, FMI, MSC) à l'appel d'offre scientifique (AO TRAQ) de l'ESA et par mon implication au sein du groupe scientifique TRAQ (GST) établi par le CNES qui a participé à la définition et à l'étude du sondeur infrarouge SIFTI et qui soutient les études scientifiques correspondantes. Les futures études s'orienteront vers l'étude de l'inversion couplée TIR/SWIR pour CO (en collaboration avec l'ULB et Noveltis) et vers l'étude de l'imageur infrarouge et de son mode « pointage intelligent » (en collaboration avec le CMS et Noveltis).

## 8.4 Qualité de l'air : plate-forme expérimentale de Jussieu

La qualité de l'air est souvent associée à la qualité de vie. La pollution atmosphérique a un impact sur les activités humaines et représente un coût tant humain qu'économique. La surveillance des concentrations en polluants dans l'atmosphère, plus particulièrement dans les zones à forte exposition de la population, est nécessaire et permet à la fois d'informer les citoyens sur la situation et de prendre les dispositions ou réglementations appropriées pour limiter, si possible, ces concentrations [François, 2004]. On pourra se référer, par exemple, à l'inventaire CORALIE du CITEPA [CITEPA, 2009], document qui présente l'évolution des émissions en France métropolitaine de certains polluants.

La qualité de l'air résulte d'une combinaison complexe de paramètres et processus souvent couplés, ce qui rend son étude difficile. Il est bien sûr nécessaire de connaître le mieux possible les conditions climatologiques et météorologiques locales sur la zone considérée mais la bonne connaissance des émissions de polluants est indispensable. Il est donc nécessaire de disposer d'une description aussi précise que possible des émissions tant anthropiques que biogéniques, que ce soit dans leurs composantes spatiotemporelles que dans leur nature chimique.

Les concentrations des polluants primaires dans la couche limite au sein de laquelle les populations sont exposées, dépend de la hauteur de la couche de mélange qui détermine le facteur de dilution de ces concentrations. La compréhension des processus responsables de la



production de polluants secondaires (ozone, particules d'aérosols organique secondaires AOS) nécessite d'améliorer nos capacités d'observation sur la verticale en parallèle à la mise en place et l'exploitation des réseaux d'observation de surface et des données satellitaires pour résoudre la répartition verticale des polluants. L'assimilation des données dans les modèles 3D de qualité de l'air permet d'améliorer partiellement la situation en restituant la répartition verticale des polluants primaires ou secondaires. Parmi les principaux paramètres mesurables dont l'assimilation est envisagée, on trouve :

- les mesures lidar du coefficient d'extinction par les aérosols,
- les concentrations intégrées sur la verticale de polluants primaires comme CO, CH<sub>4</sub>, NO<sub>2</sub>,...
- l'épaisseur optique associée aux aérosols atmosphériques.

Les deux derniers types de paramètre géophysique sont accessibles par des mesures d'absorption intégrée sur la verticale fournis par des instruments embarqués sur satellite ou leur équivalent utilisé au sol (spectromètre dans l'IR ou l'UV-visible, photomètre et radiomètres à plusieurs canaux spectraux). Le premier type de mesure est fourni par un lidar en rétrodiffusion utilisant 1 ou 2 longueur d'onde.

La distribution verticale de l'extinction par les aérosols permet à la fois de contraindre la hauteur de la couche de mélange mais aussi la répartition verticale de la quantité d'aérosols simulée par le modèle (en utilisant la connaissance *a priori* des propriétés optiques de l'aérosol fournies par le modèle).

Dans le chapitre 5 j'ai présenté la plateforme QualAir à laquelle notre équipe participe activement notamment dans la mise en œuvre, l'utilisation et les évolutions de l'instrument STF QualAir, dont le LPMAA a la responsabilité directe au sein du parc d'instruments réunis sous l'égide de l'IPSL. Nous prévoyons de poursuivre l'exploration des performances de l'instrumentation STF QualAir pour des mesures en émission thermique par visée au zénith. Le développement d'un instrument dédié aux mesures en émission thermique (permettant d'obtenir par inversion des spectres enregistrés en visée verticale les profils de H<sub>2</sub>O, O<sub>3</sub> et CO, ... avec une bonne résolution temporelle) sera un complément important à la plateforme expérimental actuelle. Le travail scientifique correspondant s'appuiera dans un premier temps sur la comparaison des colonnes mesurées par cet instrument avec les colonnes simulées par les modèles. Dans un deuxième temps, l'assimilation des données expérimentales pourra permettre d'apporter des informations utiles pour la prévision de la qualité de l'air. Plus précisément, nous prévoyons d'utiliser des modèles de boîte comprenant des mécanismes photochimiques très détaillés résumant l'ensemble des processus photochimiques. La confrontation de leurs résultats avec les mesures permettra ainsi d'évaluer la validité des connaissances actuelles. Pour les radicaux hydrogène impair (OH, HO<sub>2</sub>, RO<sub>2</sub>), des différences notables ont été constatées lors de précédentes comparaisons et devront être mieux comprises. Ces différences peuvent résulter de composés actuellement mal représentés dans les modèles photochimiques (aldéhydes et bi-carbonyles sujet à la photolyse, acide nitreux ....) et dont certains seront observés dans le cadre du projet.

Nous prévoyons également l'utilisation de modèles plus complexes, comme le MCM (*Master Chemical Mechanism*) développé par l'Université de Leeds et qui prend en compte la dégradation de 120 hydrocarbures et d'environ 2500 produits secondaires organiques, sur la base de 7000 réactions chimiques. Un modèle de chimie et de transport à l'échelle régionale comme CHIMERE pourra être utilisé pour simuler les concentrations urbaines de fond des principales espèces chimiques intervenant dans la pollution photo-oxydante. Ce modèle est actuellement utilisé par l'IPSL pour la prévision de la qualité de l'air en Ile de France à l'échéance de quelques jours. Un point intéressant sera justement de comparer à nos

observations les sorties des mécanismes complets et réduits pour des conditions réalistes (correspondant aux journées d'observations).

L'évolution de la plateforme QualAir doit ainsi permettre à moyen terme de répondre à un triple objectif :

- disposer en ville de moyens de mesures de paramètres de la colonne atmosphérique permettant une utilisation optimale des observations au sol du réseau de pollution de la ville de Paris (AIRPARIF)
- disposer dans une zone d'émission de polluants atmosphériques de moyens de validation au sol pour les nouvelles observations spatiales destinées à évaluer les émissions de polluants gazeux et particulaires
- disposer sur le site de l'université de techniques de mesures de pointe des polluants gazeux et particulaires pour initier les étudiants des parcours « Environnement » de l'université à l'utilisation de tels instruments.

Pour répondre au premier objectif, l'accent sera mis sur la mise en œuvre de mesures intégrées sur la colonne atmosphérique de gaz précurseurs de la pollution oxydante et des particules d'aérosol: oxyde d'azote (spectromètre UV-Visible), hydrocarbures (spectromètre IR) et aérosol (photomètre solaire UV-visible). La mesure résolue en distance de la stratification de l'atmosphère est possible par l'utilisation de la technique lidar. Ceci permet de relier la variabilité des polluants atmosphériques mesurée au sol par le réseau AIRPARIF à la variabilité verticale dans la couche limite atmosphérique et donc de distinguer l'impact respectif des taux d'émissions et de la dynamique de l'atmosphère sur les polluants. Comme expliqué précédemment, l'apport d'information sur la verticale en plus de l'assimilation des mesures de surfaces doit être évalué et il est ainsi impératif de disposer de séries de données suffisamment continues dans le temps pour permettre ce travail.

Les équipements mis en œuvre correspondent aussi à des méthodes de mesure maintenant mises en œuvre sur satellite (missions spatiales IASI, CALIPSO, PARASOL,...) et un site instrumenté en milieu urbain est une réelle opportunité pour travailler sur la validation des observations satellitaires et leur utilisation optimale dans les modèles de simulation de la composition chimique de l'atmosphère (cf. validation de GOSAT dans le § 8.3).

Enfin en utilisant l'héliostat comme un séléostat pour des visées lunaires de nuit nous étendrons nos travaux sur le cycle diurne de la colonne verticale de  $\text{NO}_2$  mesurée de jour en absorption solaire, au cycle nocturne des espèces azotées ( $\text{NO}_2$  dans l'infrarouge et  $\text{NO}_3$  dans le visible). Ces travaux seront menés en liaison avec les données SAOZ du LATMOS et avec les données OMI (P. Veefkind du KNMI) pour l'espèce  $\text{NO}_2$ .

A notre connaissance aucun site urbain n'associe un réseau de surveillance de la pollution avec un ensemble très complet d'observation sur la verticale spectrométrie sur la totalité du spectre (UV à l'IR) et stratification verticale par lidar. Le site QualAir est donc unique. Une autre évolution du dispositif expérimental est prévue dans les années qui viennent. Il s'agit de faire des mesures entre les tours de Jussieu en utilisant l'absorption le long de trajets horizontaux avec des sources locales et le STF QualAir, l'objectif étant la mesure locale de pollution.

## 8.5 Transfert radiatif pour le sondage atmosphérique

Le transfert radiatif dans l'atmosphère est globalement bien maîtrisé aujourd'hui mais sa mise en œuvre reste complexe de par les temps calculs parfois prohibitifs des codes actuels.

Il est donc nécessaire pour pouvoir analyser les mesures spectrales de faire des simplifications ou de développer des modèles plus simples (et donc plus rapides). De plus, l'évolution rapide des techniques instrumentales et l'augmentation de la résolution spectrale et/ou du rapport signal à bruit peuvent rendre significatifs des effets qui n'étaient alors pas pris en compte. Il en va de même pour l'amélioration des banques de données spectroscopiques qui, si elles permettent une modélisation très précise des absorbants principaux ( $H_2O$ ,  $CO_2$ ,  $CH_4$ , ...) permettant par l'analyse fixe de la différence entre l'observation et le modèle la détection des signatures spectrales d'espèces qui n'étaient pas prise en compte initialement dans le transfert radiatif.

Un bilan des modèles de transfert radiatif a été organisé par le CNES en 2008 sous la forme d'un atelier (Trattoria) réunissant des scientifiques français. J'ai participé au groupe qui a fait le bilan sur les modèles de transfert radiatif en infrarouge thermique et qui a examiné ses différents aspects :

- la spectroscopie,
- les logiciels de transfert radiatif (LTR) eux même,
- les autres composantes des logiciels de transfert radiatif.

Il en ressort pour la spectroscopie que la qualité des banques de données spectroscopiques est un facteur prépondérant pour la précision des simulations de transfert radiatif. Les banques de données les plus utilisées (GEISA et HITRAN) progressent au contact des observations spatiales atmosphériques. Les nouvelles missions spatiales vont dans le sens d'une augmentation de la résolution spectrale, du rapport signal/bruit (par exemple MIPAS et ACE, ou encore IASI) et leurs observations font progresser la spectroscopie. Les laboratoires de spectroscopie (expérimentateurs et théoriciens) doivent être associés aux missions spatiales et bénéficier d'un soutien sur le long terme pour adapter les banques de données en fonction des objectifs des différentes missions. Il faut donc favoriser l'association de ces équipes avec les spécialistes de l'atmosphère pour leur faire profiter du retour des utilisateurs. L'importance des campagnes avion et ballon dans la validation des bases de données spectroscopiques est également reconnue.

Au plan technique, il est nécessaire de bien distinguer les paramètres de type raie-para-raie et de type section efficace. Une question qui subsiste est de savoir comment et où tronquer ce qui est raie et faire la distinction avec ce qui est continuum. Pour les sondeurs dans l'infrarouge thermique les désaccords entre modèles de continuum restent importants ( $\sim 1$  K) au regard des objectifs affichés pour les profils déduits des mesures satellitaires ( $\sim 0,1$  K).

Plusieurs améliorations des banques de données ou de la spectroscopie sont souhaitables :

- une meilleure estimation des erreurs sur les données spectroscopiques (un indice de qualité est insuffisant) est indispensable, notamment pour préciser *a priori* la matrice de variance-covariance du modèle direct utilisée dans les inversions ou l'assimilation. Pour cela, les LTR n'utilisent pas toujours bien l'information existante (calculs de Monte Carlo très lourds).
- La validation des dépendances en fonction de la température pour les paramètres spectroscopiques autres que l'intensité des raies (coefficients d'élargissement et de déplacement par la pression). La dépendance en température des sections efficaces restera de son côté à être un facteur qui devra être déterminé empiriquement. Mais une voie de progression pourrait être le calcul des sections efficaces pour les spectres très denses des molécules « lourdes » (contenant des milliers de raies) à plusieurs températures ou pressions, à condition de disposer d'un modèle spectroscopique

validé pour les positions, les intensités et les largeurs des raies individuelles. Mais la nécessité de modéliser les bandes chaudes, donc les niveaux vibrationnels excités, constituera toujours une difficulté pour les molécules lourdes (exemple de ClONO<sub>2</sub> ou N<sub>2</sub>O<sub>5</sub>).

- La validation des formes de raies dues aux interférences entre raies (CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, O<sub>3</sub>...), les profils des raies de H<sub>2</sub>O dans la région intermédiaire (effets de vitesse ou « *speed dependent effects* »).
- La modélisation des continua et leur validation (il est extrêmement difficile de reproduire les parcours ou les conditions atmosphériques au laboratoire).
- La paramétrisation de l'absorption pour les molécules « lourdes » : on peut passer des paramètres raie-par-raie aux sections efficaces (voir ci-dessus), mais il faut aussi considérer les effets possibles d'interférences entre raies dans les branches Q.

En ce qui concerne les modèles de transfert radiatif, la communauté considère que le nombre et la variété des modèles est un aiguillon dans la compétition internationale et permet les améliorations. Il est donc souhaitable de préserver la diversité des logiciels de transfert radiatif. Il existe des LTR de type « utilisation clé en main » qui sont développés et diffusés par un groupe ou un organisme qui soutient leur développement, et d'autres LTR de type « recherche » qui sont développés par des scientifiques pour leurs objectifs propres de recherche (c'est le cas de LARA développé dans notre équipe). Il existe des modèles « complets », mais lents, et des modèles « paramétrés », plus rapides, mais dont la précision est « contrôlée » pour rester dans la limite du bruit expérimental attendu pour un instrument donné (par exemple RTIASI).

La comparaison de ces codes de calcul est un exercice toujours très utile pour détecter les erreurs ou approximations. Ces exercices méritent de continuer à être soutenus. La comparaison avec les observations est utile en deuxième instance.

L'atelier Trattoria a suggéré plusieurs améliorations :

- La discrétisation verticale du trajet lumineux : qu'il s'agisse de couches ou de niveaux, un échantillonnage plus fin au voisinage de la tropopause est souhaitable (c'est important pour les visées au limbe). On souhaite pouvoir disposer de matrices de passage d'une grille de pression à une grille d'altitude géométrique.
- L'utilisation complète des données disponibles dans les banques de données (calcul de la matrice de variance-covariance du modèle direct).
- La prise en compte des déplacements des raies par la pression dans la basse atmosphère.
- La prise en compte des effets non-Voigt (rétrécissement collisionnel, interférences entre raies, ailes lointaines...).
- La prise en compte de l'émissivité de surface et des paramètres dont elle dépend (longueur d'onde, angle de visée, état de surface, humidité, salinité...).
- L'intégration dans les modèles du flux solaire de jour (important autour de 3,5 μm et dans le SWIR), des profils des raies de Fraunhofer à haute résolution spectrale, du décalage Doppler, de la variabilité éventuelle...
- La modélisation des effets de non-ETL (non équilibre thermodynamique local) : couplage transfert radiatif – modèle de populations. Les effets sont étudiés en visée au limbe (MIPAS), mais doivent être transposés en visée au nadir : il est important de corriger ces effets pour l'exploitation des visées au nadir de AIRS et de IASI dans les bandes intenses de CO<sub>2</sub> et il n'est pas exclu que cet effet affecte également les inversions d'autres espèces (O<sub>3</sub>, CO, NO...) sensibles au « pompage » solaire ou chimique.

L'objectif est l'émergence d'un modèle de référence qui devrait combiner les améliorations réalisées sur tel ou tel aspect (forme des raies, discrétisation, non-LTE...) dans les différentes équipes qui travaillent sur les LTR.

Les modèles de transfert radiatif sont principalement développés pour simuler l'absorption gazeuse. Mais ils font également intervenir l'émission par la surface ou par les nuages, la diffusion du rayonnement. Ces différents éléments doivent être caractérisés par des variables ou des paramètres pris en compte dans les LTR.

En infrarouge thermique, les LTR nécessitent une description de :

- L'émissivité de surface. Sur mer, la paramétrisation a été améliorée récemment grâce à des mesures avion. Elle prend désormais explicitement en compte la dépendance avec la température et la salinité. D'autres mesures sont nécessaires pour étendre les modèles. Pour les surfaces continentales, MODIS, AIRS et maintenant IASI fournissent des mesures d'émissivité spectrale et leurs caractéristiques (variations saisonnières, variations avec l'humidité, avec l'angle...).
- La question de l'hétérogénéité des champs de visée : influence conjointe de la fonction de réponse spectrale de l'instrument (ISRF) et de la forme du pixel (IPSF), influence du moyennage spatial à différentes échelles.
- La description des nuages. Lorsqu'il s'agit de nuages opaques, il faut disposer de leur émissivité spectrale. Les LTR en absorption permettent de simuler assez simplement des spectres de nuages type corps gris. Lorsqu'il s'agit de nuages semi-transparentes, il faut prendre en compte la diffusion simple (voire multiple), ce qui nécessite le couplage d'un modèle en absorption avec un modèle de diffusion. Des approximations doivent alors être recherchées.
- La description des aérosols. La modélisation du transfert radiatif pour les aérosols est bien au point dans le visible. Mais il se pose le problème de la continuité des modèles d'aérosols entre le visible/ultraviolet et l'infrarouge courte longueur d'onde/infrarouge thermique où ce ne sont pas les mêmes particules qui contribuent.

L'atelier a également recommandé la poursuite des exercices d'intercomparaison et de validation des logiciels de transfert radiatif et leur comparaison avec des données avion ou ballon de référence (comme IASI-ballon) accompagnées d'une bonne caractérisation de l'état atmosphérique.

Le code de transfert radiatif que j'ai développé doit évoluer avec les nouvelles données que j'analyserai ou pour obtenir de meilleurs résultats sur les dépouillements que j'ai déjà effectués. Les améliorations que je prévois sont tout à fait dans la ligne de celles suggérées dans l'atelier Trattoria du CNES. J'ai déjà abordé dans d'autres parties de ce chapitre certaines d'entre elles (ou tout du moins j'ai souligné leur nécessité) et les autres ont été décrites ci-avant. En synthèse voici les améliorations que je souhaite apporter à LARA dans les prochaines années :

- Prise en compte des nuages
- Prise en compte des aérosols (dans le SWIR)
- Prise en compte du rayonnement solaire diffusé ou réfléchi par les nuages ou les aérosols
- Inversion de mesures au nadir partiellement nuageuses ou au dessus de surfaces hétérogènes
- Développement d'un algorithme dédié pour l'analyse des mesures du STF QualAir
- Participation aux exercices d'intercomparaison à venir.

- Test des paramètres spectroscopiques et intercomparaison des algorithmes de transfert radiatif par comparaison avec des spectres enregistrés avec résolution spectrale élevée (IASI-ballon, FTS QualAir).
- Prise en compte des effets fins ayant par exemple un impact sur les profils de raie (*narrowing, line mixing, ...*).
- Développement de l'inversion dans le SWIR et étude de la synergie TIR/SWIR

J'ai déjà eu l'occasion de travailler sur certaines de ces améliorations. C'est le cas par exemple pour les effets de line d'interférences entre raies (*line mixing*) dans les branches Q du méthane (cf. § 6.5). Nous avons montré qu'il est possible d'améliorer l'inversion du méthane avec IASI en inversant simultanément les bandes  $\nu_3$  et  $\nu_4$  de  $\text{CH}_4$  de jour afin de bénéficier du rayonnement solaire réfléchi par la surface dans la région de la bande  $\nu_3$  [Razavi *et al.*, 2009]. Dans la Figure 69. Je présente deux simulations qui intègrent le *line mixing* dans la bande  $\nu_3$ , l'une de nuit, et l'autre de jour, et les mêmes simulations sans le *line mixing* sont également présentées. On peut constater dans les résidus que la prise en compte de ces effets est nécessaire de jour puisque les résidus atteignent des valeurs de l'ordre de 5 K. Dans le cas de IASI dans la bande  $\nu_2+\nu_4$  entre 2700 et 2760  $\text{cm}^{-1}$ , le rapport signal à bruit n'est pas très bon dans cette région, et l'effet dans l'inversion est donc moindre. Toutefois, on peut songer que d'autres instruments à l'avenir couvriront cette région spectrale avec un meilleur signal à bruit.

Cet exemple permet également de montrer l'intérêt de la synergie entre le TIR et le SWIR comme l'illustre la Figure 70. A gauche, noyaux moyens du méthane en inversant le domaine spectral 1240-1290  $\text{cm}^{-1}$  (bande  $\nu_4$ ), et à droite, les mêmes noyaux mais en combinant cette fois-ci le domaine spectral précédent et le domaine 2527-2760  $\text{cm}^{-1}$  dans la bande  $\nu_3$ . qui montre les noyaux moyens du méthane en inversant le domaine spectral 1240-1290  $\text{cm}^{-1}$  (bande  $\nu_4$ ) seul, et les mêmes noyaux mais en combinant cette fois-ci le domaine spectral précédent et le domaine 2527-2760  $\text{cm}^{-1}$  dans la bande  $\nu_3$ . On constate bien que la sensibilité des noyaux proches de la surface est augmentée de manière significative.

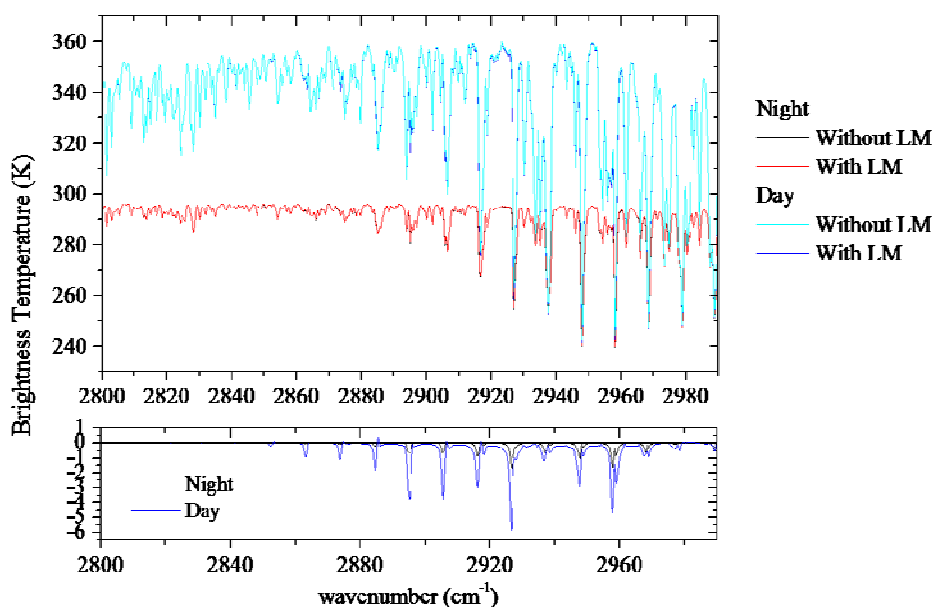


Figure 69. Simulation avec et sans line mixing d'un spectre de jour et d'un spectre de nuit dans la bande  $\nu_3$  du méthane.

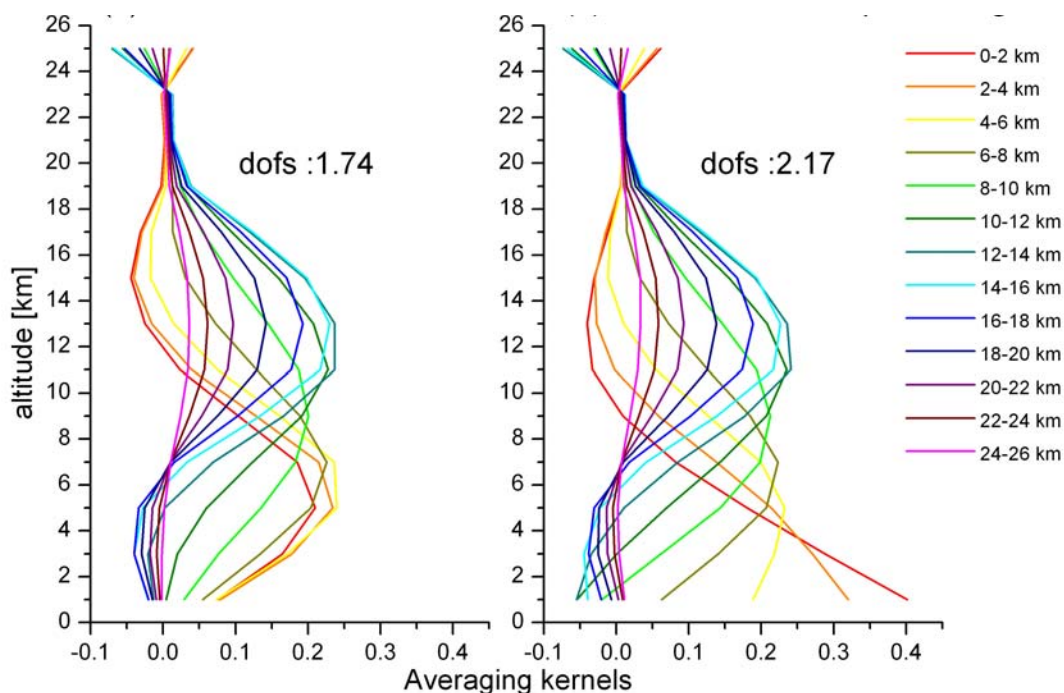


Figure 70. A gauche, noyaux moyens du méthane en inversant le domaine spectral 1240-1290  $\text{cm}^{-1}$  (bande  $\nu_4$ ), et à droite, les mêmes noyaux mais en combinant cette fois-ci le domaine spectral précédent et le domaine 2527-2760  $\text{cm}^{-1}$  dans la bande  $\nu_3$ .

La réalisation de vols dans la configuration SWIR-ballon/spectro- $\text{O}_2$ /caméra IR va nous permettre d'avancer sur ce sujet des synergies entre domaine spectraux. En effet, le sondage depuis l'espace par visée au nadir des constituants troposphériques dans l'infrarouge thermique souffre du manque de contraste entre la surface et la première couche limite. On dit que les fonctions de moyennage sont proches de zéro au voisinage de la surface ou peu sensibles à l'information de la couche limite. Une possibilité (par sondage vertical à distance depuis l'espace) de mieux déterminer (de jour) les concentrations des espèces chimiques dans la couche limite est l'utilisation de la région spectrale dite infrarouge de courte longueur d'onde (1 - 2.5  $\mu\text{m}$ ) ou SWIR (*Short Wave InfraRed*) en flux solaire réfléchi ou rétrodiffusé. La technique est en principe bien adaptée (au moins en ciel clair et en absence d'aérosol), puisque les photons recueillis par le sondeur auront effectivement traversé (2 fois) la couche limite. Un tel choix avait été proposé pour TRAQ (bande B3 à 2.3  $\mu\text{m}$  pour  $\text{CO}$  et  $\text{CH}_4$ ), mais il n'existe pas encore de spectre à haute résolution spectrale et bon rapport signal à bruit (afin de bien résoudre et analyser les raies de  $\text{CO}$ ) disponible pour démontrer effectivement les performances de cette technique. Ce sont ces spectres que nous nous proposons d'acquérir avec les vols ballon correspondant.

## 8.6 Chimie

La surveillance du rétablissement de la couche d'ozone nécessite des observations précises de l'ozone ainsi que de plusieurs espèces azotées ou halogénées qui jouent un rôle majeur dans la chimie stratosphérique. Les effets du protocole de Montréal qui limite les émissions par l'activité humaine de composés chlorés sont actuellement perceptibles avec une diminution des quantités de chlore dans la stratosphère [WMO, 2007]. Mais des mesures précises et à moyen terme doivent être réalisées pour suivre dans le détail l'impact des composés chlorés sur les quantités d'ozone dans la stratosphère. De plus, les produits de remplacement des CFCs sont en constante augmentation (rappelons que si leur effet sur

l'ozone est faible par rapport à celui des CFCs, ce sont de puissants gaz à effet de serre). Connaissant mal leur transformation dans la troposphère et leur taux de transport dans la basse stratosphère, il est nécessaire de développer la mesure de leur distribution dans la haute troposphère et la basse stratosphère (ces espèces sont à l'heure actuelle principalement mesurées au sol par les réseaux de mesures AGAGE [Prinn *et al.*, 2000] et NOAA/CMLD [Hall *et al.*, 2002]).

La distribution des espèces chimiques comme  $N_2O$ ,  $CH_4$ ,  $O_3$  est contrôlée à grande échelle par les phénomènes de transport, les réactions chimiques et les mélanges de masses d'air. Ces espèces sont injectées ( $N_2O$  et  $CH_4$ ) ou produites ( $O_3$ ) dans la stratosphère en région tropicale, puis elles sont transportées en région extra-tropicale. Au cours de ce transport vers les pôles elles subissent les effets de subsidence à moyenne latitude (circulation de Brewer-Dobson) et à haute latitude en hiver (descente dans le vortex). Cette circulation est lente. Au cours de ce transport à grande échelle les différentes espèces réagissent chimiquement avec OH, Cl et  $O(^1D)$  pour le méthane et avec  $O(^1D)$  via le rayonnement UV pour l'oxyde nitreux, et par photolyse pour l'ozone. Le temps caractéristique des réactions chimiques est plus court que celui du transport, et ces réactions sont d'autant plus efficaces que l'altitude est élevée.

Plusieurs études ont examiné les différences entre les profils verticaux mesurés dans la stratosphère et ceux prédits par les modèles pour les espèces réactives comme les composés azotés. Des études ont montrés que la représentation incomplète du transport dans les modèles pouvait expliquer ces désaccords [Berthet *et al.*, 2006] comme la simulation de la descente de  $N_2O$  dans le vortex polaire en hiver qui détermine les quantités simulées de  $NO_x$  (e.g. [Ricaud *et al.*, 2005]). Les observations de traceurs comme  $CH_4$  et/ou  $N_2O$  depuis des expériences embarquées sous ballon ((SPIRALE, LPMA, IASI-ballon, SALOMON- $N_2$ ) et sur des satellites (ENVISAT, ODIN, ACE, AURA) doivent être utilisées dans les campagnes à venir pour étudier la capacité des modèles à simuler le transport. Si ce dernier est bien reproduit, les différences entre mesures et modèles en ce qui concerne les espèces réactives pourront alors être examinées en terme d'incertitudes sur la connaissance des réactions chimiques se produisant dans la stratosphère. De plus, il existe des corrélations dites " compactes " entre les traceurs comme par exemple  $N_2O$  et  $CH_4$  ou  $N_2O$  et  $O_3$ . Ces corrélations traceur-traceur permettent de classer les différentes régions de la stratosphère en terme de latitude équivalente: vortex polaire, extra tropique/extra-vortex et tropiques [Michelsen *et al.*, 1998]. Elles sont d'une grande aide pour contraindre et tester la dynamique des modèles tridimensionnels. Ces corrélations traceur-traceur peuvent être perturbées lors d'événements sporadiques comme les intrusions tropicales à moyenne latitude, ou encore les échanges entre les moyennes latitudes et le vortex pendant les périodes de formation et dissipation du vortex [Waugh 1993, Waugh *et al.*, 1997]. Il est alors intéressant d'étudier les mélanges de masses d'air au cours de ces échanges.

Une des questions importante qui reste posée en chimie stratosphérique concerne l'estimation précise du contenu en brome [Dorf *et al.*, 2006b] et de la contribution de cette espèce chimique dans les processus de destruction de l'ozone et du couplage des composés bromés avec les réactions impliquant les composés chlorés et azotés. Aujourd'hui une estimation du contenu total en brome inorganique est déduite des mesures de concentration de BrO [Pfeilsticker *et al.*, 2000], mais les mesures demandent à être confirmées par des instruments différents. Des mesures précises du contenu en brome doivent permettre d'accéder à la variabilité des quantités d'espèces bromées qui sont très certainement sous-estimées dans les simulations actuelles des CTM [Salawitch *et al.*, 2005]. Le potentiel de destruction d'ozone par le brome au travers des principaux cycles catalytiques (identiques aux canaux de réactions impliquant ClO et OCIO) doit être précisé dans les conditions spécifiques



de l'hiver polaire (vortex, faible illumination solaire) et de l'été polaire (flux solaire permanent ou très long).

La connaissance du contenu en aérosols dans la stratosphère reste également un des points à améliorer comme l'a souligné le comité SPARC [SPARC, 2006], en rappelant notamment les incohérences entre les différents ensembles de données dans les périodes de faible activité volcanique. Une connaissance plus fiable des distributions en taille de différents types d'aérosols manque aujourd'hui et conduit à des erreurs sur les propriétés qui en sont déduites, comme la densité de surface des aérosols liquides. Cette connaissance est essentielle pour réaliser des simulations correctes en incluant les réactions de chimie hétérogène qui se produisent dans la basse stratosphère [Dufour *et al.*, 2005]. Là encore, les mesures sous ballon (STAC, SALOMON-N2, MicroRADIBAL, DUSTER) peuvent contribuer de manière significative à mieux déterminer les propriétés des aérosols en mesurant leur nature, leur quantité et leur taille. Notons que ces études sont à faire pour plusieurs périodes de l'année afin d'étudier les phénomènes qui conduisent à modifier le contenu en aérosols, et qui affectent donc significativement l'ozone et le climat à travers des mécanismes radiatifs [Baldwin *et al.*, 2007]. En hiver, le vortex polaire confine les aérosols solides comme les particules des nuages polaires stratosphériques, les suies [Baumgardner *et al.*, 2004] et les poussières météoritiques ou interplanétaires qui descendent de la haute atmosphère [Curtius *et al.*, 2005]. Une meilleure caractérisation des différents types d'aérosols est donc nécessaire, ainsi que de la dépendance verticale de leur distribution en taille. En été, l'impact des feux de forêts boréales sur le contenu en suie de la stratosphère est un nouveau champ d'investigation [Fromm *et al.*, 2005]. Il faut également étudier les mécanismes de transport des aérosols de leurs sources (pour les suies par exemple, brûlage de biomasse aux tropiques toute l'année, ou aux latitudes boréales en été) aux latitudes élevées (circulation générale de Brewer Dobson, transport rapide méridional, effet de gravito-photophorèse).

De plus, il faudra sans doute considérer dans les modèles l'impact des phénomènes énergétiques intenses sur la chimie stratosphérique et en particulier celle des NO<sub>x</sub>. Des simulations Lagrangiennes au LPC2E de l'évolution de NO<sub>2</sub> le long de la trajectoire des masses d'air aboutissant aux points d'impact des mesures SAOZ embarqués sous montgolfière infrarouge ont montré qu'il était impossible de simuler les variations observées de NO<sub>2</sub> sans ajouter une source abondante de NO<sub>x</sub> (jusqu'à 1.5 ppbv) très localisée au-dessus de l'Amérique du Sud. En effet des concentrations anormalement élevées ont été observées. Au cours du temps elles diminuent rapidement en 2-3 jours au cours du déplacement des masses d'air au-dessus de l'Océan Pacifique. Si les éclairs, et le soulèvement convectif des masses d'air polluées, peuvent expliquer les fortes concentrations parfois observées dans la haute troposphère, la lenteur du transport vertical, démontré par la faible variance de l'ozone, n'a pas permis d'expliquer la variabilité de la teneur de NO<sub>2</sub> au dessus de 20 km. Deux sources possibles ont été suggérées mais leur réalité reste à démontrer. La première concerne les décharges électriques entre les nuages et l'ionosphère connues sous le nom de " blue jets " et dont l'impact a été subi à plusieurs reprises par les nacelles (destruction simultanée de détecteurs sur des nacelles indépendantes, perte d'aluminium sur la MIR). La seconde source serait des précipitations de particules chargées relativement énergétiques dans l'anomalie Sud-Atlantique du champ magnétique [Huret, 2007].

On voit donc bien que la stratosphère polaire reste un champ scientifique intéressant pour la surveillance de l'évolution de l'ozone et pour l'évaluation des interactions entre ozone et climat. Dans ce contexte, mon travail dans le domaine du sondage de l'atmosphère devra permettre d'apporter de nouvelles informations pour répondre aux questions encore en suspens. Nous n'avons pas aujourd'hui investi dans la mesure des aérosols (avec nos mesures ballon ou à partir d'instruments spatiaux), mais nous avons fait le choix d'une collaboration

avec d'autres équipes qui ont cette expertise. Ainsi, notre activité dans le champ de la physico chimie atmosphérique se fera (dans les deux ans qui viennent) dans le cadre du projet ANR StraPolÉté en collaboration avec d'autres équipes. Ce projet permet de mettre en commun des compétences et expertises complémentaires qui doivent permettre de répondre ou d'éclairer plusieurs des questions soulevées en ce qui concerne la basse et moyenne stratosphère polaire Arctique en été. L'activité proposée repose sur des mesures à partir d'instruments embarqués sous ballon, sur l'analyse de données d'instruments à bord de satellites et sur les résultats d'outils de modélisation. L'objectif est de quantifier l'impact des processus dynamiques sur la composition de la basse et moyenne stratosphère polaire. De tels mécanismes affectent le bilan de l'ozone agissant ainsi sur le bilan radiatif de la stratosphère et donc sur la circulation stratosphérique. En réponse, les modes du climat polaire sont susceptibles d'être affectés de manière substantielle mais selon des mécanismes qui restent à éclaircir. Il est en tout cas indispensable de bien saisir les processus physico-chimiques qui régissent le bilan de l'ozone dans la basse et moyenne stratosphère si l'on veut que les modèles couplés chimie-climat simulent l'impact des variations d'ozone sur le climat. Nous avons choisi de concentrer l'effort sur la région Arctique en été où les processus physico-chimiques sont différents des autres saisons et sont peu documentés. Ils sont caractérisés notamment par :

- des mécanismes dynamiques à grande échelle entre les basses/moyennes et les hautes latitudes favorisés par la faiblesse des barrières dynamiques en cette saison.
- la présence de structures dynamiques à échelle spatiale très fine (quelques centaines de mètres verticalement). Elles sont liées notamment à des débris de vortex pouvant demeurer jusqu'en été.
- une chimie particulière se produisant dans des conditions de fort ensoleillement. Elle modifie notamment la répartition des espèces azotées, jouant un rôle essentiel dans le bilan de l'ozone, au sein de leur famille.
- Un bilan en aérosols solides (suies) fortement influencé par les mécanismes d'échanges entre la troposphère et la stratosphère et les phénomènes de feux de forêts boréales en été.

Le projet StraPolÉté est coordonné par le Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement (LPCE). Les laboratoires qui participent à ce projet sont le Service d'Aéronomie (SA, Paris), le Laboratoire de Physique Moléculaire pour l'Atmosphère et l'Astrophysique (LPMAA, Paris), le Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA, Lille). Au niveau international participent des groupes impliqués dans les mesures satellitaires des composés chimiques et d'aérosols (Univ. Heidelberg), dans la modélisation des processus physico-chimiques de la basse et moyenne stratosphère.

Les objectifs scientifiques du projet se concentrent sur 2 points principaux:

- La détermination des processus dynamiques ayant lieu en été et leur impact sur l'estimation du budget en ozone à partir de mesures ballon, d'observations satellites et de résultats de modélisation.
- Le bilan des espèces chimiques jouant un rôle clé dans la chimie de l'ozone en été arctique et la capacité des modèles à simuler les quantités de ces différentes espèces dans la basse et moyenne stratosphère et leur impact sur la chimie de l'ozone en mettant l'accent sur les espèces azotées et les espèces bromées.

Les perspectives de l'équipe Atmosphère que je co-anime passent donc par des projets en collaboration avec d'autres partenaires dans le cadre de synergies de compétences ou de moyens expérimentaux pour l'étude de la chimie atmosphérique. En parallèle aux objectifs spécifiques des différents projets en cours, la préparation de projets communs est aussi une

occasion d'échanges et de discussions propices, à l'innovation instrumentale et aux idées nouvelles.

## 9 Références

- Atmospheric measurements from space*, ESAMS '99, European symposium, ESTEC, Noordwijk, The Netherlands, 18-22 January 1999, *ESA WPP-161* 1-2, 1999.
- Aumann H.H., M.T. Chahine, C. Gautier, M.D. Goldberg, E. Kalnay, L.M. McMillin, H. Revercomb, P.W. Rosenkranz, W.L. Smith, D.H. Staelin, L.L. Strow, J.-H. Susskind, *AIRS/AMSU/HSB on the Aqua Mission: Design, science objectives, data products, and processing systems*, IEEE Trans. Geosci. Remote Sens. 100 41(2), 253–264, 2003.
- Baldwin, M.P., M. Dameris, and T.G. Shepherd, *How will the stratosphere affect climate change*, Science, 316, 1576-1577, 2007 (doi:10.1126/science.1144303, 2007).
- Barret B., *Inversion et caractérisation de profils de constituants atmosphériques à partir de mesures FTIR sol*, Thèse de l'Université Libre de Bruxelles, 2003.
- Baumgardner D., G. Kok, G. Raga, *Warming of the Arctic lower stratosphere by light absorbing particles*, Geophys. Res. Lett. 31, L06117, 2004 (doi:10.1029/2003GL018883, 2004).
- Bernath P.F., C.T. McElroy, M.C. Abrams, C.D. Boone, M. Butler, C. Camy-Peyret, M. Carleer, C. Clerbaux, P.F. Coheur, R. Colin, P. DeCola, M. DeMaziere, J.R. Drummond, D. Dufour, W.F.J. Evans, H. Fast, D. Fussen, K. Gilbert, D.E. Jennings, E.J. Llewellyn, R.P. Lowe, E. Mahieu, J.C. McConnell, M. McHugh, S.D. McLeod, R. Michaud, C. Midwinter, R. Nassar, F. Nichitiu, C. Nowlan, C.P. Rinsland, Y.J. Rochon, N. Rowlands, K. Semeniuk, P. Simon, R. Skelton, J.J. Sloan, M.A. Soucy, K. Strong, P. Tremblay, D. Turnbull, K.A. Walker, I. Walkty, D.A. Wardle, V. Wehrle, R. Zander R. and J. Zou, *Atmospheric Chemistry Experiment (ACE): Mission overview*, Geophys. Res. Lett., 32, L15S01, 2005, (doi:10.1029/2005GL022386)
- Berthet G., N. Huret, F. Lefèvre, G. Moreau, C. Robert, M. Chartier, V. Catoire, B. Barret, I. Pisso, and L. Pomathiod, *On the ability of chemical transport models to simulate the vertical structure of the N<sub>2</sub>O, NO<sub>2</sub> and HNO<sub>3</sub> species in the mid-latitude stratosphere*, Atmos. Chem. Phys., 6, 1599-1609, 2006.
- Bianchini G., A. Boscaleri, F. Mencaraglia, E. Pascale, and E. Castelli, *Correlative Measurements of Selected Molecules over the Mediterranean Region*, Proceedings of ENVISAT validation Workshop, Frascati, 9-13 December 2002, ESA SP-531, August 2003.
- Blom C. E., C. Camy-Peyret, V. Catoire, K. Chance, H. Oelhaf, J. Ovarlez, S. Payan, M. Pirre, C. Piesch & G. Wetzel, *Validation of MIPAS temperature profiles by stratospheric balloon and aircraft measurements*, In ESA SP-562, 2004 (D. Danesy, ESA Pub. Div. Ed.), 57 (5 p.), 2004
- Brasseur G.P., X. Tie, P.J. Rasch, F. Lefèvre, *A three-dimensional simulation of the Antarctic ozone hole: impact of anthropogenic chlorine on the lower stratosphere and upper troposphere*, J. Geophys. Res., 102, D7, 8909-8930, 1997.
- Brown L.R., C.B. Farmer, C.P. Rinsland, R.A. Toth, *Molecular line parameters for the atmospheric trace molecule spectroscopy experiment*, Appl. Opt. 26, 5154–5182, 1987.
- Butz A., H. Bösch, C. Camy-Peyret, M. Chipperfield, G. Dufour, K. Grunow, P. Jeseck, S. Kühl, S. Payan, I. Pépin, J. Pukite, A. Rozanov, C. von Savigny, C. Sioris, T. Wagner, F. Weidner, K. Pfeilsticker, *Inter-comparison of stratospheric O<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> abundances retrieved from balloon borne direct sun observations and Envisat/SCIAMACHY limb measurements*, Atmos. Chem. Phys. 2006, 6, 1293-1314
- Bureau J., *Les raies moléculaires de l'atmosphère solaire dans l'infrarouge: spectroscopie, transfert radiatif et modélisation physico-chimique du CO et de ses isotopomères*, Thèse de l'université Pierre et Marie Curie, Paris 6, 2009.
- Butz A., *Inter comparaison des abondances stratosphériques de O<sub>3</sub> et NO<sub>2</sub> dérivées de mesures sous ballon par occultation solaire dans l'IR et l'UV*, Thèse de l'université Pierre et Marie Curie, Paris 6, 2006.
- Butz, A., H. Bösch, C. Camy-Peyret, M. Dorf, A. Engel, S. Payan, K. Pfeilsticker, *Observational constraints on the kinetics of the ClO-BrO and ClO-ClO ozone loss cycles in the Arctic winter stratosphere*. Geophys. Res. Lett. 2007, 34, L05801 (doi:10.1029/2006GL028718)
- Brühl, C., P.J. Crutzen and J.-U. Groöb, *High-latitude, summertime NO<sub>x</sub> activation and seasonal ozone decline in the lower stratosphere: Model calculations based on observations by HALOE on UARS*, J. Geophys. Res., 103, 3587-3597, 1998.
- Camy-Peyret C. *L'atmosphère moyenne et les observations spatiales*. CNES, Cépadues-Editions, Paris, 1991
- Camy-Peyret C., J.-M. Flaud, J. Laurent, G.M. Stokes, *First infrared measurement of atmospheric*

- NO<sub>2</sub> from the ground*, Geophys. Res. Lett., 10, 35-38, 1983
- Camy-Peyret C. *Balloon-borne infrared Fourier transform spectroscopy for measurements of atmospheric trace species*. Spectrochimica Acta, 51A, 7, 1143-1152, 1995
- Camy-Peyret C, P. Jeseck, T. Hawat, G. Durry, S. Payan, G. Berubé, L. Rochete, D. Huguenin? *The LPMA balloon-borne FTIR spectrometer for remote sensing of atmospheric constituents*. ESA Publications SP-370, 323-328, 1995
- Camy-Peyret C., S. Payan, P. Jeseck, Y. Té, *Mesures spectroscopiques de constituants et de polluants atmosphériques par techniques in-situ et à distance, au sol ou embarquées*. C.R. Acad. Sci. Paris, 2, série IV, 905-922, 2001a
- Camy-Peyret C., S. Payan, P. Jeseck, Y. Té, *Validating Envisat atmospheric products using the balloon-borne instrument LPMA (Limb Profile Monitor of the Atmosphere)*, Atmospheric Chemistry Validation of Envisat (ACVE,) May 16-18, Noordwijk, The Netherlands, ESA WPP-186, 2001b
- Camy-Peyret C., G. Dufour, S. Payan, H. Oelhaf, G. Wetzel, G. Stiller, T. Blumenstock, C.E. Blom, T. Gulde, N. Glatthor, A. Engel, M. Pirre, V. Catoire, G. Moreau, M. De Mazière, C. Vigouroux, E. Mahieu, U. Cortesi, F. Mencaraglia, *Validation of MIPAS N<sub>2</sub>O profiles by stratospheric balloon, aircraft and ground based measurements*. In ESA SP-562, 2004 (D. Danesy, ESA Pub. Div. Ed.), 29 (9 p.), 2004a
- Camy-Peyret C., S. Payan, G. Dufour, H. Oelhaf, G. Wetzel, G. Stiller, N. Glatthor, T. Blumenstock, C.E. Blom, C. Keim, S. Mikuteit, A. Engel, M. Pirre, G. Moreau, V. Catoire, A. Bracher, M. Weber & K. Bramstedt, *Validation of MIPAS CH<sub>4</sub> profiles by stratospheric balloon, aircraft and ground based measurements*, in ESA SP-562, 2004 (D. Danesy, ESA Pub. Div. Ed.), 31 (6p.), 2004b
- Camy-Peyret C. *TROC: a proposed tropospheric sounder for chemistry and climate*. 35<sup>th</sup> COSPAR Scientific Assembly 2004, Paris, France, 18-25 juillet 2004c
- Camy-Peyret C. *Fourier transform spectroscopy from balloon for remote sensing of the stratosphere and the troposphere*. Optical Society of America, Topical Meeting on Fourier Transform Spectroscopy, Alexandria, Virginia, USA, 31 janvier-2 février 2005- CD-ROM - FthA2
- Camy-Peyret C., *Infrared atmospheric sounding interferometer – IASI FM2 on MetOp 1 – Commissioning phase and first results*. Optical Society of America, Topical Meeting on Fourier Transform Spectroscopy, Santa Fe, New Mexico, USA, 11-15 février 2007a
- Camy-Peyret C., *Atmospheric chemistry from pollution to greenhouse gases and the ozone layer*. Matinées thématiques « Environnement », Le Bourget, France, 21 juin 2007b
- Carlsaw K.S., T. Peter, S.L. Clegg., *Modeling the composition of liquid stratospheric aerosols*, Rev. Geophys., 35, 125-154, 1997.
- Chance K., K.W. Jucks, D.G. Johnson, W.A. Traub, *The Smithsonian Astrophysical Observatory Database SAO92*, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer 52, 447-457, 1998.
- Chédin A., N. Husson, N.A. Scott, I. Jobard, I. Cohen-Hallaleh, A. Berroir, *La banque de données GEISA, Description et logiciel d'utilisation*, Laboratoire de Météorologie Dynamique du CNRS, Internal Note 108, Ecole Polytechnique, Oct. 1980.
- Chevallier, F., F.-M. Bréon, and P. J. Rayner (2007), The contribution of the Orbiting Carbon Observatory to the estimation of CO<sub>2</sub> sources and sinks: theoretical study in a variational data assimilation framework. J. Geophys. Res., 112, D09307, 2007 (doi:10.1029/2006JD007375).
- Chipperfield M.P., J.A. Pyle, *Model sensitivity studies of Arctic ozone depletion*, J. Geophys. Res., 103, 28389-28403, 1998.
- CITEPA, *Inventaire des émissions de polluants atmosphériques en France - Séries sectorielles et analyses étendues - Format SECTEN*, CITEPA Paris, Juin 2009.
- Clerbaux C., J. Hadji-Lazaro, S. Payan, C. Camy-Peyret, and G. Mégie, *Retrieval of CO from the IMG/ADEOS spectra.*, IEEE Transaction on Geoscience and Remote Sensing, 37, 3, 1657-1662, 1999
- Clerbaux C., J. Hadji-Lazaro, S. Payan, C. Camy-Peyret, J. Wang, D.P. Edwards, and M. Luo, *Retrieval of CO from remote-sensing measurements in the infrared using four different inversion method*, Applied optics, 41, 7068-7073, 2002
- Cortesi U., C.E. Blom, C. Camy-Peyret, K. Chance, J. Davies, F. Goutail, J. Kuttippurath, C.T. McElroy, F. Mencaraglia, H. Oelhaf, A. Petritoli, M. Pirre, J.P. Pommereau, F. Ravegnani, J.B. Renard, K. Strong, *MIPAS ozone validation by stratospheric balloon and aircraft measurements.*, in ESA SP-562, 2004 (D. Danesy, ESA Pub. Div. Ed.), 13 p.
- Curtius J., R. Weigel, H.-J. Vössing, H. Wernli, A. Werner, C.-M. Volk, P. Konopka, M. Krebsbach, C. Schiller, A. Roiger, H. Schlager, V. Dreiling, and S. Borrmann, *Observations of meteoric material and implications for aerosol nucleation in the winter Arctic lower stratosphere derived from in situ particle measurements*, Atmos. Chem. Phys., 5, 3053-3069, 2005.

- Delmas R., G. Mégie, and V.-H. Peuch, *Physique et chimie de l'atmosphère*, Ed. Belin, 2005.
- De Mazière, M., C. Vigouroux, P.F. Bernath, P. Baron, T. Blumenstock, C. Boone, C. Brogniez, V. Catoire, M. Coffey, P. Duchatelet, D. Griffith, J. Hannigan, Y. Kasai, I. Kramer, N. Jones, E. Mahieu, G.L. Manney, C. Piccolo, C. Randall, C. Robert, C. Senten, K. Strong, J. Taylor, C. Tétard, K.A. Walker, and S. Wood, *Validation of ACE-FTS v2.2 methane profiles from the upper troposphere to lower mesosphere*, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 7, 17975-18014, 2007.
- Dorf M., H. Bosch, A., Butz, C. Camy-Peyret, M.P. Chipperfield, A. Engel, F. Goutail, K. Grunow, F. Hendrick, S. Hrechanyy, B. Naujokat, J.P. Pommereau J. M. van Roozendaal, C. Sioris, F. Stroh, F. Weidner and K. Pfeilsticker, *Balloon-borne stratospheric BrO measurements: comparison with Envisat/SCIAMACHY BrO limb profiles*. *Atmos. Chem. Phys.* 2006a, 6, 2483-2501
- Dorf M., J.H. Butler, A. Butz, C. Camy-Peyret, M.P. Chipperfield, L. Kritten, S.A. Montzka, B. Simmes, F. Weidner and K. Pfeilsticker K., *Long-term observations of stratospheric bromine reveal slow down in growth*. *Geophys. Res. Lett.* 2006b, 33, L24803 (doi:10.1029/2006GL027714)
- Drdla K.A., A. Tabazadeh, R.P. Turco, M.Z. Jacobsen, J.E. Dye, C. Twohy, D. Baumgardner, *Analysis of the physical state of one Arctic polar stratospheric cloud based on observations*, *Geophys. Res. Lett.*, 21, 2475-2478, 1994.
- Dufour G., S. Payan, Y. Té, P. Jeseck, V. Ferreira, C. Camy-Peyret, M. Eremenko, A. Butz, K. Pfeilsticker, W. Gurlit, and K. Gerilowski (2004a), *Envisat validation results obtained with LPMA and IASI-balloon FTIR*, Proceedings of the Second Workshop on the Atmospheric Chemistry Validation of ENVISAT (ACVE-2), 3-7 May 2004, ESA-ESRIN, Frascati, Italy, ESA SP-562, August 2004a, (D. Danesy, ESA Pub. Div. Ed.), 57 (6 p).
- Dufour G., S. Payan, F. Lefèvre, M. Eremenko, A. Butz, P. Jeseck, Y. Té, K. Pfeilsticker and C. Camy-Peyret, *4D comparison method to study the NO<sub>y</sub> partitioning in summer polar stratosphere. Influence of aerosol burden*, *ACPD*, 4, 8171-8199, 2004
- Dufour G., Payan S., Lefèvre F., Eremenko M., Butz A., Jeseck P., Té Y., Pfeilsticker K., Camy-Peyret C. *4-D comparison method to study the NO<sub>y</sub> partitioning in summer polar stratosphere - Influence of aerosol burden*, *Atmos. Chem. Phys.* 5, 919-926, 2005
- Dufour G., *Physique moléculaire atmosphérique : contribution à la validation du satellite Envisat par expériences embarquées sous ballon*, Thèse de l'université Pierre et Marie Curie, Paris 6, 2004.
- Engel, A., U. Schmidt, D. McKenna and H. Fischer, *Stratospheric Trends of CFC-12 Over the Past Two Decades: Recent Observational Evidence of Declining Growth Rates*, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 17, 3319-3322, 1998.
- Eremenko M., *Inversion des spectres infrarouges à haute résolution spectrale enregistrés en absorption à partir de ballons stratosphériques, ajustement global de grands domaines spectraux, inversion multi-paramètres (espèces moléculaires)*, Thèse de l'université Pierre et Marie Curie, Paris 6, 2003.
- European Space Agency (ESA), *Envisat MIPAS - an instrument for atmospheric chemistry and climate research*, *ESA Bull.* 101 (2000).
- Butz A., Bösch H., Camy-Peyret C., Chipperfield M., Dufour G., Dorf M., Rozanov A., von Savigny C., Sioris C., Payan S., Weidner F., Pfeilsticker K. *Inter-comparison of stratospheric O<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> profiles by balloon-borne UV, vis and near-IR solar occultation and ENVISAT/SCIAMACHY Limb measurements en préparation* (2004)
- Fahey D.W., S.R. Kawa, E.L. Woodbridge, P. Tin, J.C. Wilson, H.H. Jonsson, J.E. Dye, D. Baumgardner, S. Bormann, D.W. Toohey, L.M. Avallone, M.H. Proffitt, J. Margitan, M. Loewenstein, J.R. Podolske, R.J. Salawitch, S.C. Wofsy, M.K.W. Ko, D.E. Anderson, M.R. Schoeberl and K.R. Chan, *In situ measurements constraining the role of sulphate aerosols in midlatitude ozone depletion*, *Nature*, 363, 509-514, 1993.
- Fahey D. W., A.R. Ravishankara, *Summer in the stratosphere*, *Nature*, 285, 208-210, 1999.
- Fahey DW, R.S. Gao, K.S. Carslaw, J. Kettleborough, P.J. Popp, M.J. Northway, J.C. Holecek, S.C. Ciciora, R.J. McLaughlin, T.L. Thompson, R.H. Winkler, D.G. Baumgardner, B. Gandrud, P.O. Wennberg, S. Dhaniyala, K. McKinney, T. Peter, R.J. Salawitch, T.P. Bui, J.W. Elkins, C.R. Webster, E.L. Atlas, H. Jost, J.C. Wilson, R.L. Herman, A. Kleinböhl and M. von König, *The detection of large HNO<sub>3</sub>-containing particles in the winter Arctic stratosphere*, *Science*, 291, 1026-1031, 2001.
- Ferlemann F. C. Camy-Peyret, R. Fitzenberger, H. Harder, T. Hawat, H. Osterkamp, M. Schneider, D. Perner, U. Platt, P. Vradelis and K. Pfeilsticker, *Stratospheric BrO profiles measured at different latitudes and seasons : Instrument description, spectral analysis and profile retrieval*, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 3847-3850, 1998.
- Ferlemann F., N. Bauer, R. Fizenberger, H. Harder, H. Osterkamp, D. Perner, U. Platt, M. Scheider, P. Vradelis, and K. Pfeilsticker, *A new DOAS-*

- instrument for stratospheric balloon-borne trace gas studies*. Appl. Opt., 39, 2377-2386, 2000.
- Ferreira V., *Etude de la basse atmosphère de la Terre par mesure FTIR depuis l'espace: préparation de la mission spatiale TROC et IASI*, Thèse de l'université Pierre et Marie Curie, Paris 6, 2004.
- Flaud J.-M., C. Camy-Peyret, D. Cariolle, J. Laurent, G.M. Stokes, *Daytime variation of atmospheric NO<sub>2</sub> from ground based infrared measurements*, Geophys. Res. Lett., 10, 1104-1107, 1983.
- Flaud J.-M., C. Piccolo and B. Carli, *A spectroscopic database for MIPAS*, in: Proc. of Envisat Validation Workshop, Frascati, Italy, 9–13 December 2002, ESA SP-531, 2003.
- Flaud J.-M., and J.-M. Hartmann, *Molecular spectroscopy and planetary atmospheres: forewords*, C. R. Physique, 6, 815-816, 2005.
- François S., *Méthodologie d'établissement de cadastres d'émissions à l'échelle régionale : application au cadastre ESCOMPTE et à son extension à la région PACA*, Thèse de l'Université de l'Université Louis Pasteur - Strasbourg 1, 2004.
- Friedl-Vallon F, G. Maucher, M. Seefeldner, O. Trieschmann, A. Kleinert, A. Lengel, C. Keim, H. Oelhaf and H. Fischer, *Design and characterization of the balloon-borne Michelson Interferometer for Passive Atmospheric Sounding (MIPAS-B2)*, Appl. Optics, 43, 3335-3355, 2004
- Fromm M., R. Bevilacqua, R. Servranckx, J. Rosen, J. Thayer, J. Herman, and D. Larko and R. Servranckx, *Pyro-cumulonimbus injection of smoke to the stratosphere: Observations and impact of a super blowup in northwestern Canada on 3-4 August 1998*, J. Geophys. Res., 110, doi:10.1029/2004JD005350, 2005.
- Gao, R.S., D.W. Fahey, L.A. Del Negro, S.G. Donnelly, E.R. Keim, J.A. Neuman, E. Teverovskaia, P.O. Wennberg, T.F. Hanisco, E.J. Lanzendorf, M.H. Proffitt, J.J. Margitan, J.C. Wilson, J.W. Elkins, R.M. Stimpfle, R.C. Cohen, C.T. McElroy, T.P. Bui, R.J. Salawitch, S.S. Brown, A.R. Ravishankara, R.W. Portmann, M.K.W. Ko, D.K. Weisenstein and, P.A. Newman, *A comparison of observations and model simulations of NO<sub>x</sub>/NO<sub>y</sub> in the lower stratosphere*, Geophys. Res. Lett., 26, 1153-1156, 1999.
- Godin S., G. Mégie and J. Pelon, *Systematic lidar measurements of the stratospheric ozone vertical distribution*, Geophys. Res. Lett. 16, 537-550, 1989.
- Goody R.M. and Y.L. Yung, *Atmospheric Radiation*, 2nd Ed., Oxford, United Kingdom, 1995.
- Gurlit W., H. Bosch, H. Bovensmann, J.P. Burrows, A. Butz, C. Camy-Peyret, M. Dorf, K. Gerilowski, A. Lindner, S. Noel, U. Platt, F. Weidner and K. Pfeilsticker, *The UV-A and visible solar irradiance spectrum: inter-comparison of absolutely calibrated, spectrally medium resolution solar irradiance spectra from balloon- and satellite-borne measurements*, Atmos. Chem. Phys., 5, 1879-1890, 2005
- Hall, B.D, J.H. Butler, A.D. Clarke, G.S. Dutton, J.W. Elkins, D.F. Hurst, D.B. King, E.S. Kline, J. Lind, L.T. Lock, D. Mondeel, S.A. Montzka, F.L. Moore, J.D. Nance, E.A. Ray, P.A. Romashkin and T.M. Thompson, *Halocarbons and other atmospheric traces species in Climate Monitoring and Diagnostics Laboratory CMDL No. 26 Summary Report 2000-2001*, edited by D.B. King, R.C. Schnell, R.M. Rosson, and C. Sweet, pp. 106-135, NOAA Oceanic and Atmos. Res., Boulder, CO, 2002.
- Hawat T., C. Camy-Peyret, P. Jeseck, R. Torguet, *Description and performances of a ballon-borne heliostat for solar absorption measurements*. 12<sup>th</sup> ESA Symposium, European Rocket and Balloon Programmes and Related Research, Lillehamer, 29 mai-1 juin 1995
- Hawat T., R. Torguet, C. Camy-Peyret, P. Jeseck, and S. Payan, *The pointing and the sun-tracker system for the LPMA gondola.*, SPIE, 2739, 112-119, 1996.
- Hobbs P.V., *Introduction to atmospheric chemistry*, Cambridge University Press, 262 pages, 2000.
- Irie H., Y. Kondo, M. Koike, M.Y. Danilin, C. Camy-Peyret, S. Payan, J.P. Pommerau, F. Goutail, H. Oelhaf, G. Wetzel, G.C. Toon, B. Sen, R.M. Bevilacqua, J.M. Russell III, J.B. Renard, H. Kanawa, H. Nakajima, T. Yokota, T. Sugita and Y. Sasano, *Validation of NO<sub>2</sub> and HNO<sub>3</sub> measurements from the Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) with the version 5.20 retrieval algorithm*. J. Geophys. Res., 107, D24, 8206, 2002 (doi:10.1029/2001JD001304)
- Jacobson, M.Z., *Fundamentals of atmospheric modeling*, Cambridge University Press, 2005.
- Jégou, F., J. de La Noë, A. Drouin, P. Ricaud, J. Urban, N. Schneider, E. Le Flochmoën, E. Dupuy, L. El Amraoui, Y. Planchais, D. P. Murtagh, N. Lautié, P. Eriksson, C. Jimenez, S. Brohede, J. Stegman, E. J. Llewellyn, S. Petelina, D. A. Degenstein, R. L. Gattinger, N. D. Lloyd, C. S. Haley, C. von Savigny, I. McDade, F. Goutail, A. Bazureau, S. Godin-Beekmann, J. -P. Pommereau, F. Lefèvre, C. Camy-Peyret, S. Payan, P. Gesek, G. Moreau, J. -B. Renard, C. Robert, V. Catoire, N. Huret, and K. Strong, *Comparison of ozone profiles measured by the Odin satellite instruments and ground-based, airborne, satellite experiments and*

- model computations*, Quadrennial Ozone Symposium, Kos, Greece, 1-8 June 2004, XXth in Proceedings, Zerefos C.S. (Ed.), 1, 119-120, 2004
- Jeseck P., Interférométrie de Fourier, sous ballon stratosphérique, en vue de la mesure à distance par spectroscopie infrarouge en absorption et à haute résolution spectrale, des constituants minoritaires de l'atmosphère terrestre, Thèse de l'université René Descartes, Paris 7, 1996.
- Keim C., M. Eremenko, J. Orphal, G. Dufour, J.-M. Flaud, M. Höpfner, A. Boynard, C. Clerbaux, S. Payan, T. August, P.-F. Coheur, D. Hurtmans, H. Claude, H. de Backer, H. Dier, B. Johnson, H. Kelder, T. Koide, B. Koiso, M. Lopez Bartolomeo, K. Lambkin, F. J. Schmidlin, J.R. Shearman and R. Stübi, *Tropospheric ozone from IASI: comparison of different inversion algorithms and validation with ozone sondes*, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 9, 11441-11479, 2009
- Kuentz Burchi C., *Les polluants atmosphériques. Approche toxicologique de l'évaluation des risques*. Thèse de Doctorat. Université Louis Pasteur de Strasbourg, 1996.
- Kurucz, R. L. and B. Bell, 1995, Kurucz CD-ROM No. 23, Cambridge Massachussets.  
<http://kurucz.harvard.edu/linelists.html>
- Lambert A., W.G. Read, N.J. Livesey, M.L. Santee, G.I. Manney, L. Froidevaux, D.L. Wu, M.J. Schwartz, H.C. Pumphrey, C. Jimenez, G.E. Nedoluha, R.E. Cofield, D.T. Cuddy, W.H. Daffer, B.J. Drouin, R.A. Fuller, R.F. Jarnot, B.W. Knosp, H.M. Pickett, V. Snyder, P.C. Stek, R.P. Thurstans, A. Wagner, J.W. Waters, K.W. Jucks, G.C. Toon, R.A. Stachnik, P.F. Bernath, K.A. Walker, J. Urban, D. Murtagh, J.W. Elkins and E. Atlas, *Validation of the Aura Microwave Limb Sounder middle atmosphere water vapor and nitrous oxide measurements*, J. Geophys. Res., 112, D24S36, 2007 (doi:10.1029/2007JD008724)
- Lefèvre F., G.P. Brasseur, I. Folkins, A.K. Smith and P. Simon, *Chemistry of the 1991-1992 stratospheric winter: three-dimensional model simulations*, J. Geophys. Res., 99, 8183-8195, 1994
- Lefèvre F., F. Figarol, K.S. Carslaw and T. Peter, *The 1997 Arctic ozone depletion quantified from three-dimensional model simulations.*, Geophys. Res. Lett., 25, 2425-2428, 1998
- Levelt P. and C. Camy-Peyret, *TRAQ – Tropospheric composition and Air Quality*, Proposal CCM2-18 in response to the Call for Earth Explorer Ideas, 2005
- Lillesand T.M., and R. Kiefer, *Remote Sensing and Image Interpretation* (3rd edition), Ed. John Wiley & Sons Inc. ISBN: 0-471-57783-9, 1994.
- Marengo A., H. Gouget, P. Nédelec, J.-P. Pagès and F. Karcher, *Evidence of a long-term increase in tropospheric ozone from Pic du Midi data series - consequences: positive radiative forcing*, J. Geophys. Res., 99, 16617-16632, 1994.
- McElroy, M. B. and J.C. McConnell, *Nitrous oxide: A natural source of stratospheric NO*, J. Atmos. Sci., 28, 1095-1098, 1971.
- McClatchey R.A., W.S. Benedict, S.A. Clough, D.E. Burch, R.F. Calfee, K. Fox, L.S. Rothman, and J.S. Garing, *AFCRL Atmospheric Absorption Line Parameters Compilation*, AFCRL-Technical Report-0096, 1973.
- McElroy, M.B., R.J. Salawitch and K. Minschwaner, *The changing stratosphere*, Planet. Space Sci., 40, 373-401, 1992.
- Meier A., *Spectroscopic atlas of atmospheric microwindows in the middle infra-red*, 2<sup>nd</sup> edition, IRF Technical Report 048, 2004.
- Michelsen, H.A., G.L. Manney, M.R. Gunson, and R. Zander, *Correlations of stratospheric abundances of NO<sub>y</sub>, O<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O, and CH<sub>4</sub> derived from ATMOS measurements*, J. Geophys. Res., 103, 28 347-28 359, 1998.
- Mondelain D., P. Chelin, A. Valentin, D. Hurtmans, C. Camy-Peyret, *Line profile study by diode laser spectroscopy in the <sup>12</sup>CH<sub>4</sub> v<sub>2</sub>+v<sub>4</sub> band*. J. Molec. Spectrosc. 233, 23-31, 2005  
(doi:10.1016/j.jms.2005.05.012)
- Mondelain D., S. Payan, W. Deng, C. Camy-Peyret, D. Hurtmans, A.W. Mantz, *Measurement of the temperature dependence of line mixing and pressure broadening parameters between 296 and 90 K in the v<sub>3</sub> band of <sup>12</sup>CH<sub>4</sub> and their influence on atmospheric methane retrievals*. J. Molec. Spectrosc. 244, 130-137, 2007  
(doi:10.1016/j.jms.2007.05.005)
- Mondelain D., C. Camy-Peyret, W. Deng, S. Payan, and A. W. Mantz, *Study of molecular line parameters down to very low temperature*, Appl. Phys. B 90, 227-233, 2008
- Mondelain D., S. Payan, W. Deng, C. Camy-Peyret, D. Hurtmans, and A. W. Mantz, *Measurement of the temperature dependence of line mixing and pressure broadening parameters between 296 and 90 K in the v<sub>3</sub> band of <sup>12</sup>CH<sub>4</sub> and their influence on atmospheric methane retrievals*, J. Molec. Spectrosc. 244, 130-137, 2007  
(doi:10.1016/j.jms.2007.05.005)
- Moreau G., C. Robert, V. Catoire, M. Chartier, C. Camy-Peyret, N. Huret, M. Pirre, L. Pomathiod and G. Chalumeau, *SPIRALE: a multispecies in situ balloon-borne instrument with six tunable diode laser spectrometers*. Appl. Optics, 44, 5972-5989, 2005



- Northway M.J., R S. Gao, P.J. Popp, J.C. Holecek, D.W. Fahey, K.S. Carslaw, M.A. Tolbert, L.R. Lait, S. Dhaniyala, R.C. Flagan, P.O. Wennberg, M.J. Mahoney, R.L. Herman, G.C. Toon, T.P. Bui., *An analysis of large HNO<sub>3</sub>-containing particules sampled in the Arctic stratosphere during the winter of 1999-2000*, J. Geophys. Res., *107*, D20, 8298, 2002 (doi:10.1029/2001JD001079).
- Murcray F.J., J.R. Starkey., W.J. Williams, W.A. Matthews, U. Schmidt, P. Amedieu, C. Camy-Peyret, *HNO<sub>3</sub> profiles obtained during the EASOE campaign*. Geophys. Res. Lett., *21*, 1223-1226, 1994
- Nakajima, N., T. Sugita, T. Yokota, T. Ishigaki, Y. Mogi, N. Araki, K. Waragai, N. Kimura, T. Iwazawa, A. Kuze, J. Tanii, H. Kawasaki, M. Horikawa, T. Togami, N. Uemura, H. Kobayashi, and Y. Sasano, *Characteristics and performance of the Improved Limb Atmospheric Spectrometer-II (ILAS-II) on board the ADEOS-II satellite*, J. Geophys. Res., *111*, D11S01, 2006 (doi:10.1029/2005JD006334)
- Niro F., F. Hase, C. Camy-Peyret, S. Payan, J.-M. Hartmann, *Spectra calculations in central and wing regions of CO<sub>2</sub> IR bands between 10 and 20 μm. II :Atmospheric solar occultation spectra*, J Quant Spectrosc; Radiat; Transfer, *90*, 43-59, 2005 (doi:10.1016/j.jqsrt.2004.04.004)
- Oelhaf H., T. Blumenstock, M. De Mazière, S. Mikuteit, C. Vigouroux, S. Wood, G. Bianchini, R. Baumann, C. Blom, U. Cortesi, G.Y. Liu, H. Schlager, C. Camy-Peyret, V. Catoire, M. Pirre, K. Strong, G. Wetzel, *Validation of MIPAS-ENVISAT version 4.61 HNO<sub>3</sub> operational DATA by stratospheric balloon, aircraft and ground-based measurements.* In ESA SP-562, 2004 (D. Danesy, ESA Pub. Div. Ed.), 30 (7p)
- Ogawa T., H. Shimod, M. Hayashi, R. Imasu, A. Ono, S. Nishinomiya, and H. Kobayashi, *IMG, interferometric measurement of greenhouse gases from space*, Adv. Space Res., *14*, 1, 25-28, 1994.
- Palchetti L., G.Bianchini, F.Castagnoli, B. Carli, C. Serio, F.Esposito, V.Cuomo, R.Rizzi, T. Maestri, *Breadboard of the Fourier transform spectrometer for the Radiation Explorer in the Far Infrared (REFIR) atmospheric mission*, Applied Optics, Vol.44, No.14, 2870-2878, 2005.
- Palchetti L., C. Belotti, G. Bianchini, F. Castagnoli, B. Carli, U. Cortesi, M. Pellegrini, C. Camy-Peyret, P. Jeseck and Y. Té, *Technical note: First spectral measurement of the Earth's upwelling emission using an uncooled wideband Fourier transform spectrometer*. Atmos. Chem. Phys. 2006, *6*, 5025-5030
- Park J.H., J.M. Russell III, L.L. Gordley, S.R. Drayson, D.C. Benner, J.M. McInerney, M.R. Gunson, G.C. Toon, B. Sen, J.-F. Blavier, C.R. Webster, E.C. Zipf, P. Erdman, U. Schmidt and C. Schiller, *Validation of Halogen Occultation Experiment CH<sub>4</sub> measurements from the UARS*, J. Geophys. Res., *101*, D6, 10,183-10,203, 1996.
- Pan, L.L., W.J. Randel, H. Nakajima, S.T. Massie, H. Kanzawa, Y.Sasano Y., Yokota T., Sugita T., Hayashida S., and Oshchepkov S., *Satellite observation of dehydration in the Arctic Polar stratosphere*, Geophys. Res. Lett., *29*, 1184, 2002 (doi:10.1029/2001GL014147)
- Payan S., *Restitution de profils verticaux de concentration des constituants minoritaires de la stratosphère à partir de spectres infrarouges à haute résolution enregistrés sous ballon*, Thèse de l'université Pierre et Marie Curie, Paris 6, 1996.
- Payan S., C. Camy-Peyret, P. Jeseck, T. Hawat, G. Durry and F. Lefèvre, *First direct simultaneous HCl and ClONO<sub>2</sub> Profile measurements in the Arctic vortex*, Geophys. Res. Lett., *25*, 2663-2666, 1998a.
- Payan S., C. Camy-Peyret and P. Jeseck, *IMG instrument spectral response function and retrieval of CO and OCS*, 8th International Workshop on Atmospheric Science from Space using Fourier Transform Spectrometry, Toulouse, France, 16-18 November 1998b.
- Payan S., C. Camy-Peyret, P. Jeseck, T. Hawat, M. Pirre, J.B. Renard, C. Robert, F. Lefèvre, H. Kanzawa and Y. Sasano, *Diurnal and nocturnal distribution of stratospheric NO<sub>2</sub> from solar and stellar occultation measurements in the Arctic measurements*. J. Geophys. Res., *104*, 21585-21593, 1999.
- Payan S., J. De La Noë, A. Hauchecorne and C. Camy-Peyret, *A revue of remote sensing techniques and associated spectroscopy problems*, C. R. Physique, *6*, 825-835, 2005.
- Payan S., C. Camy-Peyret, H. Oelhaf, G. Wetzel, G. Maucher, C. Keim, M. Pirre, N. Huret, A. Engel, M. C. Volk, H. Kuellmann, J. Kuttippurath, U. Cortesi, G. Bianchini, F. Mencaraglia, P. Raspollini, G. Redaelli, C. Vigouroux, M. De Mazière, S. Mikuteit, T. Blumenstock, V. Velazco, J. Notholt, M. Mahieu, P. Duchatelet, D. Smale, S. Wood, N. Jones, C. Piccolo, V. Payne, A. Bracher, N. Glatthor, G. Stiller, K. Grunow, P. Jeseck, Y. Te, K. Pfeilsticker, and A. Butz, *Validation and data characteristics of methane and nitrous oxide profiles observed by MIPAS and processed with Version 4.61 algorithm*, Atmos. Chem. Phys. Discuss., *7*, 18043-18111, 2007
- Payan S., *Cours de transfert radiatif, École thématique CNRS SPECATMO "de la SPECTroscopie à l'ATMOsphère: Mesures et modèles"*, Ile de Ré, France, 9-12 juin 2009a.

- Payan S., *Cours sur les algorithmes d'inversion, École thématique CNRS SPECTATMO "de la SPECTroscopie à l'ATMOsphère: Mesures et modèles"*, Ile de Ré, France, 9-12 juin 2009b.
- Perliski L.M., S. Solomon, J. London, *On the interpretation of seasonal variations of stratospheric ozone*, *Plant. Space Sci.*, **37**, 1527-1538, 1989.
- Pfeilsticker K., W. T. Sturges, H. Bösch, C. Camy-Peyret, M. P. Chipperfield, A. Engel, R. Fitzenberger, M. Müller, S. Payan and B.-M. Sinnhuber, *Lower stratospheric organic and inorganic bromine budget for the Arctic winter 1998/99*, *Geophys. Res. Lett.*, **27**, 3305-3308, 2000.
- Portman R.W., S. Solomon, R.R. Garcia, L.W. Thomason, L.R. Poole and M.P. McCormick, *Role of aerosol variations in anthropogenic ozone depletion in the polar regions*, *J. Geophys. Res.*, **101**, D17, 22991-23006, 1996.
- Poynter R.L. and H.M. Pickett, *Submillimeter, millimeter, and microwave spectral line catalog*, *Appl. Opt.* **24**, 2235-2240, 1985.
- Prinn R. G., R. F. Weiss, P. J. Fraser, P. G. Simmonds, D. M. Cunnold, F. N. Alyea, S. O'Doherty, P. Salameh, B. R. Miller, J. Huang, R. H. J. Wang, D. E. Hartley, C. Harth, L. P. Steele, G. Sturrock, P. M. Midgley and A. McCulloch, *A history of chemically and radiatively important gases in air deduced from ALE/GAGE/AGAGE*, *J. Geophys. Res.*, **105**, 17751-17792, 2000.
- Rayner, P.J. and D.M. O'Brien, *The utility of remotely sensed CO<sub>2</sub> concentration data in surface source inversions*, *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 175-178, 2001.
- Razavi A., C. Clerbaux, C. Wespes, L. Clariss, D. Hurtmans, S. Payan, C. Camy-Peyret and P. F. Coheur, *Characterization of methane retrievals from the IASI space-borne sounder*, Submitted to *Atmos. Chem. Phys.*, 2009
- Ricaud, P.; Lefèvre, F.; Berthet, G.; Murtagh, D.; Llewellyn, E. J.; Mégie, G.; Kyrölä, E.; Leppelmeier, G. W.; Auvinen, H.; Boone, C.; Brohede, S.; Degenstein, D. A.; de La Noë, J.; Dupuy, E.; El Amraoui, L.; Eriksson, P.; Evans, W. F. J.; Frisk, U.; Gattinger, R. L.; Girod, F.; Haley, C. S.; Hassinen, S.; Hauchecorne, A.; Jimenez, C.; Kyrö, E.; Lautié, N.; Le Flochmoën, E.; Lloyd, N. D.; McConnell, J. C.; McDade, I. C.; Nordh, L.; Olberg, M.; Pazmino, A.; Petelina, S. V.; Sandqvist, A.; Seppälä, A.; Sioris, C. E.; Solheim, B. H.; Stegman, J.; Strong, K.; Taalas, P.; Urban, J.; von Savigny, C.; von Scheele, F.; Witt, G., *Polar vortex evolution during the 2002 Antarctic major warming as observed by the Odin satellite*, *J. Geophys. Res.*, **110**, D05302, 2005 (doi:10.1029/2002JD005018)
- Rodgers C.D., *Inverse methods for atmospheric sounding. Theory and practice*, Singapour : World Scientific Publishing Company, 2000, 200 p.
- Romanov S.V., C. Camy-Peyret and S. Payan, *Co column amount retrieval from IMG spectra using temperature and ozone regressions*, *Geophysical Research from space*, N°3, 1-7, 2002.
- Rothman L. S., N. Jacquinet-Husson, C. Boulet and A.M. Perrin, *History and future of the molecular spectroscopic databases*, *C. R. Physique*, **6**, 815-816, 2005a.
- Rothman L.S., D. Jacquemart, A. Barbe, D. Chris Benner, M. Birk, L.R. Brown, M.R. Carleer, C. Chackerian Jr., K. Chance, L.H. Coudert, V. Dana, V.M. Devi, J.-M. Flaud, R.R. Gamache, A. Goldman, J.-M. Hartmann, K.W. Jucks, A.G. Maki, J.-Y. Mandin, S.T. Massie, J. Orphal, A. Perrin, C.P. Rinsland, M.A.H. Smith, J. Tennyson, R.N. Tolchenov, R.A. Toth, J. Vander Auwera, P. Varanasi and G. Wagner, *The HITRAN 2004 molecular spectroscopic database*, *Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **96**, 139-204, 2005b.
- Rothman L.S., I.E. Gordon, A. Barbe, D. Chris Benner, P.F. Bernath, M. Birk, V. Boudon, L.R. Brown, A. Campargue, J.-P. Champion, K. Chance, L.H. Coudert, V. Dana, V.M. Devi, S. Fally, J.-M. Flaud, R.R. Gamache, A. Goldman, D. Jacquemart, I. Kleiner, N. Lacome, W.J. Lafferty, J.-Y. Mandin, S.T. Massie, S.N. Mikhailenko, C.E. Miller, N. Moazzen-Ahmadi, O.V. Naumenko, A.V. Nikitin, J. Orphal, V.I. Perevalov, A. Perrin, A. Predoi-Cross, C.P. Rinsland, M. Rotger, M. Simeckova, M.A.H. Smith, K. Sung, S.A. Tashkun, J. Tennyson, R.A. Toth, A.C. Vandaele, J. Vander Auwera, *The HITRAN 2008 molecular spectroscopic database*, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **110**, 533-572, 2009.
- Salawitch, R.J., S.C. Wofsy, P.O. Wennberg, R.C. Cohen, J.G. Anderson, D.W. Fahey, R.S. Gao, E.R. Keim, E.L. Woodbridge, R.M. Stimpfle, J.P. Koplów, D.W. Kohn, C.R. Webster, R.D. May, L. Pfister, E.W. Gottlieb, H.A. Michelsen, G.K. Yue, J.C. Wilson, C.A. Brock, H.H. Jonsson, J.E. Dye, D. Baumgardner, M.H. Proffitt, M. Loewenstein, J.R. Podolske, J.W. Elkins, G.S. Dutton, E.J. Hints, A.E. Dessler, E.M. Weinstock, K.K. Kelly, K.A. Boering, B.C. Daube, K.R. Chan, and S.W. Bowen, *The distribution of hydrogen, nitrogen, and chlorine radicals in the lower stratosphere: Implications for changes in O<sub>3</sub> due to emission of NO<sub>y</sub> from supersonic aircraft*, *Geophys. Res. Lett.*, **21**, 2547, 1994.
- Salawitch R.J., D.K. Weisenstein, L.J. Kovalenko, C.E. Sioris, P.O. Wennberg, K. Chance, M.K.W.

- Ko, C.A. McLinden, *Sensitivity of ozone to bromine in the lower stratosphere*, Geophys. Res. Lett., *32*, L05811, 2005 (doi:10.1029/2004GL021504)
- Santee M.L., G.L. Manney, L. Froidevaux, W.G. Read, J.W. Waters, *Six years of UARS microwave limb sounder HNO<sub>3</sub> observations : seasonal, interhemispheric and interannual variations in the lower stratosphere*, J. Geophys. Res., *104*, D7, 8225, 1999.
- Sasano, Y., M. Suzuki, T. Yokota and H. Kanzawa, *Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) for stratospheric ozone layer measurements by solar occultation technique*, Geophys. Res. Lett., *26*, 197-200, 1999
- Scientific Assessment of Ozone Depletion, World Meteorological Organization (WMO), Report *44*, 1998.
- Scientific Assessment of Ozone Depletion, World Meteorological Organization (WMO), Report *47*, 2002.
- Scientific Assessment of Ozone Depletion, World Meteorological Organization (WMO), Report *50*, 2007.
- Sen, B., G.C. Toon, G.B. Osterman, J.-F. Blavier, J.J. Margitan, R.J. Salawitch and G.K. Yue, *Measurements of reactive nitrogen in the stratosphere*, J. Geophys. Res., *103*, 3571-3585, 1998.
- Siméoni D. and C. Singer, *Infrared Atmospheric Sounding Interferometer*, Acta Astronautica, *40*, 113-118, 1997
- Solomon, S., R.R. Garcia, F.S. Rowland and D.J. Wuebbles, *On the depletion of the Antarctic ozone*, Nature, *321*, 755-758, 1986.
- SPARC report N°4, *Assessment of Stratospheric Aerosols Properties*, WCRP124, WMO/TD N°1295, 2006.
- Stowasser M., H. Oelhaf, R. Ruhnke, G. Wetzell, F. Friedl-Vallon, A. Kleinert, W. Kouker, A. Lengel, G. Maucher, H. Nordmeyer, Th. Reddmann, O. Trieschmann, T. v. Clarmann, H. Fischer, M. P. Chipperfield, *A characterization of the warm 1999 Arctic winter by observations and modeling: NO<sub>y</sub> partitioning and dynamics*, J. Geophys. Res., *107*, 4376, 2002, (doi:10.1029/2001JD001217).
- Sussmann R., W. Stremme, J. P. Burrows, A. Richter, W. Seiler, and M. Rettinger, *Stratospheric and tropospheric NO<sub>2</sub> variability on the diurnal and annual scale: a combined retrieval from ENVISAT/SCIAMACHY and solar FTIR at the Permanent Ground-Truthing Facility Zugspitze/Garmisch*, Atmos. Chem. Phys., *5*, 2657–2677, 2005.
- Sussmann R., T. Borsdorff, M. Rettinger, C. Camy-Peyret, P. Demoulin, P. Duchatelet, E. Mahieu, and C. Servais, *Technical Note: New trends in column-integrated atmospheric water vapor – Method to harmonize and match long-term records from the FTIR network to radiosonde characteristics*, Atmos. Chem. Phys. Discuss., *9*, 13199–13233, 2009.
- Tabazadeh A., M.L. Santee., M.Y. Danilin, H.C. Pumphrey, P.A. Newman, P.J. Hamill and J.L. Mergenthaler, *Quantifying denitrification and its effect on ozone recovery*, Science, *288*, 1407-1411, 2000.
- Té Y., *Spectroradiométrie par Transformée de Fourier sous ballon stratosphérique pour l'étude du système atmosphère/surface/nuages par visée au nadir*, Thèse de l'université Pierre et Marie Curie, Paris 6, 2001.
- Té Y., P. Jeseck, C. Camy-Peyret, S. Payan, G. Perron and G. Aubertin, *LPMA/IASI balloon : a new calibrated nadir sounder*, Applied Optics, *41*, 6431-6441, 2002
- Té Y., S. Payan, P. Jeseck, V. Ferreira, G. Dufour, A. Butz, K. Pfeilsticker, M. Dorf, F.F. Weidner and C. Camy-Peyret, *Results obtained during recent flights of the LPMA balloon experiment and contribution to the Envisat validation*. In ESA SP-590, 209-217, 2005
- Té Y., S. Payan, P. Jeseck, J. Bureau and C. Camy-Peyret, "Recent results obtained with the IASI-balloon experiment and contribution to the calibration/validation of IASI on MetOp." To be published in In ESA, SP-647, 2007
- Té Y., P. Jeseck, S. Payan, I. Pépin and C. Camy-Peyret, *The Fourier transform spectrometer of the QualAir platform*, 8th Atmospheric Spectroscopy Applications Proceedings, 6-9, 2008
- Tilmes S., R. Müller, R.J. Salawitch, U. Schmidt, C.R. Webster, H. Oelhaf, J.M. Russell III and C. Camy-Peyret, *Chemical ozone loss in the Arctic winter 1991-1992*, Atmos. Chem. Phys. Discuss., *7*, 10097-10129, 2007
- Tjemkes St.A., T. Patterson, R. Rizzi, M. W. Shephard, S. A. Clough, M. Matricardi, J. Haigh, M. Höpfner, S. Payan, A. Trotsenko, N. Scott, P. Rayer, J. Taylor, C. Clerbaux, L. L. Strow, S. DeSouza-Machado, D. Tobin, and R. Knuteson, *The ISSWG Line-by-line Intercomparison Experiment*, J. Quant. Spec. and Radiat. Transfer, *77*, 433-453, 2003
- Tran H., P.-M. Flaud, T. Gabard, F. Hase, T. von Clarmann, C. Camy-Peyret, S. Payan and J.-M. Hartmann; *Model, software, and database for line-mixing effects in the ν<sub>3</sub> and ν<sub>4</sub> bands of CH<sub>4</sub> and tests using laboratory and planetary measurements. I. N<sub>2</sub> (and air) broadenings and the Earth*

- atmosphere*, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, *101*, 284-305, 2006 (doi:10.1016/j.jqsrt.2005.11.020)
- Turquety, S., J. Hadji-Lazaro, C. Clerbaux, D. A. Hauglustaine, S. A. Clough, V. Cassé, P. Shlüssel, and G. Mégie, *Operational trace gas retrieval algorithm for the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer*, Journal of Geophysical Research, *109*, D21301, 10.1029/2004JD00482, 2004.
- Urban J., N. Lauté, E. Le Flochmoën, C. Jiménez, P. Eriksson, J. de La Noë, E. Dupuy, L. El Amraoui, U. Frisk, F. Jégou, D. Murtagh, M. Olberg, P. Ricaud, C. Camy-Peyret, G. Dufour, S. Payan, N. Huret, M. Pirre, A.D. Robinson, N.R.P. Harris, H. Bremer, A. Kleinböhl, K. Kullmann, K. Künzi, J. Kuttippurath, M. Ejiri, H. Nakajima, Y. Sasano, T. Sugita, T. Yokota, C. Piccolo, P. Raspollini, M. Ridolfi, *Odin/SMR Limb Observations of Stratospheric Trace Gases: Validation of N<sub>2</sub>O*, J. Geophys. Res., *110*, D09301, 2005 (doi:10.1029/2004JD005394)
- Van den Broek, M.M.P., A. Bregman, and J. Lelieveld, *Model study of stratospheric chlorine activation and ozone loss during the 1996/1997 winter*, J. Geophys. Res., *105*, D23, pp. 28,961-28,977, 2000.
- Waugh, D.W., *Subtropical stratospheric mixing linked to disturbances to polar vortices*, Nature, *365*,535-537, 1993
- Waugh D. W., R. A. Plumb, J. W. Elkins, D. W. Fahey, K. A. Boering, G. S. Dutton, C. M. Volk, E. Keim, R.-S. Gao, B. C. Daube, S. C. Wofsy, M. Loewenstein, J. R. Podolske, K. R. Chan, M. H. Proffitt, K. K. Kelly, P. A. Newman and L. R. Lait, *Mixing of polar vortex air into middle latitudes as revealed by tracer-tracer scatterplots*, J. Geophys. Res., *102*, 13,119-13,134, 1997.
- Weidner F., H. Bösch, H. Bovensmann, J.P. Burrows, A. Butz A., C. Camy-Peyret, M. Dorf, K. Gerilowski, W. Gurlit, U. Platt, C. von Friedeburg , T. Wagner and K. Pfeilsticker, *Balloon-borne limb profiling of UV/vis skylight radiances, O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub>, and BrO: technical set-up and validation of the method*. Atmos. Chem. Phys., 2005, *5*, 1409-1422
- Wennberg, P.O., J.G. Anderson, D.K. Weisenstein, *Kinetics of reactions of ground state nitrogen atoms (4S3/2) with NO and NO<sub>2</sub>*, J. Geophys. Res., *99*, 18839-18846, 10.1029/94JD01823, 1994.
- Wetzel, G., H. Oelhaf, R. Ruhnke, F. Friedl-Vallon, A. Kleinert, W. Kouker, G. Maucher, T. Reddmann, M. Seefeldner, M. Stowasser, O. Trieschmann, T. Von Clarmann and H. Fischer, *NO<sub>y</sub> partitioning and budget and its correlation with N<sub>2</sub>O in the Arctic vortex and in summer midlatitudes in 1997*, J. Geophys. Res., *107*, 2002 (doi:10.1029/2001JD000916)
- Williams W.J., P. Fogal, P. Sullivan, C. Camy-Peyret, *Nitric acid observations during Arctic winter*. Air pollution-research report 56, Polar stratospheric ozone, Eds J.A. Pyle, N.R.P. Harris and G.T. Amanatidis, 179-182 (1996)
- Wursteisen P., *The validation of ENVISAT Chemistry instruments by use of stratospheric balloon and aircraft*, Proceedings of ENVISAT validation Workshop, Frascati, 9-13 December 2002, ESA SP-531, August 2003.