



UNIVERSITÉ LIBRE DE BRUXELLES
FACULTÉ DES SCIENCES



Identification des intrusions stratosphériques et quantification de leur impact sur l’ozone dans la troposphère des latitudes subtropicales à polaires, à partir des mesures satellitaires IASI

Pauline WILLAME

Travail de fin d’études en vue de
l’obtention du grade de master en Sciences
chimiques à finalité spécialisée

Promoteur : Pierre-François COHEUR

Co-promotrice : Catherine WESPES

Année académique 2020 – 2021

A insérer dans le mémoire, directement à la suite de la première page de couverture.

CONSULTATION DU MEMOIRE

Je soussigné-e

NOM :

WILLAME

PRENOM :

PAULINE

TITRE DU MEMOIRE :

Identification des intrusions stratosphériques et quantification de leur impact sur l'ozone dans la troposphère des latitudes subtropicales à polaires, à partir des mesures satellitaires IASI

AUTORISE

la consultation du présent mémoire par les utilisateurs des bibliothèques
de l'Université libre de Bruxelles.

Si la consultation est autorisée, le/la soussigné-e concède par la présente à l'Université libre de Bruxelles, pour toute la durée légale de protection de l'œuvre, une licence gratuite et non exclusive de reproduction et de communication au public de son œuvre précisée ci-dessus, sur supports graphiques ou électroniques, afin d'en permettre la consultation par les utilisateurs des bibliothèques de l'ULB et d'autres institutions dans les limites du prêt inter-bibliothèques.

Fait en deux exemplaires, à Bruxelles, le 04/06/2021



Signature

Résumé

L'ozone (O_3) est un gaz oxydant réactif présent à l'état de trace dans l'atmosphère. Dans la troposphère, l'ozone est un gaz secondaire formé principalement par des réactions photochimiques impliquant les polluants primaires (e.g., le méthane). En plus de cette source photochimique, le transport des masses d'air riches en ozone stratosphérique vers la troposphère (communément appelé transport stratosphère-troposphère STT ou intrusions stratosphériques) induit une source dynamique de l'ozone. Cette contribution à l'ozone troposphérique est importante mais sa quantification précise est difficile.

Le but de ce travail consiste à la détection, à la caractérisation et à la quantification des intrusions de l'ozone stratosphérique dans les moyennes et hautes latitudes de la troposphère à l'aide des mesures effectuées par l'instrument IASI sur une période s'étendant de 2008 à 2020. IASI est un spectromètre infrarouge à transformée de Fourier embarqué à bord du satellite MetOp qui fournit d'excellentes informations sur la variabilité spatiale et temporelle de l'ozone en utilisant un modèle de transfert radiatif couplé à l'algorithme d'inversion FORLI. Une méthode de détection et de caractérisation des intrusions stratosphériques a été développée : elle repose sur l'application d'un filtre général qui combine différents critères de sélection. Ceux-ci s'appuient sur des valeurs distinctives de plusieurs variables, à savoir les mesures IASI des concentrations d' O_3 exprimées en VMR moyen dans la couche de 700 à 300 hPa, la hauteur de la tropopause, les réanalyses ERA5 à 300 hPa de la vorticité potentielle et du géopotential, ainsi que des anomalies de ces différentes variables. La caractérisation des profils verticaux d' O_3 dans les intrusions, la variabilité spatiale et temporelle des intrusions (en termes du nombre d'occurrence), leur influence sur l'ozone troposphérique ainsi que les tendances linéaires dans ces contributions stratosphériques ont été étudiées.

Abréviations et acronymes

AVHRR	Advanced Vary High Resolution Radiometer
CNES	Centre National d'Etudes Spatiales
COV	Composés Organiques Volatils
COVNM	Composés Organiques Volatils Non Méthaniques
DOFS	Degrees Of Freedom for Signal
DU	Dobson Unit (en français : unité Dobson)
ECMWF	European Center for Medium-Range Weather Forecasts (en français : CEPMMT Centre Européen pour la Prévision Météorologique Moyen Terme)
ENSO	El Niño-Southern Oscillation
ESA	European Space Agency (en français : ASE Agence Spatiale Européenne)
EUMETSAT	EUropean organization for the exploitation of METeorological SATellites
FORLI	Fast Optimal Retrievals on Layers for IASI
GEISA	Gestion et Etudes des Informations Spectroscopiques Atmosphériques
GEO	Géopotentiel
GOME	Global Ozone Monitoring Experiment
HITRAN	HIgh-resolution TRANsmission molecular absorption database
H.N.	Hémisphère Nord
H.S.	Hémisphère Sud
IASI	Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (en français : Interféromètre de Sondage Atmosphérique Infrarouge)
IPWP	Indo-Pacifique warm pool
IR	InfraRouge
LUT	Look-Up Tables
MAP	Maximum A Posteriori
MetOp	Météorologie Opérationnelle
MLS	Microwave Limb Sounder
NAO	Nord-Atlantic Oscillation
NEDT	Noise Equivalent Temperature Difference
OEM	Optimal Estimation Method
OMI	Ozone Monitoring Instrument

PDF	Probability Density Function
ppb	parties par milliard
ppm	parties par million
ppt	parties par trillion
PSC	Polar Stratospheric Clouds (en français : nuages stratosphériques polaires)
PV	Potential Vorticity
PVU	Potential Vorticity Units
STE	Stratosphere-Troposphere Exchange
STT	Stratosphere to Troposphere Transport (ou intrusions stratosphériques)
TIR	InfraRouge Thermique
TST	Troposphere to Stratosphere Transport
ULB	Université Libre de Bruxelles
UTLS	Upper Troposphere-Lower Stratosphere
UV	UltraViolet
VMR	Volume Mixing Ratio
WMO	World Meteorological Organization
ZCIT	Zone de Convergence InterTropicale

Table des matières

CHAPITRE 1 - INTRODUCTION	13
1.1 Structure et circulation générale de l'atmosphère terrestre.....	13
1.1.1 Composition et structure verticale de l'atmosphère.....	13
1.1.2 Dynamique atmosphérique.....	17
1.1.3 Circulation générale de la basse atmosphère.....	19
1.2 L'ozone dans l'atmosphère	23
1.2.1 Ozone troposphérique	23
1.2.2 Ozone stratosphérique	29
CHAPITRE 2 - ECHANGES STRATOSPHERE-TROPOSPHERE (STE).....	31
2.1 Les processus d'échanges stratosphère-troposphère (STE).....	31
2.1.1 STE dans les régions tropicales.....	32
2.1.2 STE aux latitudes moyennes	33
2.2 Climatologies des échanges stratosphère-troposphère	33
2.3 Cycles saisonniers des échanges stratosphère-troposphère	36
2.4 Impact du transport stratosphère-troposphère sur la chimie troposphérique	37
2.5 Futurs changements des échanges stratosphère-troposphère.....	38
CHAPITRE 3 - PRINCIPES DU RAYONNEMENT ET OBSERVATIONS SPATIALES DANS L'INFRAROUGE.....	39
3.1 Transfert radiatif	39
3.1.1 Interaction rayonnement-matière	39
3.1.2 Spectre de l'ozone dans l'infrarouge thermique.....	40
3.1.3 Emission du rayonnement	41
3.1.4 Equation du transfert radiatif dans l'infrarouge	42
3.2 Restitution des propriétés atmosphériques	43
3.2.1 Problème inverse	44
3.2.2 Méthode de l'estimation optimale.....	44
3.2.3 Caractéristiques et erreurs sur la mesure	46
3.3 Mission IASI/MetOp	47

3.3.1	Conception instrumentale et orbite	47
3.3.2	Caractéristiques de IASI.....	48
3.3.3	Le logiciel FORLI	50
CHAPITRE 4 - DETECTION, CARACTERISATION ET VARIATIONS SPATIO-TEMPORELLES DES INTRUSIONS D'OZONE STRATOSPHERIQUE PAR L'INSTRUMENT SATELLITAIRE IASI.....		51
4.1	Mesures d'ozone par IASI	52
4.2	Détection, caractérisation et quantification des intrusions stratosphériques	55
4.2.1	Variables utilisées et critères de sélection pour la détection des STT.....	56
4.2.2	Cas d'études utilisés pour l'établissement des critères de sélection	59
4.2.3	Application des critères de sélection des STT à l'échelle globale sur la période d'étude (2008-2020).....	69
4.2.4	Evaluation des critères de sélection	70
4.2.5	Caractérisation des profils verticaux d'O ₃ dans les intrusions.....	71
4.3	Distributions spatio-temporelles des intrusions stratosphériques et de leur influence sur l'O ₃ troposphérique mesuré par IASI	75
4.3.1	Occurrence des STT détectés sur la période d'étude (2008-2020)	75
4.3.2	Influence des STT sur l'ozone troposphérique moyen entre 700-300 hPa sur la période d'étude (2008-2020).....	79
4.4	Conclusions.....	83
CHAPITRE 5 - CONCLUSIONS GENERALES ET PERSPECTIVES.....		85
BIBLIOGRAPHIE.....		89

Chapitre 1

Introduction

Dans ce premier chapitre, nous décrivons la composition et la dynamique de l'atmosphère avec en particulier, la circulation générale. Un aperçu de la chimie de l'ozone atmosphérique, l'espèce au centre de ce travail, est également présenté. Les éléments exposés dans ce chapitre ont été principalement extraits de Jacob (1999), de Mohanakumar (2008), de Delmas & Mégie (2015) et de Seinfeld & Pandis (2016).

1.1 Structure et circulation générale de l'atmosphère terrestre

1.1.1 Composition et structure verticale de l'atmosphère

Composition de l'atmosphère

L'atmosphère est une enveloppe entourant la Terre qui a considérablement évolué au cours du temps. L'atmosphère actuelle est composée principalement des gaz permanents suivants (figure 1.1) : le diazote N_2 (~ 78 %), le dioxygène O_2 (~ 21 %) et l'argon Ar (~ 1 %). Parmi les espèces de concentrations variables, on retrouve principalement dans la basse atmosphère la vapeur d'eau H_2O (~ 0-4 %). En raison de cette variabilité, il est d'usage d'exprimer les concentrations des différents constituants atmosphériques par rapport à l'air sec. Outre ces composés, les gaz en traces (< 1 %) s'ajoutent à la composition de l'atmosphère tels que le dioxyde de carbone (CO_2), le monoxyde de carbone (CO), le méthane (CH_4), le protoxyde d'azote (N_2O), le dioxyde d'azote (NO_2), l'ozone (O_3), etc. Malgré leur faible concentration, ces gaz jouent un rôle important dans l'équilibre radiatif de la Terre, dans les propriétés chimiques de l'atmosphère et d'autres problèmes environnementaux.

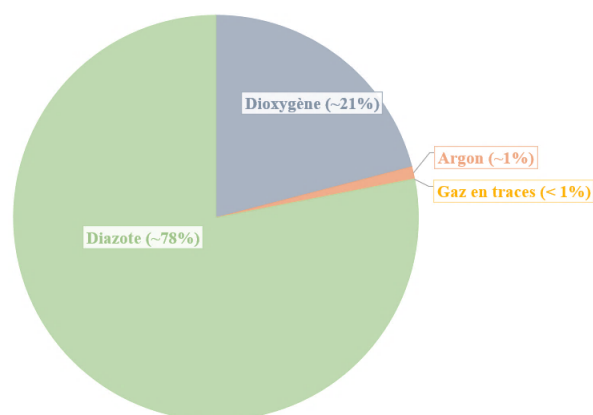


Fig. 1.1 - Composition de l'atmosphère exprimée en pourcentage par volume par rapport à l'air sec.

La distribution des espèces dans l'atmosphère dépend de leur durée de vie (temps moyen qu'un gaz réside dans l'atmosphère avant son élimination ou sa conversion). Les gaz de longue durée de vie (plusieurs années), tels que le CO_2 , le N_2O , le CH_4 , etc., se répartissent de manière homogène à l'échelle du globe. Les constituants de courte durée de vie (quelques heures à

quelques mois), tels que l'O₃, le CO, etc., sont réactifs dans la chimie troposphérique et présentent des variations spatio-temporelles (figure 1.2) qui peuvent être significatives. Le temps de vie et les concentrations de ces espèces sont généralement régulés par la capacité oxydante de l'atmosphère (liée au radical hydroxyle, OH).

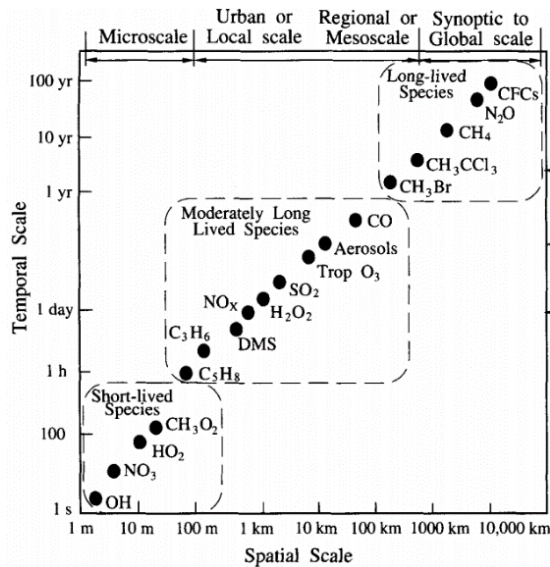


Fig. 1.2 - Les échelles spatiales et temporelles de la variabilité des constituants atmosphériques (Seinfeld & Pandis, 2016).

Quantités atmosphériques

Afin de décrire la composition chimique de l'atmosphère et pour quantifier l'abondance des gaz atmosphériques, deux unités de mesures sont couramment utilisées : la densité moléculaire et le rapport de mélange.

La densité moléculaire d'un gaz est le nombre de molécules du gaz par unité de volume d'air sec. Typiquement, les unités sont exprimées en nombre de molécules du gaz par cm³ d'air (molécules.cm⁻³). L'intégration de la densité moléculaire sur toute la hauteur atmosphérique définit la colonne totale du gaz tandis que l'intégration entre deux altitudes définies correspond à la colonne partielle. Les unités de la colonne sont exprimées en molécules par cm² ou en unités Dobson (DU, où 1 DU = 2,69.10¹⁶ molécules.cm⁻²).

Le rapport de mélange d'un gaz (VMR, Volume Mixing Ratio) est défini comme le rapport du nombre de mole du gaz et du nombre de mole de l'air sec dans un même volume. Il s'exprime selon trois unités : parties par million en volume (ppmv, ou ppm, 1 ppm = 10⁻⁶ mol/mol), parties par milliard en volume (ppbv ou ppb, 1 ppb = 10⁻⁹ mol/mol) et parties par trillion en volume (1 ppt = 10⁻¹² mol/mol).

Structure verticale de l'atmosphère

L'atmosphère peut être divisée en plusieurs couches horizontales en fonction des changements de température et de pression à diverses altitudes. Ces deux paramètres sont importants pour caractériser les masses d'air dans l'atmosphère.

- **Température**

Les principales couches de l'atmosphère sont définies selon le gradient vertical de la température et sont séparées par des couches de transitions. La distribution verticale de la température dans l'atmosphère terrestre est illustrée à la figure 1.3 (a).

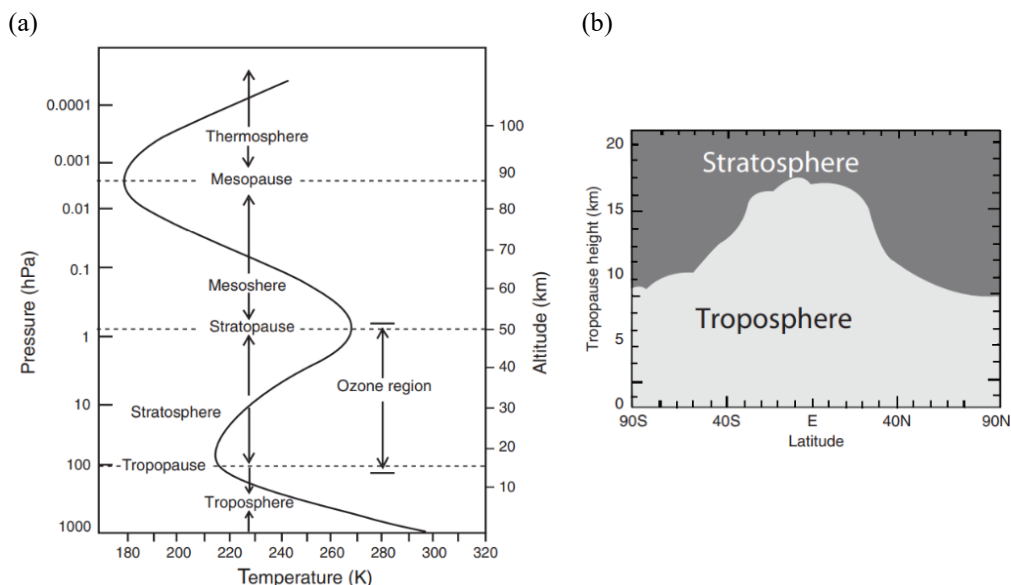


Fig. 1.3 - (a) Distribution verticale de la température dans l'atmosphère terrestre ; (b) Variation de la hauteur de la tropopause en fonction de la latitude (Mohanakumar, 2008).

La troposphère est la région la plus basse de l'atmosphère qui s'étend de la surface de la Terre jusque 8-18 kilomètres d'altitude (selon la latitude et la période de l'année). Il s'agit de la couche la plus dense de l'atmosphère où la température diminue avec l'altitude et le mélange vertical des parcelles d'air, caractérisé par des courants d'air convectifs vigoureux, est rapide. La limite supérieure de la troposphère est la tropopause. C'est la couche de transition qui sépare la troposphère de la stratosphère. D'après la convention de la World Meteorological Organization (WMO), la tropopause thermique est définie comme la couche la plus basse caractérisée par un gradient de température qui décroît de 2 Kelvin par km ou moins sur au moins 2 km. D'autres définitions de la tropopause existent telle que celle de la tropopause dynamique par exemple (section 1.1.2). La hauteur de la tropopause varie au niveau des pôles (7 à 10 km) et de l'équateur (16 à 18 km) en fonction de la latitude et des saisons (figure 1.3, b).

La stratosphère s'étend de la tropopause à la stratopause située à environ 45 à 55 km d'altitude. La température dans cette couche atmosphérique augmente avec l'altitude et entraîne un mélange vertical lent. La teneur en ozone est importante dans la stratosphère. En effet, cette région est celle de la production d'ozone qui joue un rôle majeur dans la régulation de la température stratosphérique (section 1.2.2).

Au-dessus de la stratopause se trouvent la mésosphère et la thermosphère qui sont caractérisées par une diminution et une augmentation des températures avec l'altitude.

- **Pression**

La pression de l'air varie considérablement en fonction de l'altitude (z) dans l'atmosphère. En raison de l'attraction gravitationnelle, l'atmosphère exerce une force descendante sur la surface de la Terre. Cette force par unité de volume d'air due au poids de l'atmosphère peut être exprimée comme,

$$F = \rho g \quad (1.1)$$

Avec g la force d'accélération due à la gravité (m.s^{-2}) et ρ la densité de l'air (kg.m^{-3}) qui représente la masse des molécules d'air par unité de volume. L'intégration de l'équation (1.1) de la surface terrestre au sommet de l'atmosphère correspond à la pression atmosphérique, P (en pascal, Pa où $1 \text{ Pa} = 1 \text{ kg.m}^{-1}.\text{s}^{-2}$), à la surface de la Terre,

$$P = \int_0^{\infty} \rho g dz = g_0 \frac{M_{\text{tot}}}{4\pi R_E^2} \quad (1.2)$$

Avec g_0 l'accélération gravitationnelle moyenne au niveau de la mer (m.s^{-2}), M_{tot} la masse totale de l'atmosphère (kg) et R_E le rayon terrestre moyen (km).

L'atmosphère subit également une force de gradient de pression ascendante. L'équation hydrostatique définit l'état de l'atmosphère lorsqu'il n'y a pas de mouvements atmosphériques et qu'il y a un équilibre entre la force de gravité et la force du gradient de pression :

$$dP = -\rho g dz \quad (1.3)$$

Pour un gaz idéal,

$$\rho = \frac{P M_a}{R T} \quad (1.4)$$

Avec M_a la masse molaire de l'air (kg.mol^{-1}), R la constante des gaz parfaits ($\text{J.mol}^{-1}.\text{K}^{-1}$) et T la température (K). En réarrangeant l'équation (1.3) et en utilisant l'équation (1.4), on obtient,

$$\frac{dP}{P} = -\frac{M_a g}{R T} dz \quad (1.5)$$

En faisant l'hypothèse que la température est constante avec l'altitude et en intégrant,

$$\ln P(z) - \ln P(0) = -\frac{M_a g}{R T} z \quad (1.6)$$

Ce qui permet d'écrire la loi barométrique,

$$P(z) = P(0) e^{-\frac{z}{H}} \quad \text{avec} \quad H = \frac{R T}{M_a g} \quad (1.7)$$

Avec $P(z)$ la pression à la hauteur z au-dessus du niveau de la mer et $P(0)$ la pression au niveau du sol ($z = 0$). H correspond à la hauteur d'échelle de l'atmosphère (en km) ; elle représente l'élévation qui correspond à une diminution d'un facteur $1/e$ de la pression (figure 1.4).

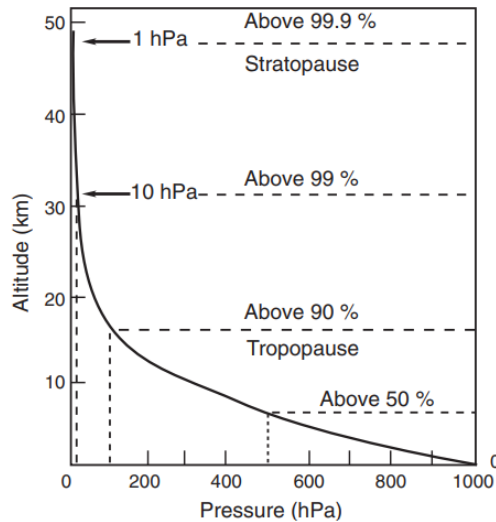


Fig. 1.4 - Variation verticale de la pression (hPa) en fonction de l'altitude (km) (Mohanakumar, 2008).

1.1.2 Dynamique atmosphérique

Pour représenter la dynamique atmosphérique à grande échelle, trois grandeurs sont utilisées : la température potentielle, la vorticité potentielle et le géopotentiel. Les équations décrites dans cette section sont extraites de Brasseur & Solomon (2005) et de Mohanakumar (2008).

Température potentielle

La température potentielle θ représente la température qui serait atteinte par une parcelle d'air si elle était adiabatiquement (sans apport ou perte de chaleur) comprimée à partir d'une température T et d'une pression P jusqu'à une pression de référence au niveau du sol P_0 . Elle est exprimée en Kelvin (K) et est donnée selon l'équation,

$$\theta = T \left(\frac{P_0}{P} \right)^{R_a/C_p} \quad (1.8)$$

Avec R_a la constante des gaz parfaits pour l'air (qui correspond à R/M_a) et C_p la chaleur spécifique de l'air à pression constante (exprimée en $J.K^{-1}.kg^{-1}$). La température potentielle θ est une quantité conservée durant le déplacement adiabatique d'une parcelle d'air et elle est utilisée pour évaluer la trajectoire de celle-ci. Les surfaces à deux dimensions de θ constantes définissent les surfaces isentropiques de l'atmosphère qui suivent le relief de la surface terrestre.

Le gradient de θ détermine la stabilité verticale de l'air. Plus précisément, la stabilité verticale de l'atmosphère dépend de la relation entre θ de la parcelle d'air et celle de son nouvel environnement. Elle est décrite au moyen de l'équation suivante,

$$\Gamma = \Gamma_d - \frac{T}{\theta} \frac{\partial \theta}{\partial z} \quad (1.9)$$

Avec $\Gamma = \partial T / \partial z$ le taux de refroidissement de l'air avec l'altitude et $\Gamma_d = -g/C_p$ le taux de refroidissement adiabatique ($K.km^{-1}$) qui quantifie comment la température diminue en

association avec un déplacement vertical ascendant adiabatique. Par conséquent, trois cas sont rencontrés :

- L'atmosphère est stable lorsque $\Gamma < \Gamma_d$ car $\partial\theta/\partial z > 0$, θ augmente avec l'altitude. Cela signifie que la parcelle d'air subissant une ascension adiabatique est plus froide que son environnement et tend à revenir à sa position initiale.
- Quand $\partial\theta/\partial z = 0$, θ reste inchangée et $\Gamma = \Gamma_d$. L'atmosphère est stable de façon neutre car la température de la parcelle d'air et de l'environnement sont les mêmes.
- L'atmosphère est instable lorsque $\Gamma > \Gamma_d$ car $\partial\theta/\partial z < 0$, θ diminue avec l'altitude. La parcelle d'air subissant une ascension adiabatique sera toujours plus chaude que l'environnement, ce qui l'éloignera de sa position initiale.

Vorticité potentielle

La vorticité potentielle (PV, Potential Vorticity) est une mesure microscopique de la rotation d'un fluide, considérée en un point. Il s'agit d'une quantité conservée dans des conditions adiabatiques et sans frottement. Elle est exprimée en termes de PVU (Potential Vorticity Units, où $1 \text{ PVU} = 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{K} \cdot \text{s}^{-1} \cdot \text{kg}^{-1}$) et est définie comme,

$$PV = (\zeta + f) \left[-g \frac{\partial\theta}{\partial P} \right] \quad (1.10)$$

Avec g la force gravitationnelle ($\text{m} \cdot \text{s}^{-2}$), P la pression (Pa), θ la température potentielle (K). f est la vorticité planétaire (ou la force de Coriolis) (s^{-1}) définie comme égale à $2\Omega \sin(\varphi)$ avec Ω la vitesse de rotation de la Terre et φ la latitude. C'est une mesure de la rotation d'un objet en raison de la rotation de la Terre autour d'une verticale locale. ζ est la vorticité relative (s^{-1}) qui s'exprime par l'équation, $\vec{\nabla} \times \vec{V}$ où \vec{V} est la vitesse d'une parcelle d'air par rapport à la Terre. C'est une mesure de la rotation de l'air dans l'atmosphère. En vertu de cette définition, la PV est nulle à l'équateur, dépend de la latitude et prend des valeurs positives (négatives) dans l'hémisphère Nord (Sud).

Comme mentionné précédemment, une des définitions de la tropopause est celle de la tropopause dynamique qui est définie sur base de la vorticité potentielle et qui se trouve extrêmement proche de la surface de 2 PVU. Dans la stratosphère, la PV est supérieure à 2 PVU tandis que dans la troposphère, elle est inférieure à 2 PVU. La tropopause dynamique permet de séparer les masses d'air troposphérique et stratosphérique en termes de PV.

Géopotentiel

Le géopotentiel (GEO), Φ , exprimé en $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-2}$ (ou en $\text{J} \cdot \text{kg}^{-1}$), représente le travail requis pour élever une masse d'air de 1 kg du niveau de la mer ($z = 0$) jusqu'à une altitude z de l'atmosphère,

$$\Phi = \int_0^z g(\phi, z) dz \quad (1.11)$$

Avec $g(\phi, z)$ l'accélération de la gravité (m.s^{-2}) et ϕ la latitude.

1.1.3 Circulation générale de la basse atmosphère

Ayant vu la dynamique qui décrit les mouvements des parcelles d'air, cette sous-section s'intéresse à la circulation générale des espèces dans la basse atmosphère. Cette circulation atmosphérique à grande échelle est le processus permettant de répondre aux contraintes imposées sur les particules dans l'atmosphère. En effet, à l'échelle planétaire, le climat résulte d'un déséquilibre énergétique entre l'équateur et les pôles en moyenne annuelle : le rayonnement solaire reçu par la Terre est maximal à l'équateur et minimal aux pôles en raison de la sphéricité de la Terre et des saisons. L'excédent d'énergie aux tropiques, accompagné d'un excès de chaleur, est donc redistribué vers les régions déficitaires (les pôles) essentiellement via la circulation de la troposphère.

Circulation troposphérique

La circulation de la troposphère, représentée à la figure 1.5, est séparée en deux composantes : une composante zonale (d'orientation Ouest ou Est) et une composante méridienne (d'orientation Nord ou Sud).

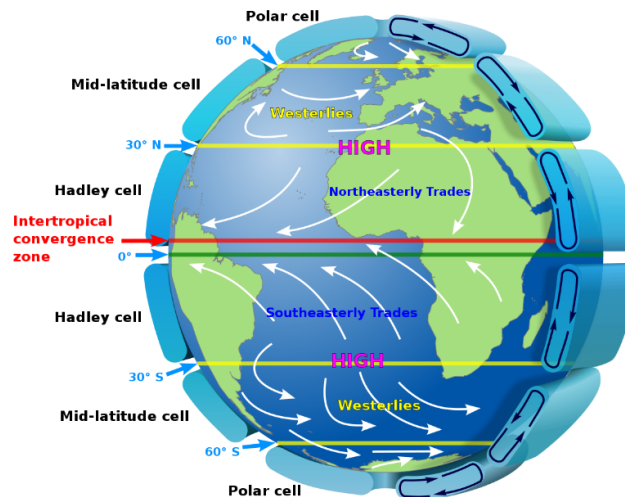


Fig. 1.5 - Circulation générale de la troposphère (<http://sealevel.jpl.nasa.gov/overview/climate-climatic.html>).

- **Circulation zonale**

La circulation tropicale (de part et d'autre de l'équateur) dans la troposphère est dominée par les alizés, des vents zonaux d'Est situés à une latitude de 20°-30°, au Nord et au Sud. La zone de convergence intertropicale (ZCIT) résulte de la convergence des vents de surface entre les alizés soufflant du Nord-Est dans l'hémisphère Nord (H.N.) et ceux du Sud-Est dans l'hémisphère Sud (H.S.). La ZCIT située au niveau de l'équateur est une ceinture étroite de

quelques centaines de kilomètres caractérisée par un fort mouvement ascendant et de fortes précipitations en raison du réchauffement intense par les rayonnements directs du Soleil. L'emplacement de la ZCIT varie en fonction des saisons, elle se déplace vers le Nord et le Sud avec les changements annuels de la déclinaison du Soleil.

La circulation extratropicale (aux latitudes moyennes) est dominée par les vents d'Ouest, centrés autour de 45° au Nord et au Sud. Ces vents sont séparés par une ceinture subtropicale de haute pression (30° de latitude au Nord et au Sud). Ce sont des anticyclones associés à des conditions sèches. Des dépressions, les cyclones de basse pression, se forment également dans les régions extratropicales (60° de latitude au Nord et au Sud) afin de rejoindre le flanc polaire.

- **Circulation méridienne**

La circulation horizontale méridienne de la troposphère fait apparaître des cellules dans chaque hémisphère (figure 1.6, a). Les cellules de Hadley sont caractérisées par des mouvements d'air ascendants correspondant à des régions de basse pression en surface dans la zone équatoriale et par des mouvements descendants correspondant à des régions de haute pression de surface à 30° de latitude au Nord et au Sud. Les mouvements générés par les cellules de Hadley résultent de forts vents de surface équatoriaux qui soufflent de l'Est en raison de la force de Coriolis de la Terre.

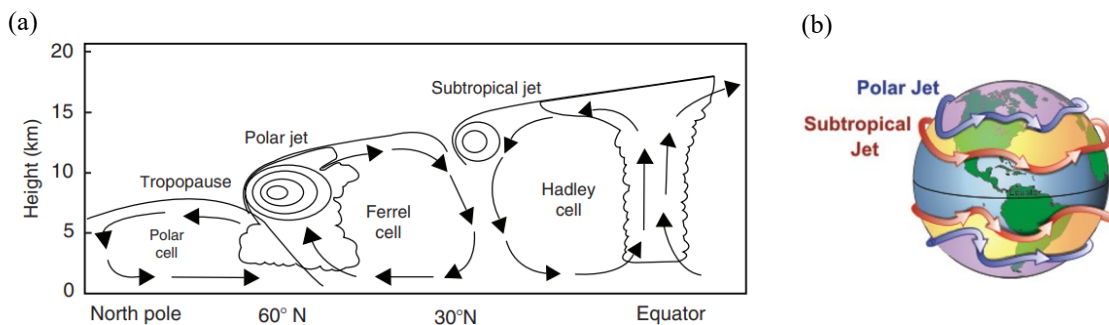


Fig. 1.6 - (a) Circulation méridienne moyenne dans la troposphère (Mohanakumar, 2008) ; (b) Jet-stream polaire (bleu) et jet-stream subtropical (rouge) (<http://la.climatologie.free.fr/troposphere/jet-stream.htm>).

La circulation méridienne aux latitudes moyennes est fermée par un déplacement de l'équateur vers les pôles près de la surface de la Terre et des pôles vers l'équateur en altitude via les cellules de Ferrel, moins intenses que les cellules d'Hadley. Dans les régions polaires, on retrouve les cellules polaires où la circulation se déplace dans le même sens que les cellules de Hadley.

Pour finir, la circulation méridienne est caractérisée par la présence de jet-streams (figure 1.6). Ce sont des bandes discontinues de vents relativement forts de plus de 30 m.s⁻¹ qui soufflent vers l'Est tout au long de l'année. Ils sont cependant plus forts en hiver et plus faibles en été. La hauteur des jet-streams varie de 9 à 10 km, ce qui correspond à une pression d'environ 300 à 250 hPa. Le premier jet-stream est le jet du front polaire situé entre l'air polaire et l'air des latitudes moyennes. Cette limite varie en fonction des saisons : comme les latitudes moyennes deviennent plus froides en hiver, alors que les températures tropicales restent inchangées, le jet-stream se déplace à environ 30° de latitude pendant les fronts hivernaux. Pendant les fronts estivaux, le jet-stream se déplace vers les pôles pour atteindre des latitudes comprises entre 50°

et 60°. Le deuxième jet-stream est le jet-stream subtropical situé entre la zone tropicale et les latitudes moyennes (30° de latitude).

Circulation stratosphérique

La circulation de la stratosphère est différente de la circulation troposphérique, elle est liée à la propagation vers le haut, de l'équateur vers les pôles, des ondes générées dans la troposphère. Elle possède également une circulation méridienne et conduit à la formation d'un vortex polaire durant la nuit polaire :

- **Les ondes**

Dans la stratosphère, deux types d'ondes participent aux processus de mélange : les ondes de gravité et les ondes de Rossby.

Les ondes de gravité sont nées de la stratification de la stratosphère et peuvent être générées par les jet-streams, les raz-de-marée, les cyclones tropicaux, les ouragans, les tremblements de terre, les éruptions volcaniques, les explosions nucléaires et les orages. Ces ondes se propagent verticalement et horizontalement (vers l'Est). Quand elles se déplacent vers le haut, leur amplitude augmente en raison de la diminution de la densité de l'air dans la stratosphère. En fonction de sa température par rapport à la température de son environnement, la stabilité statique verticale (section 1.1.2) va déplacer une parcelle d'air vers le bas ou vers le haut, ce qui va créer une oscillation autour de la position d'équilibre.

Les ondes de Rossby sont des ondes à l'échelle planétaire qui naissent en raison de la topographie de la troposphère et se propagent grâce à la variation de la vorticité planétaire (section 1.1.2) avec la latitude et verticalement de la troposphère à la stratosphère où elles gagnent en amplitude. Les ondes de Rossby sont définies comme un déplacement méridien d'une particule de fluide qui conserve sa vorticité potentielle (PV) dans une région où la PV de l'environnement est différente. Puisque la topographie et les contrastes Terre-océan sont plus marqués dans l'H.N., les ondes planétaires sont plus fréquentes et intenses que dans l'H.S.

- **Circulation méridienne**

La circulation méridienne de la stratosphère, appelée la circulation de Brewer-Dobson, peut être vue comme étant composée de trois parties (figure 1.7). D'abord, il y a une montée des masses d'air troposphérique dans la stratosphère au niveau des tropiques. Ensuite, elles sont transportées vers les pôles via le déferlement (ou la rupture) des ondes planétaires. Le déferlement des ondes se produit lorsque les ondes, se propageant verticalement où la densité de l'atmosphère diminue avec l'altitude, deviennent instables, atteignent de grandes amplitudes et se dissipent. La zone de surf correspond aux régions des latitudes moyennes où se produit le déferlement des ondes de Rossby. Pour finir, le mouvement descendant en altitude permet aux masses d'air de rejoindre la troposphère aux moyennes et aux hautes latitudes. L'air descendant des latitudes moyennes rejoint la troposphère tandis que l'air descendant aux latitudes polaires est transporté vers la basse stratosphère où il s'accumule.

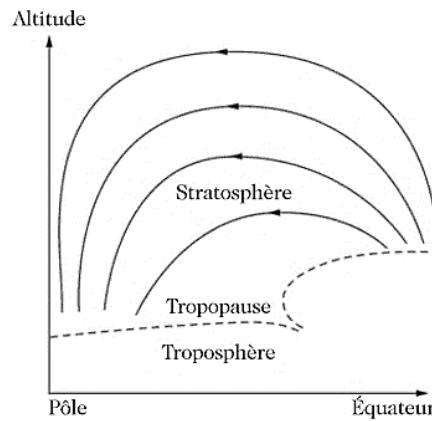


Fig. 1.7 - Circulation de Brewer Dobson (Delmas & Mégie, 2015).

- **Vortex polaire**

En l'absence de rayonnement solaire, durant la nuit polaire d'hiver, les vents forts de l'Est de la stratosphère conduisent à la formation d'un jet-stream à 50 hPa. C'est le vortex polaire. Ce jet-stream agit comme une barrière au transport entre la région polaire et les latitudes moyennes et bloque le transport entre l'intérieur et l'extérieur du vortex durant l'hiver.

Echelle de temps

La circulation atmosphérique redistribue les constituants du sommet de la couche limite (la couche de surface) jusqu'à la tropopause. Dans la troposphère, les vitesses des vents méridiens sont de l'ordre de 1 m.s^{-1} ce qui implique qu'il faut 1 à 2 mois pour effectuer des échanges avec les tropiques ou les régions polaires. Le transport zonal, sous une latitude donnée, pour effectuer le tour de la Terre, est plus rapide, il nécessite 2 à 4 semaines car les vitesses des vents sont de l'ordre de 10 m.s^{-1} . Il faudra en revanche 1 an pour que les masses d'air passent de l'H.N. à l'H.S. (figure 1.8). Cet échange dépend des variations de la ZCIT en fonction des saisons.

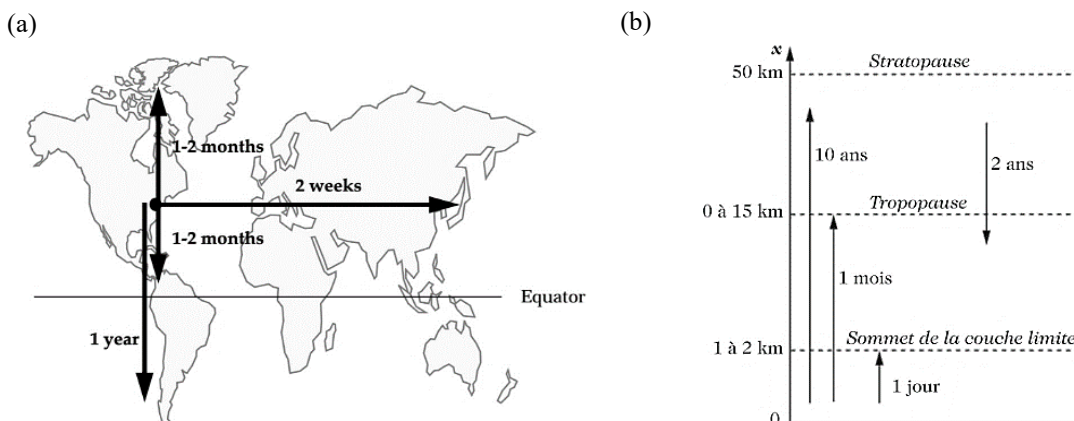


Fig. 1.8 - Echelle de temps du transport atmosphérique horizontal et vertical (Jacob, 1999 et Delmas & Mégie, 2015).

Le mélange vertical des masses d'air est plus lent que le transport horizontal. En effet, les vitesses des vents verticaux sont plus faibles, de l'ordre de $0,001$ à $0,01 \text{ m.s}^{-1}$. Il faut en moyenne 1 mois pour mélanger l'air de la surface de la Terre jusqu'à la tropopause. Le transport des

masses d'air de la troposphère à la stratosphère nécessite 5 à 10 ans. Dans le sens inverse, il faut 1 à 2 ans. Il est important de noter que ces durées sont des valeurs moyennes.

Les processus d'échanges stratosphère-troposphère qui sont au centre de notre travail et que nous abordons au chapitre 2, permettent par exemple un transport spontané et rapide (de l'ordre de 4 jours) des masses d'air à travers la tropopause.

1.2 L'ozone dans l'atmosphère

L'ozone (O_3) est un gaz oxydant réactif produit naturellement à l'état de trace dans l'atmosphère terrestre (section 1.1.1). La majeure partie de l'ozone atmosphérique (90 %) se trouve dans la stratosphère, où il forme ce que l'on appelle communément la couche d'ozone. L'ozone restant (10 %) se situe dans la troposphère. La distribution verticale typique de l'ozone dans ces deux couches est représentée sur la figure 1.9.

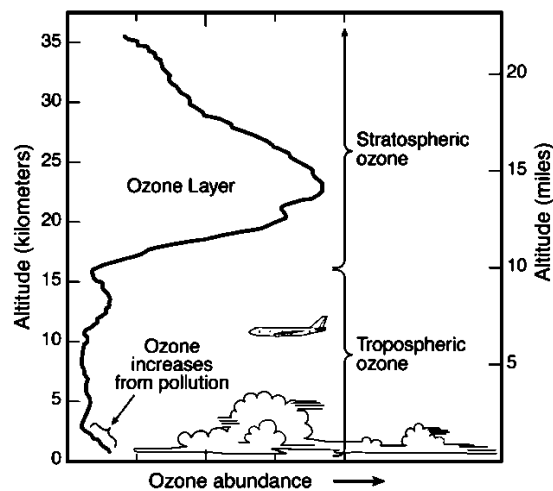


Fig. 1.9 - Distribution verticale de l'ozone atmosphérique (Copernicus Atmosphere Monitoring Service, <https://atmosphere.copernicus.eu/ozone-layer-and-ultra-violet-radiation>)

Dans cette section, nous présentons les processus de production et de destruction de l'ozone troposphérique et stratosphérique qui permettent de rendre compte le bilan de l'ozone atmosphérique.

1.2.1 Ozone troposphérique

L'ozone troposphérique est un gaz secondaire qui joue un rôle clé sur la qualité de l'air. Il contrôle également l'équilibre radiatif du système Terre-atmosphère en absorbant la radiation infrarouge sortante de la Terre. Il agit ainsi comme un gaz à effet de serre. L'ozone troposphérique est qualifié de « mauvais » en raison de ces effets néfastes sur les systèmes vivants. En effet, il est dangereux pour la santé humaine (par exemple, il induit une réduction de la capacité pulmonaire et provoque des douleurs thoraciques, une irritation de la gorge et de la toux) et les écosystèmes. La capacité oxydante de l'atmosphère est régulée par l'ozone avec son dérivé photochimique, le radical hydroxyle (OH).

La figure 1.10 résume les processus de production et de destruction de l’ozone troposphérique dont l’origine est double. D’une part, le transfert des masses d’air entre la stratosphère et la troposphère, décrit dans le chapitre 2, induit une source dynamique. D’autre part, la photooxydation de précurseurs de l’ozone (hydrocarbures, oxydes d’azote, monoxyde de carbone et méthane) constitue une source photochimique. Les principaux processus d’élimination de l’ozone sont sa photolyse, la photochimie et le dépôt sec au sol.

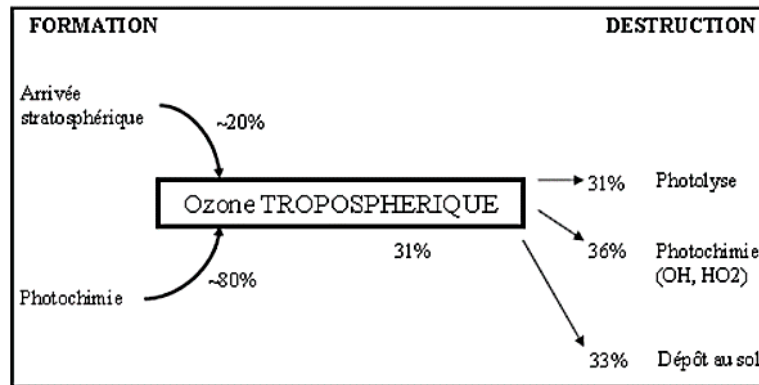


Fig. 1.10 - Bilan global estimé de l'ozone troposphérique (Chanin et al., 2015).

Production de l’ozone

- **Production photochimique**

L’ozone troposphérique est formé près de la surface de la Terre par des réactions photochimiques (figure 1.11). Ces réactions chimiques se produisent en présence de rayonnement solaire et impliquent les différents précurseurs gazeux suivants :

- Les oxydes d’azote ($\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$) d’origine naturelle (feux naturels de forêts, éclairs, émissions par les sols) ou anthropique (agriculture, combustibles fossiles) ;
- Le méthane (CH_4) essentiellement issu de l’agriculture ainsi que de la fermentation de matières organiques animales ou végétales, en l’absence d’oxygène ;
- Les composés organiques volatils non méthaniques (COVNM) provenant principalement de sources anthropiques (combustion de la biomasse, combustibles fossiles, agriculture) mais aussi des émissions par la végétation ;
- Le monoxyde de carbone (CO) qui résulte de l’oxydation du méthane et des hydrocarbures et de la combustion incomplète des combustibles fossiles et des matières organiques.

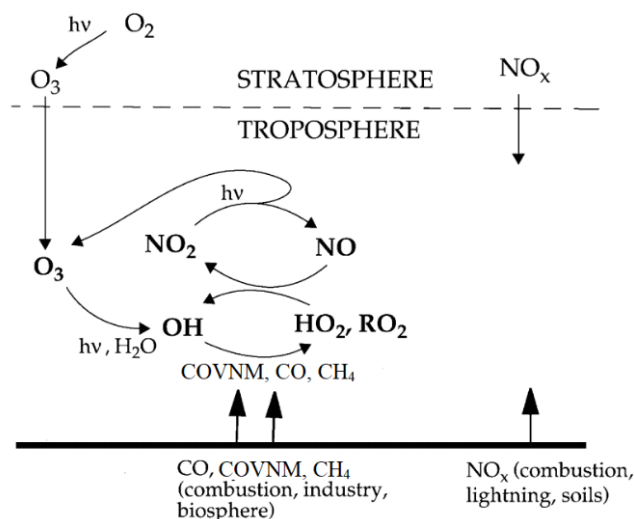


Fig. 1.11 - La chimie de l'ozone troposphérique (Adaptée à partir de Jacob, 2000).

Comme dans la stratosphère (voir section 1.2.2), la formation de l'ozone dans la troposphère résulte de la combinaison entre l'oxygène atomique à l'état fondamental $O(^3P)$ et d'une molécule de dioxygène (O_2) en présence d'un troisième corps M stabilisant les produits de la réaction,



Dans la troposphère, $O(^3P)$ provient de la photodissociation du dioxyde d'azote (NO_2) à une longueur d'onde λ comprise entre 300 nm et 400 nm,



Le monoxyde d'azote (NO) réagit rapidement avec l'ozone,



Un état d'équilibre photochimique s'établit alors entre NO_2 , NO et O_3 . La conversion du NO et NO_2 fait intervenir des radicaux peroxy (RO_2 où R est un atome d'hydrogène ou un radical organique) provenant de l'oxydation par le radical OH du CO , du CH_4 et des $COVNM$,



Ces deux réactions sont en compétition avec,



Les radicaux RO_2 réagissent préférentiellement avec NO lorsque le rapport des concentrations de NO et d'ozone est supérieur à $2 \cdot 10^{-4}$, ce qui correspond à des teneurs en NO_x supérieures à environ 10 à 30 ppt dans le cas de conditions troposphériques moyennes (concentrations d' O_3 entre 50 et 100 ppb). Cette valeur représente une valeur seuil en dessous de laquelle il y a destruction de l'ozone et au-dessus de laquelle il y a formation de l'ozone.

En présence de concentrations suffisantes en NO_x, la production de l'ozone troposphérique est décrite par l'oxydation du CO, du CH₄ ou des COVNM par le radical OH. La production de radicaux hydroxyles résulte de la réaction entre l'oxygène atomique dans un premier état excité O(¹D) et la vapeur d'eau (H₂O),



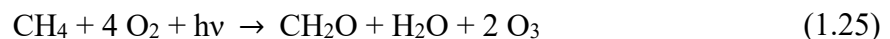
L'atome d'oxygène O(¹D) provient de la photolyse de l'ozone à des rayonnements de longueurs d'ondes inférieures ou égales à 310 nm,



Ainsi, l'oxydation du CH₄ ou du CO par le radical OH conduit à la formation de CH₃O₂ (réactions 1.21 et 1.22) et de HO₂ (réactions 1.23 et 1.24) respectivement,

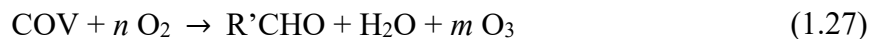


L'oxydation du NO (réactions 1.15 et 1.16) par le CH₃O₂ et de HO₂ conduit à la formation du NO₂ qui sera ensuite photolysé par la réaction 1.13. Pour terminer, l'atome d'oxygène à l'état triplet conduit à la formation de l'ozone par la réaction 1.12. Les réactions bilan pour l'oxydation du CH₄ et du CO en présence de NO_x sont respectivement,



Les réactions entre le radical OH et le CO ou le CH₄ (réactions 1.21 et 1.23) sont relativement lentes, la production de l'ozone nécessite environ 2 à 3 semaines.

Les mécanismes d'oxydation des composés organiques volatils (COV) se font principalement par le radical OH le jour et le radical NO₃ la nuit, ainsi que par l'ozone pour certains d'entre eux. La réaction nette conduisant à la production de l'ozone est,



Avec R'CHO les composés carbonylés où R' représente la chaîne avec un nombre d'atomes de carbone plus faible que celui du COV de départ. Le nombre de molécules *m* d'ozone produites varie entre 2 et 14 selon la nature du COV. Les réactions des COV avec le radical OH se déroulent plus rapidement (de l'ordre de l'heure à la semaine) que celles impliquant CO ou CH₄ surtout près des zones d'émissions des COV (villes, combustion de la biomasse, ...).

- **Apport par la stratosphère**

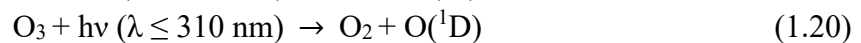
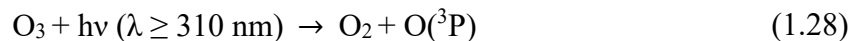
Les échanges entre la stratosphère et la troposphère représentent l'autre source importante de l'ozone troposphérique. La magnitude de cette source est encore incertaine (entre 10 et 30 %)

et l'intensité de ces échanges varie selon les années, les saisons et des latitudes. Nous y reviendrons en détail dans le chapitre 2.

Destruction de l'ozone

- **Destruction par photodissociation**

La photodissociation de l'ozone troposphérique se déroule dans deux domaines spectraux. Pour des longueurs d'onde supérieures à 310 nm, la photodissociation conduit à la formation de $O(^3P)$ qui se recombine avec O_2 pour reformer de l'ozone (réaction 1.12). Pour les longueurs d'onde inférieures à 310 nm, la photodissociation conduit à la formation de $O(^1D)$ dont une fraction réagit avec l'eau pour former des radicaux OH (réaction 1.19).



- **Destruction photochimique**

La destruction photochimique de l'ozone se déroule pour de faibles concentrations de NO_x (inférieures à 10-30 ppt) lorsque les radicaux peroxy (RO_2) issus des mécanismes d'oxydation du CO et du CH_4 réagissent directement avec l'ozone (réactions 1.17 et 1.18). L'ozone peut également être détruit en réagissant avec le radical OH de jour ou avec les NO_x ,



Les deux réactions ont lieu plus récurremment durant la nuit et dans les régions de fortes concentrations en NO_x car les molécules NO_2 et NO_3 sont photodissociées dans le visible ($470 \leq \lambda \leq 650 \text{ nm}$) et peuvent alors reformer de l'ozone.

- **Déposition au sol**

La déposition au sol est un processus se déroulant soit par l'absorption de l'ozone par la végétation, soit par la décomposition de l'ozone en présence d'une surface agissant comme catalyseur (substance provoquant des réactions chimiques sans être elle-même consommée par ces réactions) dont l'équation générale peut s'écrire comme, $2 O_3 \rightarrow 3 O_2$.

Distribution de l'ozone

Les processus décrits ci-dessus permettent de rendre compte des distributions et des variabilités de l'ozone troposphérique. A titre d'exemple, la variation saisonnière des concentrations moyennes mensuelles d'ozone au-dessus de la France est présentée à la figure 1.12. L'ozone présente un maximum aux moyennes latitudes à la fin du printemps et en été en raison de sa production photochimique par les précurseurs plus favorable. Les concentrations minimales de l'ozone sont observées durant l'hiver.

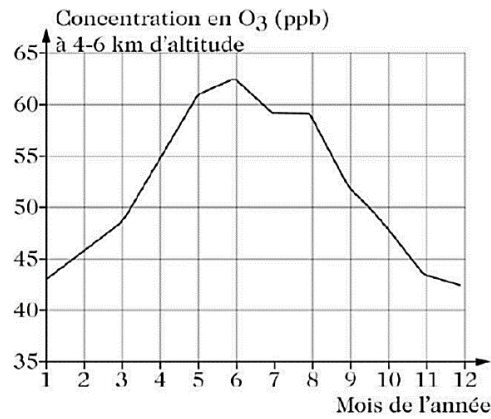


Fig. 1.12 - Evolution temporelle du rapport de mélange d'ozone troposphérique (en ppb) mesuré sur une période d'un an dans une couche d'épaisseur 4 à 6 km d'altitude au-dessus de la France (Delmas & Mégie, 2015).

De nombreux instruments satellitaires en visée au nadir (par exemple, l'Interféromètre de Sondage Atmosphérique Infrarouge (IASI) que nous utilisons dans ce travail mais aussi, le Global Ozone Monitoring Experiment (GOME)-2 et l'Ozone Monitoring Instrument (OMI)) permettent de surveiller la production et le transport de l'O₃ troposphérique à l'échelle globale depuis environ une décennie. La figure 1.13 illustre les distributions globales de la colonne d'ozone troposphérique (DU) mesurée à l'aide de l'instrument GOME-2 en octobre et en avril.

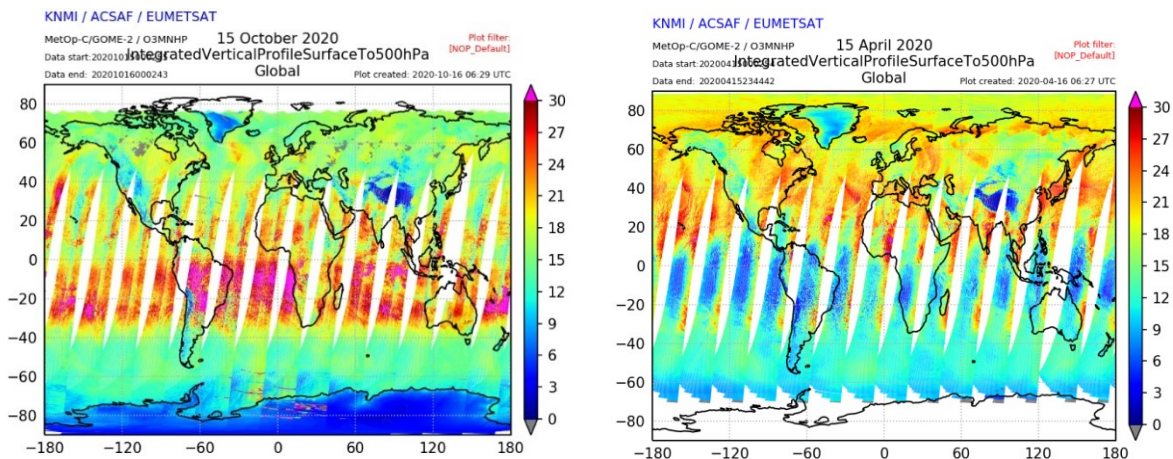


Fig. 1.13 - Distributions globales de la colonne d'ozone troposphérique (DU) mesurée à l'aide de l'instrument GOME-2 le 15 octobre 2020 (gauche) et le 15 avril 2020 (droite) (<https://www.temis.nl>).

Au mois d'octobre, les fortes concentrations d'ozone apparaissent dans l'H.S. notamment au-dessus de l'Afrique centrale et de l'Amérique du Sud en raison des intenses feux de forêts durant la saison sèche. Au mois d'avril, les concentrations d'O₃ sont maximales au-dessus des régions fortement industrialisées de l'H.S. De plus, autour de l'Indonésie et de l'Australie du Nord, les concentrations d'ozone augmentent et une diminution au-dessus de l'océan Pacifique apparaît en raison de l'évènement El Niño-Southern Oscillation (ENSO). Il s'agit d'un phénomène couplé au système atmosphère-océan qui couvre l'océan Pacifique équatorial (occidental et oriental) en changeant les températures de surface de la mer sur un intervalle de temps allant de 2 à 8 ans (Wespes et al., 2017). En plus de ce phénomène, au niveau de l'Indonésie et du Pacifique Ouest et Est, on parle de l'« Indo-Pacifique warm pool (IPWP) » lorsque les

températures de surface sont supérieures à 28°C et induisent une augmentation de l'humidité relative et des convections profondes. Les masses d'air deviennent dilatées et les concentrations d'ozone diminuent dans ces régions (De Deckker, 2016).

1.2.2 Ozone stratosphérique

Ainsi que nous l'avons introduit, la majorité de l'ozone atmosphérique se trouve dans la stratosphère où il forme, entre 18 et 40 km d'altitude, la couche d'ozone. L'ozone stratosphérique est considéré comme « bon » car il protège la vie sur Terre en empêchant les radiations solaires ultraviolettes UV-B/C, de longueurs d'ondes comprises entre 200 et 310 nm, d'atteindre la surface terrestre. L'absorption de ces rayonnements UV induit une augmentation de la température dans la stratosphère avec l'altitude rendant cette couche atmosphérique stable (sections 1.1.1 et 1.1.2).

Ozone à la stationnarité

En 1930, Sydney Chapman propose un mécanisme de production et de destruction d'ozone au-dessus de 20 km d'altitude où le rayonnement solaire est le plus important. La molécule d'oxygène est photodissociée à des longueurs d'ondes inférieures à 240 nm,



Nous l'avons vu, $\text{O}({}^3\text{P})$ est très réactif en raison de ses électrons impairs et se recombine rapidement à l'oxygène en présence d'un troisième corps M pour former l'ozone via la réaction 1.12.

Les molécules d'ozone formées se dissocient sous l'action des rayonnements UV de longueurs d'ondes comprises entre 200 et 310 nm,



L'atome d'oxygène à l'état excité $\text{O}({}^1\text{D})$ retourne instantanément à l'état fondamental $\text{O}({}^3\text{P})$ par des réactions de collisions avec le diazote ou le dioxygène.

Pour finir, l'ozone est détruit par réaction avec $\text{O}({}^3\text{P})$ pour former deux molécules d'oxygène,



Seul, le cycle de Chapman n'explique pas la distribution de l'ozone stratosphérique dont un exemple est donné à la figure 1.14.

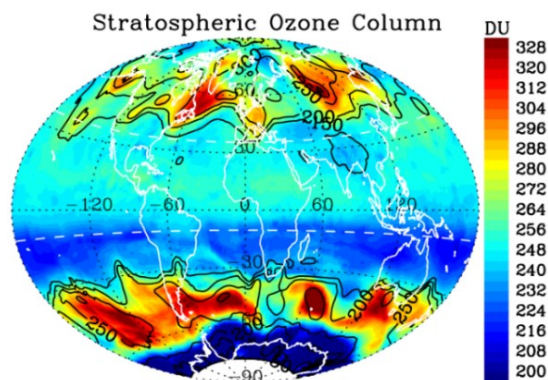


Fig. 1.14 - Distribution globale de la colonne d’ozone stratosphérique (DU) mesurée à l’aide de l’instrument OMI le 26 août 2006. Les données sont moyennées sur une grille 1° latitude × 1° longitude (Liu et al., 2010).

Deux processus moyens contribuent à cette variabilité :

- La circulation de Brewer-Dobson (section 1.1.3) qui transporte l’ozone des tropiques aux pôles. Il en résulte des quantités d’ozone plus faibles aux tropiques et plus importantes dans les régions extratropicales.
- Les cycles catalytiques qui induisent la perte de l’ozone dans la stratosphère. Ils impliquent des constituants de l’atmosphère tels que les radicaux HO_x (= OH + HO₂), les NO_x et les radicaux halogénés (Cl, ClO, Br, BrO). Le schéma de destruction catalytique le plus commun est le suivant :



Avec X, un catalyseur représentant NO, OH, Cl ou Br et XO.

Problématique du trou d’ozone

L’appauvrissement de la couche d’ozone durant chaque printemps dans les régions polaires est le sujet de grande préoccupation depuis 1985. Le trou d’ozone en Antarctique correspond à une région de perte massive de l’ozone stratosphérique qui apparaît chaque année depuis les années 1970, entre septembre et décembre. Les mécanismes impliqués dans cet appauvrissement sont : la formation du vortex polaire (section 1.1.3) et des nuages stratosphériques polaires (PSCs) sur lesquels la conversion des espèces stables, ClONO₂ et HCl, en chlore actif Cl₂ a lieu. L’arrivée des rayonnements solaires induit une photodissociation du Cl₂ en atomes de chlore qui vont réagir comme un catalyseur pour participer à la perte d’ozone (réactions 1.33 et 1.34). Deux cycles catalytiques supplémentaires impliquant le ClO et le BrO participent à cette perte. Lorsque les températures augmentent, les PSCs sont évaporés, la production du ClO cesse, le vortex s’affaiblit et l’air est échangé avec le reste de la stratosphère.

Des réglementations et des amendements (par exemple, le protocole de Montréal) sur les produits chimiques responsables de la destruction de l’ozone stratosphérique ont été mis en place afin de garantir la protection de la couche d’ozone. Nous n’aborderons pas spécifiquement la destruction de l’ozone aux pôles dans ce travail.

Chapitre 2

Echanges stratosphère-troposphère (STE)

En plus de la circulation générale de l'atmosphère (section 1.1.3), les échanges entre la stratosphère et la troposphère (STE, Stratosphere-Troposphere Exchange) jouent un rôle important dans la distribution globale de l'ozone dans l'atmosphère. En effet, ces processus d'échanges transportent les parcelles d'air et les composés atmosphériques à travers la tropopause en quelques jours. Pour étudier l'impact de ces STE sur le bilan de l'ozone troposphérique ou sur toute autre espèce, il faut considérer les flux à la tropopause et le transport troposphérique et stratosphérique. Notons que les STE ne sont pas encore bien compris. Pour citer Mohanakumar (2008) : “The mechanisms and the rate of transfer of mass and chemical species between the stratosphere and troposphere are currently uncertain”. Les STE ont été décrits dans ce chapitre principalement à partir des articles de Holton et al. (1995), de Stohl et al. (2003) et de Škerlak et al. (2013).

2.1 Les processus d'échanges stratosphère-troposphère (STE)

La figure 2.1 illustre les aspects dynamiques globaux des échanges stratosphère-troposphère (STE). Nous avons vu que les échanges qui impliquent des parcelles d'air se déplaçant le long des surfaces isentropiques (section 1.1.2), se déroulent par un processus adiabatique afin de conserver la température potentielle le long de la trajectoire. Au contraire, le transport à travers les isentropes s'effectue par des processus diabatiques incluant des processus de turbulence (formation de tourbillons). Puisque la tropopause croise les isentropes aux latitudes moyennes, le transport à travers la tropopause peut se dérouler dans deux directions :

- Le transport de la stratosphère à la troposphère (STT, pour Stratosphere to Troposphere Transport),
- Le transport de la troposphère à la stratosphère (TST, pour Troposphere to Stratosphere Transport).

Dans la première situation, le cas d'intérêt pour ce travail, on parle d'intrusion stratosphérique pour la masse d'air concernée. Les termes STT et intrusions stratosphériques seront utilisés indifféremment dans la suite de ce travail. Les espèces qui rejoignent la troposphère par des STT peuvent jouer un rôle important dans le système chimique de cette couche atmosphérique. C'est le cas en particulier pour l'ozone étant donné que lorsqu'il est présent dans la troposphère, il conduit à une augmentation du forçage radiatif¹ (c'est un gaz à effet de serre) et en modifie la capacité oxydante (sections 1.2.1 et 2.1.5).

¹ Le forçage radiatif est défini comme la déstabilisation de l'équilibre entre le rayonnement solaire entrant et les émissions de rayonnements infrarouge sortant de l'atmosphère.

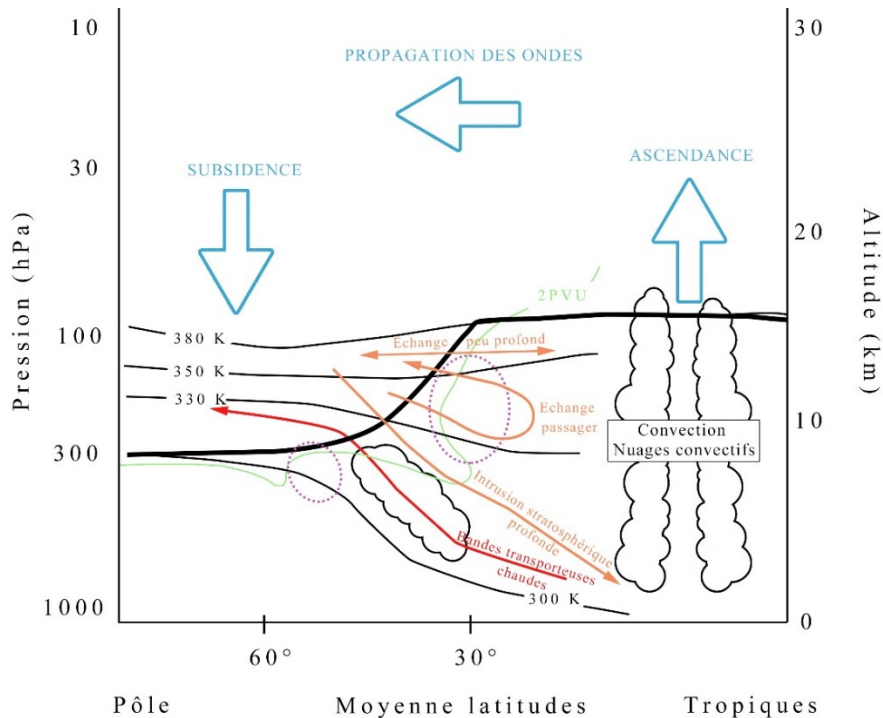


Fig. 2.1 - Représentation schématique des échanges entre la stratosphère et la troposphère dans les régions tropicales et les latitudes moyennes. Les tropopauses thermique et dynamique sont représentées par la ligne noire épaisse et par l'isosurface verte de vorticité potentielle égale à 2 PVU, respectivement. Les flèches bleues indiquent la circulation de Brewer-Dobson, les lignes noires horizontales sont les surfaces isentropiques (exprimées en Kelvin). Les jet-stream subtropical et polaire sont représentés en violet (Adaptée à partir de Holton et al., 1995, de Stohl et al., 2003 et de Boothe et al., 2016).

Les STE sont observés dans les régions tropicales et aux moyennes latitudes (régions subtropicales et extratropicales). Ces échanges sont des événements qui peuvent s'étendre sur 4 jours. La grande majorité (90 %) sont passagers, c'est-à-dire qu'il y a un échange puis, après 6 h, l'air retourne dans sa couche initiale (Stohl et al., 2003).

Lors des STE, les masses d'air transportées à travers la tropopause peuvent pénétrer plus ou moins profondément dans la couche atmosphérique supérieure (TST) ou inférieure (STT). Les échanges dits peu profonds se limitent à la région de la haute troposphère-basse stratosphère (UTLS, Upper Troposphere-Lower Stratosphere) et sont partiellement réversibles. Les échanges dits profonds influencent au-delà de l'UTLS. Dans le cas des STT, les masses d'air stratosphérique peuvent être amenées jusqu'à la surface. Ces processus sont irréversibles et ont un impact significatif sur la chimie atmosphérique.

2.1.1 STE dans les régions tropicales

Dans les régions tropicales, la circulation de Brewer-Dobson amène les masses d'air de manière diabatique vers la stratosphère via la convection humide ou les nuages convectifs (e.g., cumulonimbus ou cirrus). Etant donné les mécanismes convectifs, le transport de la troposphère à la stratosphère (TST) domine dans les régions tropicales mais le transport de la stratosphère vers la troposphère (STT) existe également en raison de la rupture des ondes de Kelvin, des ondes de type équatorial qui se propagent vers l'Est comme les ondes de gravité (section 1.1.3), et de la présence des cyclones tropicaux caractérisés par des vents horizontaux importants.

2.1.2 STE aux latitudes moyennes

La circulation de Brewer-Dobson amène les masses d'air des régions tropicales vers les régions extratropicales et polaires via le déferlement des ondes planétaires. La descente des parcelles d'air dans ces régions permet à celles-ci d'être transportées le long des surfaces isentropiques dans la troposphère et ce, de manière adiabatique. En plus de la rupture des ondes, les STT sont observés via les foliations (ou plis) de la tropopause à proximité des jet-streams polaire et subtropical (section 1.1.3), les cyclones « cut-off », les systèmes convectifs et les orages. Nous détaillons ces processus ci-dessous.

Les foliations de la tropopause sont associées à des déplacements latitudinaux de la tropopause sur les surfaces isentropiques facilitant ainsi les échanges des masses d'air. Ces plis de la tropopause se situent à l'entrée des jet-streams de la troposphère : l'un s'étend donc dans la troposphère le long du front polaire, l'autre est associé au jet-stream subtropical. Ils s'établissent en réponse aux contraintes dynamiques liées à l'instabilité des jet-streams qui sont soumis aux ondes de Rossby. Les ondes de Rossby peuvent en effet interagir avec les couches inférieures de l'atmosphère pour donner lieu aux perturbations baroclines, des perturbations associées à un gradient horizontal de température et à des vents d'Ouest en altitude suffisamment importants pour donner lieu à des structures tourbillonnaires à grande échelle. Ces tourbillons sont caractérisés par des systèmes alternatifs de basse et de haute pression se déplaçant vers l'Est. Ces cyclones et anticyclones sont responsables des systèmes frontaux qui produisent des nuages et des orages aux latitudes moyennes et permettent un mélange de l'air stratosphérique avec l'air troposphérique dans la troposphère extratropicale.

Les plis de la tropopause conduisent à la formation de filaments qui s'enfoncent plus ou moins profondément dans la troposphère et qui sont riches en ozone. Ils disparaissent sous l'action du rayonnement, de la turbulence et de la convection. Les filaments peuvent s'enrouler sur eux-mêmes pour former des cyclones dit « cut-off », des systèmes de basse pression qui sont isolés du flux principal du jet-stream, entraînant des intrusions stratosphériques via les processus de turbulence et de frottement. La majorité de ces dépressions se forment durant les mois d'été et persistent plusieurs jours.

Aux latitudes moyennes, les STT sont dominants mais les TST ont également lieu et se produisent via des bandes transporteuses chaudes. Ce sont des courants aériens chauds et humides à l'avant des fronts froids qui génèrent des nuages et des précipitations dans les cyclones extratropicaux (Binder et al., 2017).

2.2 Climatologies des échanges stratosphère-troposphère

Pour représenter la variabilité interannuelle des STE à travers la tropopause, des climatologies sont établies sur base de modèle (James et al., 2003 ; Sprenger & Wernli, 2003 ; Škerlak et al., 2013, 2014 et Boothe et al., 2016). Ce sont des distributions moyennes sur une certaine période de l'état du climat et de l'atmosphère. Les climatologies sur 33 ans sur les figures 2.2 et 2.3 ont été définies sur base des réanalyses ERA-Interim des champs de vents et de température provenant du Centre Européen de Prévision Météorologique Moyen Terme (European Center

for Medium-Range Weather Forecasts, ECMWF)² et d'un modèle Lagrangien³ (Škerlak et al., 2013).

- **Transport stratosphère vers troposphère (STT)**

Les distributions saisonnières sur la figure 2.2 représentent les flux de masses d'air associés aux STT et moyennés sur la période 1979-2011.

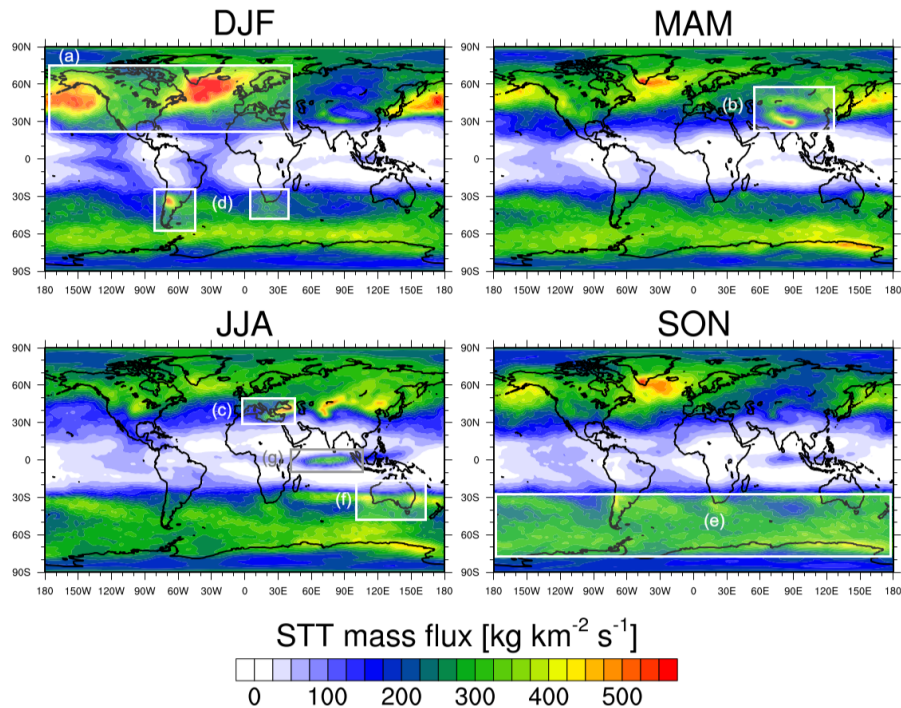


Fig. 2.2 - Distributions saisonnières du flux de masse associé aux STT ($\text{kg.km}^{-2}.\text{s}^{-1}$) moyennées sur la période 1979-2011 avec DJF : décembre-janvier-février, MAM : mars-avril-mai, JJA : juin-juillet-août et SON : septembre-octobre-novembre (Škerlak et al., 2013).

Dans l'hémisphère Nord (H.N.), les voies orageuses au-dessus de l'Atlantique et le Pacifique (rectangle a) sont responsables de la prédominance des STT à toutes les saisons sauf en été en aval des régions d'Europe centrale, de l'Afrique du Nord et du Moyen-Orient ainsi qu'à l'Ouest des États-Unis (Sprenger & Wernli, 2003 et Reutter et al., 2015). Les chaînes de montagnes d'Asie (rectangle b ; e.g., l'Himalaya (DJF, MAM)) sont également caractérisées par des STT intenses. En été (JJA), les maxima se déplacent vers les continents en raison de la convection intense qui y règne. Par exemple, au-dessus de la Méditerranée orientale (rectangle c), de l'Anatolie et le côté Nord du plateau Tibétain, les STT résultent de l'activité de pliage de la

² Une réanalyse permet de décrire le climat actuel et de surveiller les changements climatiques en combinant des données de modèles et des observations du monde entier, en utilisant les lois de la physique. Elle est constituée d'estimations de paramètres atmosphériques et de paramètres de surface qui sont générées partout sur la planète sur une longue période temporelle. Cette assimilation des données est utilisée périodiquement par le ECMWF afin de « réanalyser » les observations archivées permettant ainsi de générer des ensembles de données mondiales décrivant l'histoire de l'atmosphère, de la surface terrestre et des océans (Keeley et al., 2013).

³ Cette méthodologie est basée sur un large ensemble de trajectoires démarrées toutes les 24 h sur une grille régulière couvrant l'ensemble du globe entre 650 et 50 hPa (Škerlak et al., 2013).

tropopause (Sprenger & Wernli, 2003 ; Traub et al., 2003 ; Škerlak et al., 2013 ; Tyrlis et al., 2014 et Akritidis et al., 2018).

Dans l'hémisphère Sud (H.S.), les STT se situent principalement le long des côtes Ouest des continents. Durant le printemps (SON) et l'été austral (DJF), les STT sont localisés au-dessus des Andes avec un maximum localisé au-dessus du Chili et au Sud de l'Afrique pour toutes les saisons (rectangle d). Le long de la voie orageuse au-dessus de l'océan Austral (rectangle e), les STT sont présents au printemps et en été austral et sont plus localisés au-dessus de l'Antarctique oriental (environ 150° E) en automne et hiver austral (MAM et JJA) où les plis profonds de la tropopause ont lieu. Sur les régions Est et Ouest de l'Australie et de la mer de Tasmanie nordique (rectangle f), les foliations de la tropopause le long du jet-stream subtropical permettent les échanges de la stratosphère vers la troposphère (DJF et SON).

Dans les régions tropicales, la principale zone de STT se situe le long de l'équateur au-dessus de l'océan Indien (rectangle g ; Škerlak et al., 2013).

- **Transport troposphère vers stratosphère (TST)**

Les distributions saisonnières sur la figure 2.3 représentent les flux de masses associés aux TST et moyennés sur la période 1979-2011.

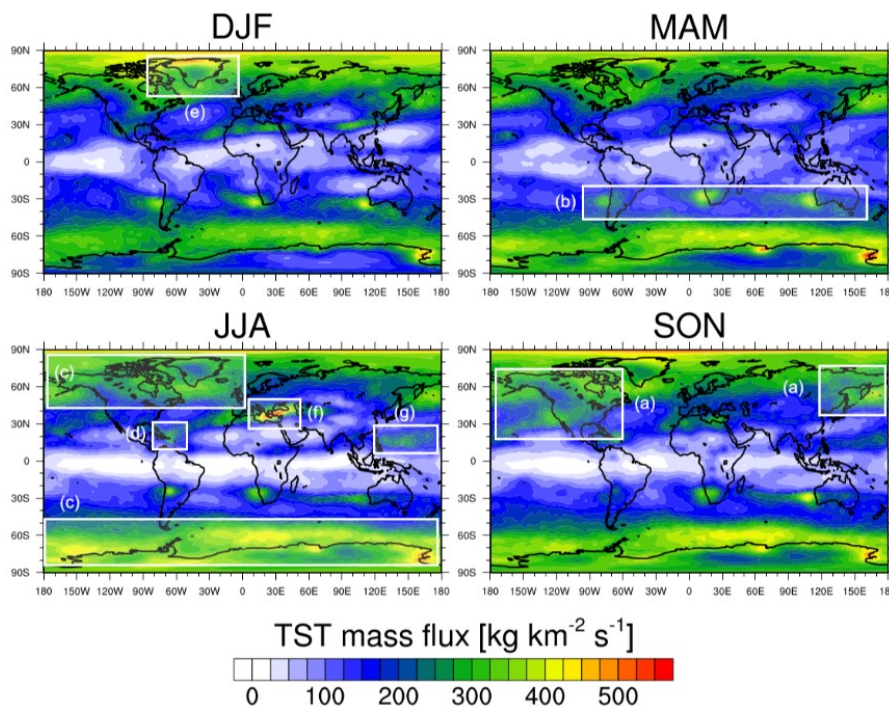


Fig. 2.3 - Distributions saisonnières du flux de masse associé aux TST (kg.km⁻².s⁻¹) moyennées sur la période 1979-2011 avec DJF : décembre-janvier-février, MAM : mars-avril-mai, JJA : juin-juillet-août et SON : septembre-octobre-novembre (Škerlak et al., 2013).

Le flux de masse annuel moyen associé au TST est important aux hautes latitudes, au niveau des pôles (au-delà d'environ 55° N/S) dans les deux hémisphères et au-dessus des régions côtières et océaniques. En effet, les TST sont observés au-dessus la côte Est de l'Asie et

l'Amérique du Nord (rectangle a), des régions influencées par les émissions de polluants atmosphériques des régions industrielles, ou encore au-dessus des Andes, des côtes Sud de l'Afrique et de l'Australie (rectangle b). De plus, les TST ont également lieu à l'entrée des voies orageuses du Pacifique Nord, de l'Atlantique et de l'océan Austral (rectangle c) mais aussi au-dessus de la mer des Caraïbes (JJA et SON ; rectangle d).

Des pics distincts de TST intenses apparaissent le long de la côte Nord du Groenland et le long de la côte de l'Antarctique, au-dessus des montagnes transantarctiques (165° E ; rectangle e) ainsi qu'au-dessus de la Méditerranée orientale et de l'Anatolie (JJA) (rectangle f ; Škerlak et al., 2013).

Aux tropiques, au-dessus du Pacifique occidental (rectangle g), les TST se déroulant durant la période de mousson asiatique en été (JJA) sont bien connus (Gettelman et al., 2004). La mousson est un changement saisonnier du régime des vents s'accompagnant de pluies saisonnières dans les régions tropicales. La convection humide fait monter les masses d'air de la basse troposphère à l'intérieur de la circulation anticyclonique de la haute troposphère. Les masses d'air s'élèvent alors lentement vers la basse stratosphère (Boothe et al., 2016).

2.3 Cycles saisonniers des échanges stratosphère-troposphère

Au-delà des distributions spatiales, les cycles saisonniers dans chaque hémisphère sur base des mêmes données de modèle permettent la mise en évidence de la période de l'année propice aux STE (Appenzeller et al., 1996 ; Lamarque et al., 1999 ; Olsen et al., 2002 ; Sprenger & Wernli., 2003 ; Stohl et al., 2003 ; Tang et al., 2011 ; Škerlak et al., 2013, 2014 et Boothe et al., 2016). Ils sont présentés sur la figure 2.4.

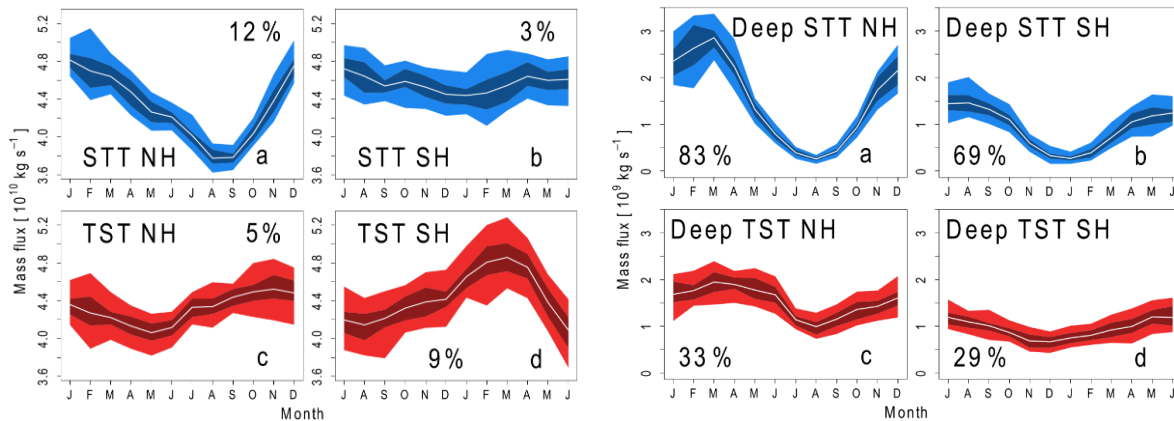


Fig. 2.4 - Cycles saisonniers des flux massiques associés aux STT (bleu) et TST (rouge) dans les deux hémisphères et moyennés de 1979 à 2011. Les cycles saisonniers des STE profonds sont illustrés à droite. Les zones ombragées représentent les 5° et 95° percentiles (clairs) et les 25° et 75° percentiles (focés) des valeurs mensuelles et la ligne blanche est la valeur moyenne sur 33 ans. La saisonnalité, indiquée en pourcentage, est calculée comme $S=(\min-\max/\max+\min)\times 100$, où max et min sont les valeurs maximales et minimales du cycle moyen. (Škerlak et al., 2013).

Le cycle saisonnier du flux massique associé aux STT dans l'H.N. est marqué par un maximum en hiver quand l'activité cyclonique au-dessus du Pacifique et Atlantique Nord est la plus forte et par un minimum autour d'août et septembre. Dans l'H.S., les STT présentent des valeurs de flux massique plus ou moins constantes tout au long de l'année, avec un maximum et un

minimum peu prononcé en hiver et en été austral (février), respectivement. Le flux des masses d'air associés aux TST dans l'H.N. présente un maximum en novembre et un minimum en mai. Dans l'H.S., un pic apparaît clairement en mars ; il est suivi d'une diminution entre avril et juin puis d'une légère augmentation pour le reste de l'année.

La figure 2.4 à droite montre la saisonnalité spécifiquement pour les événements de STT profonds. Ceux-ci se produisent abondamment en hiver et au début du printemps (en mars dans l'H.N. et en août dans l'H.S.) et atteignent des minima en été (en août dans l'H.N. et en janvier dans l'H.S.). Les TST profonds possèdent un cycle saisonnier peu marqué, surtout de janvier à juin ; le flux massique diminue ensuite légèrement pour atteindre un minimum en août avant de ré-augmenter jusqu'en janvier. Dans l'H.S, ce flux indique un maximum entre mars et juillet et un minimum en décembre (Škerlak et al., 2013).

2.4 Impact du transport stratosphère-troposphère sur la chimie troposphérique

Les intrusions stratosphériques d'ozone ont pour conséquence d'affecter le schéma de la circulation troposphérique ainsi que la capacité oxydante de l'atmosphère. En effet, c'est la photolyse de l'ozone dans la troposphère qui, en présence de vapeur d'eau, conduit à la production des radicaux hydroxyles. Il s'ensuit une augmentation de la capacité oxydante atmosphérique. L'impact sur la composition de la troposphère est large étant donné que le radical hydroxyle régule les concentrations de nombreux composés. En particulier, son augmentation conduit à une plus grande dégradation du CO, du CH₄ et des COVNM et, une perte plus rapide des NO_x (section 1.2.1).

La contribution d'ozone stratosphérique à l'ozone troposphérique est importante mais sa quantification précise est difficile. Au cours des dernières années, diverses études de modélisation ont estimé que la contribution stratosphérique à l'ozone troposphérique pourrait être plus importante que prévu. Par exemple, Lamarque et al. (1999) ont évalué, à l'aide d'un modèle tridimensionnel, que l'influence des STT sur l'ozone troposphérique dans la basse troposphère vaut 10-20 % et dans la haute troposphère, 40-50 %. D'autres études montrent une influence entre 25 et 50 % en moyenne annuelle dans la basse et moyenne troposphère extratropicale (e.g., Lelieveld et Dentener, 2000). Des études basées sur des observations suggèrent une grande variabilité spatio-temporelle. Une contribution importante des intrusions stratosphériques a ainsi été mise en évidence durant le printemps et l'hiver en Arctique canadien (10-15 %, Dibb et al., 1994) et en Europe (e.g., Stohl et al., 2000 ; Zanis et al., 2003 et Colette & Ancellet, 2005). Au-dessus de 3 sites voisins de l'océan Austral, de la Chine et des régions du Nord-Est des États-Unis, l'influence de l'ozone stratosphérique a été estimée entre 1-3,5 % et 15 % durant le printemps et de 20 à 25 % durant l'été, respectivement (Thompson et al., 2007 ; Greenslade et al. 2017 et Wang et al., 2020). Des valeurs similaires de contributions ont été constatées pour 18 sites Nord-Américains sur base des données de sondes d'ozone entre 2006 et 2011 (Tarasick et al., 2019). Selon Williams et al. (2019), les valeurs d'influence stratosphérique mesurées à l'aide des sondes d'ozone entre 2005 et 2007, sont encore plus importantes (34 % ou 22 ppb) dans la moyenne et haute troposphère et diminuent à 13 % (5,4 ppb) et 3,1 % (1,2 ppb) dans la basse troposphère. L'impact de l'ozone stratosphérique sur

l’ozone de la troposphère n’a été étudié que de manière parcellaire via des mesures satellitaires comme par exemple, Ladstätter-Weissenmayer et al. (2004), El Amraoui et al. (2010), Barré et al. (2012) et Venkat Ratnam et al. (2016).

Dans l’ensemble, les différentes études de modélisation et d’observations montrent des contributions stratosphériques de manière localisées et non globales et donnent des chiffres différents en fonction des saisons, de la situation géographique et des années. Ces chiffres sont compilés dans la table 2.1. Afin de mieux visualiser l’impact des intrusions stratosphériques sur l’ozone troposphérique, il est nécessaire d’arriver à une étude plus globale et cohérente.

Contribution d’O₃ strato. à l’O₃ tropo. (en %)	Région	Référence	Moyen
10-20 ; 40-50	Global	Lamarque et al. (1999)	Modèle
25-50	Extratropiques	Lelieveld et Dentener (2000)	
10-15	Arctique canadien	Dibb et al. (1994)	Observations (sonde)
15-25	Europe	Stohl et al. (2000)	
3-18	Europe	Zanis et al. (2003)	
-	Europe	Colette & Ancellet (2005)	
1-3.5	Océan Austral	Greenslade et al. (2017)	
15	Chine	Wang et al. (2020)	
20-25	Nord-Est des États-Unis	Thompson et al. (2007)	
34 ; 3.1-13	Canada	Tarasick et al. (2019)	
25-30 ; 50-80	Global	Williams et al. (2019)	
-	Pacifique Ouest	Ladstätter-Weissenmayer et al. (2004)	
-	Royaume-Uni	El Amraoui et al. (2010)	
-	Europe	Barré et al. (2012)	
-	Océan Indien	Venkat Ratnam et al. (2016)	

Table 2.1 - Résumé des contributions de l’ozone stratosphérique à l’ozone troposphérique (en %) observées selon différentes références.

2.5 Futurs changements des échanges stratosphère-troposphère

Des modifications de l’abondance et de la distribution de l’ozone troposphérique sont attendues à l’avenir suite aux changements climatiques, à l’augmentation des gaz à effet de serre ou encore aux variations des émissions des précurseurs. Les changements du climat induisent des modifications dans la circulation de Brewer-Dobson et par conséquent dans les STE (sections 2.1.1 et 2.1.2). Une augmentation des gaz à effet de serre induit une propagation des ondes planétaires plus intense en raison du réchauffement de la troposphère. La circulation de Brewer-Dobson entraîne alors une descente des parcelles d’air plus forte, l’ozone s’accumule dans la plus basse stratosphère dans les régions extratropicales et peut être transporté dans la troposphère. La quantification de la tendance future du flux d’ozone stratosphérique vers la troposphère est variable selon les études menées : Butchart et Scaife (2001) estiment une augmentation des STT d’environ 3 % par décennie tandis que d’autres études (Hegglin & Shepherd, 2009 ; Zeng et al., 2010 et Abalos et al., 2020) affirment que le flux d’ozone stratosphérique augmenterait entre 10 et 40 % durant le 21^{ème} siècle en raison des changements climatiques.

Chapitre 3

Principes du rayonnement et observations spatiales dans l'infrarouge

Le sondage de l'atmosphère ou la télédétection consiste à obtenir des informations sur un objet à distance. Cette technique repose sur les mesures du rayonnement électromagnétique qui, après s'être propagé dans l'atmosphère, a été absorbé, émis ou diffusé par les constituants atmosphériques. Le transfert radiatif permet de décrire cette interaction entre l'atmosphère et le rayonnement électromagnétique. Dans le cadre de ce travail, à partir des mesures du rayonnement dans la gamme de l'infrarouge thermique (TIR), les concentrations d'ozone sont restituées à l'aide des mesures de l'instrument IASI, l'Interféromètre de Sondage Atmosphérique Infrarouge, en visée au nadir (observation de la radiation de l'espace vers le bas) et en utilisant une méthode d'inversion adaptée.

Dans ce chapitre, nous décrivons d'abord l'interaction entre le rayonnement et les constituants atmosphériques sur base des propriétés spectroscopiques des molécules ; il s'agit du transfert radiatif. Ensuite, la méthode d'inversion de l'estimation optimale est présentée afin d'expliquer comment les propriétés de la Terre et de l'atmosphère (dans notre cas, les concentrations d'ozone) sont déterminées sur base des spectres enregistrés. Pour finir, la dernière section de ce chapitre donne une description des caractéristiques de l'instrument IASI ainsi que de l'algorithme d'inversion FORLI pour l'ozone.

3.1 Transfert radiatif

Le transfert radiatif décrit l'interaction entre l'atmosphère et le rayonnement électromagnétique via deux processus : l'absorption et l'émission. Nous négligeons ici la diffusion qui est généralement plus faible dans l'infrarouge thermique (TIR). Les éléments décrits dans cette section proviennent principalement des ouvrages de Mohanakumar (2008) et de Seinfeld & Pandis (2016).

3.1.1 Interaction rayonnement-matière

Le transfert radiatif est le processus de transfert d'énergie lors de la propagation d'un rayonnement électromagnétique à travers un milieu. Ce rayonnement électromagnétique est caractérisé par sa longueur d'onde λ (nm) ou son nombre d'onde $\tilde{\nu}$ (cm^{-1}) qui est inversement proportionnel à la longueur d'onde,

$$\tilde{\nu} = 1/\lambda \quad (3.1)$$

Comme le nombre d'onde et la longueur d'onde varient de plusieurs ordres de grandeurs, il est utile de diviser la radiation électromagnétique en différents domaines dont le TIR qui s'étend de 700 nm à 10^6 nm (figure 3.1).

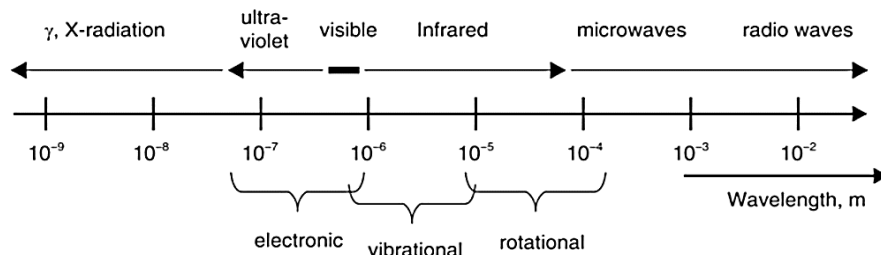


Fig. 3.1 - Spectre électromagnétique et transitions spectroscopiques (électroniques, vibrationnelles et rotationnelles) des molécules (Burrows et al., 2011).

Le spectre électromagnétique permet également de rendre compte du type de transitions atomiques ou moléculaires qui donne lieu à l'absorption ou à l'émission de photons. Les transitions entre un état énergétique E_2 et un état énergétique E_1 donne l'énergie d'un photon, ΔE , émis ou absorbé par la molécule,

$$\Delta E = E_2 - E_1 = hc\tilde{\nu}_{12} \quad (3.2)$$

Avec h la constante de Planck ($6,626 \cdot 10^{-34}$ J.s) et c la vitesse de la lumière dans le vide ($2,99792 \cdot 10^8$ m.s $^{-1}$). Ces transitions entre deux états d'énergie donnent lieu à un spectre de raies.

Etant donné la séparation entre les états/niveaux d'énergie des molécules, il existe trois types de transitions de niveaux énergétiques possibles (figure 3.1) : les transitions électroniques se produisant avec des rayonnements ultraviolets et visibles ; les transitions vibrationnelles s'expriment dans le domaine infrarouge (IR) et les transitions rotationnelles, dans l'IR et les micro-ondes.

Dans ce travail, nous nous intéressons à des mesures d'ozone effectuées dans le domaine spectral de l'IR. Nous nous focalisons uniquement sur la structure des spectres de rotation-vibration de l'ozone.

3.1.2 Spectre de l'ozone dans l'infrarouge thermique

Une molécule polyatomique possède $3N$ degrés de liberté où N est le nombre d'atomes composant la molécule, parmi lesquels $3N-6$ degrés ($3N-5$ si la molécule est linéaire) sont associés aux vibrations de la molécule. L'ozone étant une molécule triatomique ($N = 3$) non-linéaire, elle possède trois modes de vibrations : ν_1 , ν_2 , ν_3 correspondants à un étirement symétrique, un pliage et un étirement asymétrique et présentés à la figure 3.2.

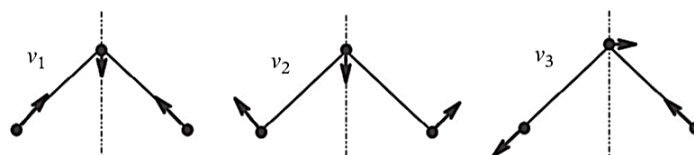


Fig. 3.2 - Modes de vibration des molécules triatomiques non linéaires (Chance & Martin, 2017).

La figure 3.3 illustre une portion du spectre de l'ozone qui correspond aux bandes des modes de vibrations ν_1 et ν_3 impliqués dans la bande à 1000 cm^{-1} (la plus intense).

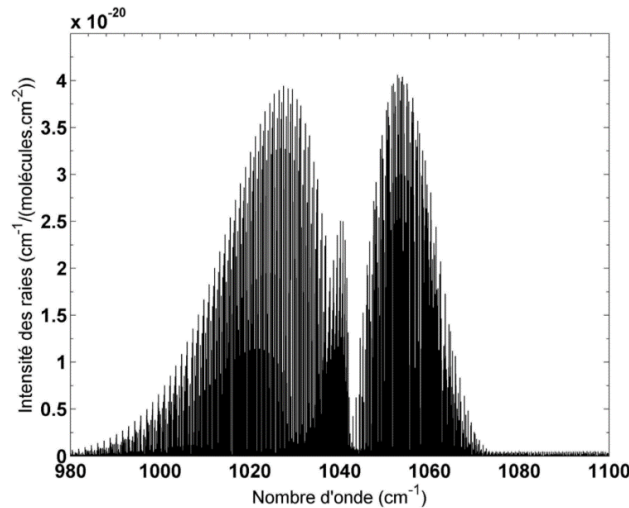


Fig. 3.3 - Spectre d'absorption (en section efficace) des bandes ν_1 et ν_3 de l'ozone à 296 K extrait de la base de données spectroscopique HITRAN 2004 (Rothman et al., 2005).

La télédétection des molécules atmosphériques nécessite une connaissance très précise des paramètres moléculaires des raies d'absorption (position, intensité, énergie, ...). Pour cette raison, des bases de données spectroscopiques telles que HITRAN (HIGH-resolution TRANsmission molecular absorption database) et GEISA (Gestion et Etudes des Informations Spectroscopiques Atmosphériques) ont été développées. Elles comprennent les paramètres spectroscopiques des molécules nécessaires à la modélisation des spectres d'atmosphères planétaires.

3.1.3 Emission du rayonnement

Comme mentionné précédemment, le rayonnement utilisé pour ce travail est le rayonnement TIR émis par la Terre et l'atmosphère en faisant l'hypothèse que ces derniers sont proches des corps noirs. Un corps noir est un objet ou un système qui absorbe parfaitement tout le rayonnement incident et le réémet également parfaitement. L'intensité spectrale du rayonnement thermique d'un corps noir ($W/(cm^2.sr.cm^{-1})$) ne dépend que de la température T du corps et est donnée par la fonction de Planck,

$$B_{\tilde{\nu}}(T) = \frac{2h\tilde{\nu}^3c^2}{\left(\exp\left(\frac{h\tilde{\nu}c}{k_B T}\right) - 1\right)} \quad (3.3)$$

Avec h la constante de Planck, c la vitesse de la lumière dans le vide et k_B la constante de Boltzmann ($1,38 \cdot 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$). La figure 3.4 illustre les spectres d'émission thermique de corps noir à diverses températures.

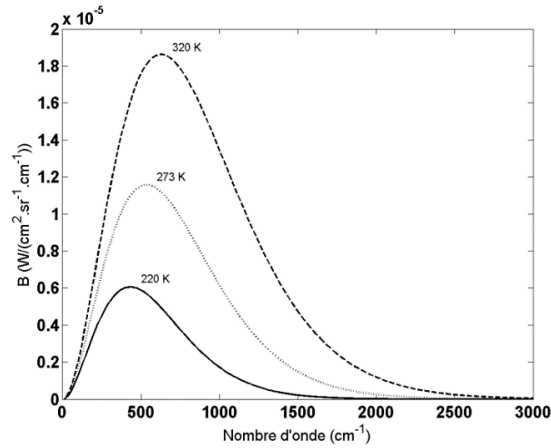


Fig. 3.4 - Distributions spectrales de la radiance d'un corps noir en fonction du nombre d'onde et de la température entre 220 et 320 K.

La Terre et l'atmosphère ne sont pas des corps noirs parfaits, ils sont appelés des corps gris et émettent moins de rayonnement que les corps noirs. L'émissivité spectrale $\varepsilon_{\bar{\nu}}$ d'un corps gris est définie comme le rapport entre la radiance émise par le corps réel $L_{\bar{\nu}}$ à la température T et celle du corps noir à la même température $B_{\bar{\nu}}(T)$,

$$\varepsilon_{\bar{\nu}} = L_{\bar{\nu}}/B_{\bar{\nu}}(T), \quad 0 \leq \varepsilon_{\bar{\nu}} \leq 1 \quad (3.4)$$

La loi de Kirchoff stipule que lorsqu'un corps est à l'équilibre thermodynamique (quand nous pouvons définir une température uniforme), il émet la même quantité d'énergie qu'il en absorbe. L'absorptivité et l'émissivité du corps sont alors égales.

3.1.4 Equation du transfert radiatif dans l'infrarouge

Pour décrire l'équation du transfert radiatif dans le TIR, nous nous plaçons dans la situation qui correspond à celle de l'instrument IASI au centre de ce travail (IASI est décrit plus loin en section 3.3). Il s'agit d'observations selon une visée au nadir, l'instrument capture donc l'intensité émise par la surface, modifiée par sa propagation dans une atmosphère qui absorbe et émet (figure 3.5).

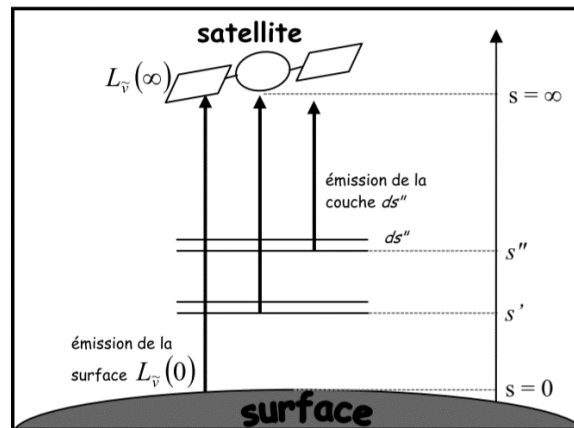


Fig. 3.5 - Schéma des observations spatiales en visée au nadir du rayonnement IR. Les couches atmosphériques sont représentées avec une certaine épaisseur ds , $L_{\bar{\nu}}(0)$ représente l'intensité du rayonnement au sol et, $L_{\bar{\nu}}(\infty)$ au niveau du satellite.

L'intensité reçue $L_{\tilde{\nu}}^{\uparrow}(\text{sat}) (= L_{\tilde{\nu}}^{\uparrow}(\infty))$, s'exprime par (nous renvoyons le lecteur à Petty (2006) pour la dérivation de cette expression),

$$L_{\tilde{\nu}}^{\uparrow}(\infty) = L_{\tilde{\nu}}^{\uparrow}(z_{TOA}) = L_{\tilde{\nu}}(z_0) t_{\tilde{\nu}}(z_0, z_{TOA}) + \int_{z_0}^{z_{TOA}} B_{\tilde{\nu}}(T_z) \frac{dt_{\tilde{\nu}}(z, z_{TOA})}{dz} dz \quad (3.5)$$

Avec,

- z_0 l'altitude de la surface et z_{TOA} l'altitude au sommet de l'atmosphère (au niveau du satellite) ;
- $L_{\tilde{\nu}}(z_0)$ l'intensité lumineuse (ou radiance) de la surface exprimée comme un corps gris,

$$L_{\tilde{\nu}}(z_0) = \varepsilon_{\tilde{\nu}} B_{\tilde{\nu}}(T_{z_0}) + (1 - \varepsilon_{\tilde{\nu}}) L_{\tilde{\nu}}^{\downarrow}(z_0) \quad (3.6)$$

où $L_{\tilde{\nu}}^{\downarrow}(z_0)$ est l'intensité lumineuse descendante réfléchiée par la surface ;

- $t_{\tilde{\nu}}(z_i, z_j)$ la transmittance de la couche atmosphérique entre les deux bornes d'altitude z_i et z_j , telle que, pour les n espèces atmosphériques,

$$t_{\tilde{\nu}} = \prod_n \exp(-\sigma_n \rho_n (z_i - z_j)) \quad (3.7)$$

où σ représente la section efficace ($\text{cm}^2 \cdot \text{molécules}^{-1}$) et ρ est la densité moléculaire ($\text{molécules} \cdot \text{cm}^{-3}$) ;

- $B_{\tilde{\nu}}(T_z)$ la fonction de Planck à la température de l'atmosphère correspondant à l'altitude z (section 3.1.3) ;
- dt/dz la fonction de poids, qui informe sur la partie de l'atmosphère où l'instrument est le plus sensible.

L'équation (3.5) nous montre donc que la radiance reçue au satellite est la somme de deux termes : le premier correspond à la radiance de surface atténuée par la colonne atmosphérique et le second à l'émission thermique de l'atmosphère, à chaque altitude z , atténuée par l'atmosphère restant au-dessus. En pratique, l'équation (3.5) est résolue en discrétisant l'atmosphère en couche que l'on considère isothermes.

3.2 Restitution des propriétés atmosphériques

Nous venons de voir que l'instrument satellitaire mesure l'intensité du rayonnement électromagnétique après son passage dans l'atmosphère. Il ne permet pas une mesure directe d'une variable telle que la concentration d'un gaz atmosphérique. L'équation du transfert radiatif permet de générer le spectre de radiance à la sortie de l'atmosphère en moyennant la connaissance de l'état de l'atmosphère (profil vertical de la température, composés chimiques, ...). En télédétection, c'est le procédé inverse qui importe et qui consiste, à partir du spectre mesuré, à déterminer l'état de l'atmosphère à l'endroit de la mesure. Dans notre cas, il s'agit de

restituer le profil de l’ozone à partir des mesures d’un spectre incluant les signatures d’absorption et d’émission de ce gaz dans le domaine de l’IR. La méthode d’inversion utilisée au long de ce travail est basée sur la méthode d’estimation optimale (OEM, Optimal Estimation Method) qui elle-même se base sur l’approche probabiliste de Bayes. Le problème inverse et la méthode d’inversion sont détaillés dans cette section à partir de Rodgers (2000).

3.2.1 Problème inverse

Les problèmes inverses sont une classe de problèmes caractérisés par l’absence de mesure directe de la variable d’intérêt. Celle-ci est déterminée via la mesure d’une autre quantité à laquelle elle est reliée par un modèle théorique. Le problème inverse exprime l’équation générale du transfert radiatif (équation 3.5) comme,

$$y = F(x, b) + \varepsilon \quad (3.8)$$

Avec y le vecteur de mesures, F le modèle direct, c’est-à-dire, la fonction directe du transfert radiatif, x le vecteur d’état de dimension n (où n est le nombre d’inconnues) qui représente la quantité à déterminer. Dans notre cas, il s’agit de déterminer les concentrations de l’ozone à différentes altitudes. b englobe les quantités impactant la mesure mais qui ne seront pas restituées. Dans le cas d’une mesure au nadir, b inclut notamment les caractéristiques de la surface terrestre radiative (émissivité et température), les variables qui décrivent l’état de l’atmosphère et les caractéristiques de l’instrument (fonction de réponse spectrale et résolution). Pour finir, ε est le vecteur qui représente le bruit de la mesure.

Le problème de la restitution de l’état de l’atmosphère est un problème sous-contraint, c’est-à-dire que le nombre d’inconnues est supérieur au nombre de mesures. Une observation pour le problème inverse conduit à un nombre multiple de solutions. Pour résoudre ce problème et réduire le nombre de solutions, on se base sur une connaissance *a priori* de l’état de l’atmosphère qui sert de contrainte pour la solution.

3.2.2 Méthode de l’estimation optimale

La méthode de l’estimation optimale permet de trouver la solution au problème inverse qui est la plus cohérente à la fois avec la mesure et avec la connaissance de l’atmosphère que l’on a avant que la mesure soit faite (*a priori*). L’approche probabiliste de Bayes introduit la fonction de densité de probabilité (PDF) pour décrire une variable aléatoire en prenant compte son incertitude. Par exemple, la PDF $P(x) dx$ est la probabilité que les composantes de x se trouvent dans l’intervalle multidimensionnel $(x, x + dx)$. La plupart des PDF sont représentées par des fonctions gaussiennes mais peuvent s’exprimer en vecteurs. Définissons tout d’abord deux probabilités qui lient les deux vecteurs x et y :

- $P(x, y)$ est la probabilité jointe du vecteur x et du vecteur y . Elle est définie telle que $P(x, y) dx dy$ est la probabilité que x se trouve dans $(x, x + dx)$ et y dans $(y, y + dy)$.

- $P(x|y)$ est la probabilité conditionnelle définie telle que $P(x|y) dx$ est la probabilité que x se trouve dans $(x, x + dx)$ quand y a une certaine valeur. De manière similaire, $P(y|x) dy$ est la probabilité que y se trouve dans $(y, y + dy)$ quand x a une certaine valeur.

En utilisant ces définitions, on peut montrer que,

$$P(x, y) = P(x|y) P(y) \quad (3.9)$$

Comme $P(x, y) = P(y, x)$, on obtient,

$$P(x|y) P(y) = P(y|x) P(x) \quad (3.10)$$

De cette équation, on peut écrire le théorème de Bayes,

$$P(x|y) = \frac{P(y|x) P(x)}{P(y)} \quad (3.11)$$

Avec,

- $P(x|y)$ la PDF de l'état de l'atmosphère quand la mesure a été faite. Il s'agit de notre inconnue ;
- $P(y|x)$ la PDF de la mesure y si l'état de l'atmosphère x est connu. L'équation du transfert radiatif permet de calculer y pour un état atmosphérique x ;
- $P(x)$ la PDF de l'état de l'atmosphère avant que la mesure soit faite, il s'agit de la connaissance *a priori* de l'état de l'atmosphère ;
- $P(y)$ la PDF de la mesure y . C'est un facteur de normalisation qui n'est généralement pas nécessaire.

Le théorème de Bayes permet de relier l'état de l'atmosphère après la mesure à notre connaissance du transfert radiatif et à notre connaissance *a priori* de l'atmosphère tout en tenant compte de l'erreur de la mesure. Ce théorème fournit un ensemble d'états atmosphériques (une densité de probabilité) qui pourrait être solution au problème inverse. Parmi ces solutions, certaines seront plus probables que d'autres. Nous cherchons à trouver la solution la plus probable, c'est-à-dire celle qui maximise $P(x|y)$. Nous parlons du maximum a posteriori (MAP). Dans le cas d'un problème linéaire, la solution (la meilleure estimation de x), notée \hat{x} est donnée par,

$$\hat{x} = x_a + (S_a^{-1} + K^T S_\varepsilon^{-1} K)^{-1} K^T S_\varepsilon^{-1} (y - K x_a) \quad (3.12)$$

Avec,

- x_a le profil *a priori*, le profil le plus probable avant que la mesure soit faite ;
- S_a la matrice de covariance *a priori* associée au profil (de dimension $n \times n$ où n est le nombre d'inconnues), c'est l'incertitude sur le profil *a priori* x_a ;

- S_ε la matrice de covariance d'erreur de mesure (de dimension $m \times m$ où m est le nombre de mesures). Ses éléments diagonaux contiennent les variances des distributions des erreurs de mesure, c'est-à-dire le bruit de la mesure pour chaque nombre d'onde ;
- $K (m \times n) = \frac{\partial y}{\partial x}$ la matrice jacobienne qui exprime la sensibilité de la mesure aux paramètres que nous recherchons.

Cette solution est donc associée à une matrice de covariance d'erreurs \hat{S} qui s'exprime par,

$$\hat{S} = (S_a^{-1} + K^T S_\varepsilon^{-1} K)^{-1} \quad (3.13)$$

Dans le cas d'un problème non-linéaire, la solution est trouvée par un processus itératif. La solution est obtenue lorsque la convergence est atteinte, c'est-à-dire lorsque la différence entre les spectres reconstruits lors de deux itérations successives est inférieure à une valeur seuil prédéfinie. A chaque itération i , un nouveau vecteur \hat{x} est évalué, il est donné par,

$$\hat{x}_{i+1} = x_a + (S_a^{-1} + K_i^T S_\varepsilon^{-1} K_i)^{-1} K_i^T S_\varepsilon^{-1} [y - F(\hat{x}_i) + K_i (\hat{x}_i - x_a)] \quad (3.14)$$

3.2.3 Caractéristiques et erreurs sur la mesure

La solution du problème inverse linéaire est associée à une matrice de covariance d'erreurs \hat{S} (équation 3.13). En général, la matrice de covariance comprend trois principales sources d'erreurs :

- L'erreur de lissage rend compte du lissage de l'état restitué par rapport à l'état réel. En effet, l'instrument ne possède pas une résolution verticale infinie et l'état restitué est lissé, entraînant une erreur par rapport à l'état réel. La sensibilité verticale de restitution de la quantité d'intérêt est caractérisée par des fonctions de lissage, appelées averaging kernels. Elles s'expriment comme une matrice $A (n \times n)$ donnée par,

$$A = \frac{\partial \hat{x}}{\partial x} \quad (3.15)$$

Chaque ligne de la matrice est associée à un niveau vertical (dans le cas de la restitution d'un profil) et indique la sensibilité verticale de l'instrument à ce niveau. Cette matrice peut également s'écrire comme,

$$A = (S_a^{-1} + K^T S_\varepsilon^{-1} K)^{-1} K^T S_\varepsilon^{-1} K \quad (3.16)$$

Le nombre d'éléments d'informations indépendants dans une mesure peut être estimé comme le nombre de degrés de liberté (DOFS, Degrees Of Freedom for Signal). Dans notre cas de restitution du profil de l'ozone, il correspond au nombre de colonnes partielles indépendantes sur la restitution du profil vertical. Le DOFS correspond à la trace de la matrice moyenne de A .

- L'erreur sur les paramètres du modèle explique les erreurs d'inversion dues aux paramètres fixés b du modèle direct.
- L'erreur de mesure est associée au bruit radiométrique.

3.3 Mission IASI/MetOp

Dans cette section, nous décrivons l'instrument IASI et ses caractéristiques instrumentales. Le satellite MetOp sur lequel le sondeur est embarqué est brièvement présenté ainsi que FORLI, le logiciel de transfert radiatif et d'inversion basé sur la méthode d'estimation optimale. Les informations sur l'instrument ont été extraites principalement de Cayla (2001), de Clerbaux et al. (2009) et de Blumstein et al. (2014).

3.3.1 Conception instrumentale et orbite

L'instrument IASI (Interféromètre Atmosphérique de Sondage Infrarouge) consiste en un spectromètre à transformée de Fourier. Il a été développé par le CNES (Centre National d'Etudes Spatiales) dans le cadre d'une coopération avec EUMETSAT (EUropean organization for the exploitation of METeorological SATellites). Il est conçu pour mesurer, en visée au nadir, le spectre émis par la surface terrestre et l'atmosphère dans la gamme spectrale de l'infrarouge thermique (TIR).

Le premier modèle IASI a été lancé en 2006 pour une durée de vie de 5 ans depuis l'orbite polaire du satellite MetOp-A (Météorologie Opérationnelle), développé par l'Agence Spatiale Européenne (ESA), à une altitude d'environ 817 km. Le satellite est héliosynchrone avec une inclinaison de $98,7^\circ$ à l'équateur et fournit les informations en milieu de matinée (à 9h30, heure locale) et au soir (21h30). Le second et le troisième modèles IASI ont été embarqués à bord des plateformes MetOp-B et MetOp-C, en avril 2012 et en octobre 2016, respectivement.

L'objectif de la mission MetOp est d'enregistrer des données en continu et sur le long terme pour la surveillance du climat mondial, des prévisions environnementales et météorologiques. Pour atteindre cet objectif, IASI fournit des mesures sur une série de gaz traces atmosphériques tels que l' O_3 , le CH_4 , le CO , etc. et des informations sur la température de surface des océans et des continents ainsi que sur l'humidité atmosphérique.

D'autres instruments se trouvent à bord de MetOp (figure 3.6) et peuvent être associés avec IASI (e.g., AVHRR, Advanced Very High Resolution Radiometer, qui caractérise les nuages présents dans le champ de vue de IASI).

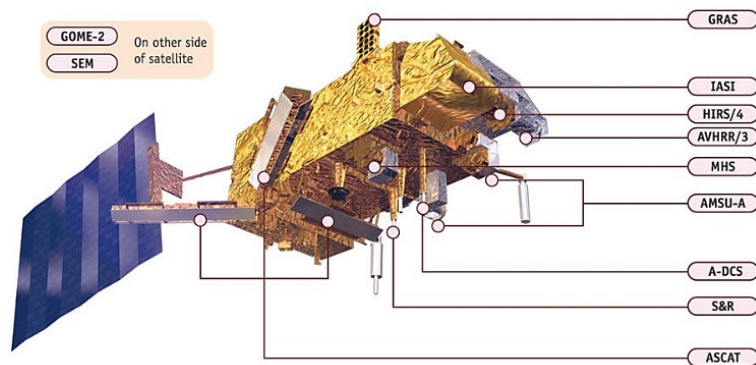


Fig. 3.6 - Différents instruments sur le satellite MetOp dont IASI (<http://www.eumetsat.int>)

3.3.2 Caractéristiques de IASI

La table 3.1 reprend l'ensemble des caractéristiques du satellite MetOp-A et de l'instrument IASI.

Metop A	Launched on October 19, 2006
Altitude	~817 km
Orbit	Polar sun-synchronous
Inclination	98.7° to the equator
Local time	~09:30, descending orbit
Time for one orbit	101 min
Repeat cycle	29 days (412 orbits)
IASI	Fourier transform spectrometer
Size and weight	1.7 m ³ , 236 kg
Spectral range	645 to 2760 cm ⁻¹
Spectral resolution	0.3–0.5 cm ⁻¹ (0.5 cm ⁻¹ apodized)
Radiometric noise (NeΔT at 280 K)	<0.1–0.2 K (650–1750 cm ⁻¹) 0.2–0.4 K (1750–2500 cm ⁻¹)
Scan type	Step and dwell
Field of view	50 km (3.33°) at nadir, with 4 simultaneous pixels of 12 km
Full swath width	~2200 km (±48.3°), 120 pixels
Global Earth coverage	2 times per day
Data rate	1.5 Mbps (after onboard processing), 120 radiance spectra every 8 s ~1 300 000 observations per day
Lifetime	5 years

Table 3.1 - Caractéristiques de l'instrument IASI embarqué sur le satellite MetOp-A (Clerbaux et al., 2009).

Couverture horizontale

L'instrument IASI balaie la Terre à la verticale mais jusqu'à un angle de 48,3° de part et d'autre de la trajectoire du satellite. Cela correspond à 2 × 15 visées sur une largeur de fauchée d'environ 2 × 1100 km. Pour chaque visée, le champ de vue échantillonné (50 km) est composé de 4 pixels circulaires (matrice 2 × 2) de 12 km de diamètre d'empreinte au sol et d'un angle conique de 3,3° au sommet. Le champ de vue de IASI est représenté sur la figure 3.7.

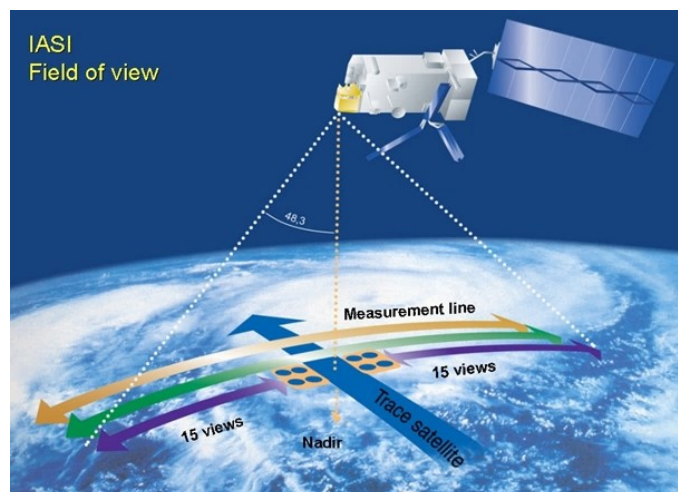


Fig. 3.7 - Schéma du champ de vue de l'instrument IASI en orbite héliosynchrone à basse altitude (Blumstein et al., 2004).

Gamme spectrale

IASI mesure le rayonnement IR dans la gamme spectrale s'étendant de 645 cm^{-1} ($15,5 \mu\text{m}$) à 2760 cm^{-1} ($3,62 \mu\text{m}$). Chaque pixel IASI est imagé sur trois détecteurs associés à trois bandes spectrales avec un échantillonnage spectral constant de $0,25 \text{ cm}^{-1}$: la première bande s'étend de 645 à 1210 cm^{-1} et inclut la forte bande d'absorption de l'ozone à $9,6 \mu\text{m}$ qui permet la restitution des profils verticaux de ce composé, la deuxième bande de 1210 à 2000 cm^{-1} et la troisième bande de 2000 à 2760 cm^{-1} . La table 3.2 montre les absorptions moléculaires principales qui se produisent dans cette gamme spectrale.

Nom	Région spectrale	Absorbants concernés	Applications de IASI
R1	650 à 770 cm^{-1}	Bande d'absorption de CO_2	Profil de température
R2	790 à 980 cm^{-1}	Fenêtre atmosphérique	Propriétés des surfaces et des nuages
R3	1 000 à 1 070 cm^{-1}	Bande d'absorption de O_3	Sondage de O_3
R4	1 080 à 1 150 cm^{-1}	Fenêtre atmosphérique	Propriétés des surfaces et des nuages
R5	1 210 à 1 650 cm^{-1}	Bande d'absorption de H_2O	Profil de vapeur d'eau - Contenu en CH_4 et N_2O
R6	2 100 à 2 150 cm^{-1}	Bande d'absorption de CO	Contenu en CO
R7	2 150 à 2 250 cm^{-1}	Bandes d'absorption de N_2O et de CO_2	Profil de température - Contenu en N_2O
R8	2 350 à 2 420 cm^{-1}	Bande d'absorption de CO_2	Profil de température
R9	2 420 à 2 700 cm^{-1}	Fenêtre atmosphérique	Propriétés des surfaces et des nuages
R10	2 700 à 2 760 cm^{-1}	Bande d'absorption de CH_4	Contenu en CH_4

Table 3.2 - Régions spectrales utilisées par l'instrument IASI (Cayla, 2001).

Résolution spectrale et bruit radiométrique

Les caractéristiques spectrales de l'instrument IASI sont déterminées par la résolution spectrale et par la précision radiométrique (Clerbaux et al., 2009).

La résolution spectrale est déterminée par la différence de chemin optique du spectromètre à transformée de Fourier choisie, égale à 2 cm. Certains effets sont tels que la résolution spectrale

varie entre 0,35 et 0,5 cm^{-1} sur l'intervalle spectral. Les spectres IASI sont apodisés (niveau 1C) afin que la convolution des spectres calculés à résolution infinie donne une fonction d'instrument caractérisée par une gaussienne de largeur à mi-hauteur égale à 0,5 cm^{-1} sur tout le domaine. L'échantillonnage est de 0,25 cm^{-1} .

Afin garantir une grande précision radiométrique, IASI est calibré en radiance à partir d'un corps noir chaud embarqué sur le satellite MetOp (CNC à 293 K) et de l'espace froid (DS, Deep Space à 2.7 K). La précision radiométrique est déterminée par une différence de température équivalente au bruit (Noise Equivalent Temperature Difference, NEDT) pour une température de référence de 280 K. Le bruit tient compte de toutes les sources de bruit et d'erreurs assimilées au bruit. Au niveau 1C, les spectres se caractérisent par une NEDT d'environ 0,2 K en dessous de 2200 cm^{-1} (qui comprend la bande de l'ozone), sauf pour la gamme 1800-2000 cm^{-1} , où il atteint 0,3 K. Dans la gamme 1150-1500 cm^{-1} , le bruit est inférieur à 0,1 K. A partir de 2200 cm^{-1} , le bruit augmente rapidement vers le domaine spectral du proche IR.

Vitesse du traitement des données

Le balayage complet de l'instrument IASI est de 8 secondes, ce qui fournit environ 1 300 000 spectres par jour. Le débit des données est de 45 mégabits par seconde pour mesurer un interférogramme tandis que 1,5 mégabits par seconde sont nécessaires pour réaliser un spectre calibré et apodisé.

3.3.3 Le logiciel FORLI

Le logiciel FORLI (Fast Optimal Retrievals on Layers for IASI) est un algorithme développé à l'ULB (Université libre de Bruxelles) pour permettre la restitution des colonnes totales et des profils verticaux des espèces traces dans l'atmosphère et cela, à partir des radiances IASI de niveau 1C (Hurtmans et al., 2012).

FORLI comprend un modèle de transfert radiatif et d'inversion. Le modèle d'inversion est basé sur la méthode d'estimation optimale mais le calcul des matrices K (section 3.2.2) se base sur des dérivées analytiques. Le modèle direct ne considère pas un calcul raie-à-raie pour chaque couche de l'atmosphère. Les raies spectrales sont en effet précalculées en utilisant des tables de sections efficaces d'absorption (Look-Up Tables, LUTs) pour différents couples de pression et de température recouvrant le domaine atmosphérique. L'interpolation linéaire pour la température et le logarithme de la pression calcule le spectre atmosphérique couche à couche. Les LUTs ont été construites pour un échantillonnage de 0,025 cm^{-1} . Les spectres simulés sont apodisés à l'aide de la fonction de l'instrument et sont rééchantillonnés selon l'échantillonnage spectral de IASI.

Chapitre 4

Détection, caractérisation et variations spatio-temporelles des intrusions d’ozone stratosphérique par l’instrument satellitaire IASI

Nous avons vu au chapitre 2 que les échanges entre la stratosphère et la troposphère (STE), en particulier le transport de la stratosphère à la troposphère (STT) – ce que nous appelons intrusions stratosphériques – impacte la chimie troposphérique, notamment le bilan de l’ozone troposphérique ainsi que la capacité oxydante de l’atmosphère.

La contribution de l’ozone stratosphérique à l’ozone troposphérique lors des STE est importante mais sa quantification précise est difficile. Diverses études de modélisation combinées à des observations locales (sondes d’ozone) mais également des mesures satellitaires ont permis d’étudier des événements particuliers d’intrusions stratosphériques (e.g., Dibb et al., 1994 ; Stohl et al., 2000 ; Zanis et al., 2003 ; Ladstätter-Weißmayer et al., 2004 ; Colette & Ancellet, 2005 ; Thompson et al., 2007 ; El Amraoui et al., 2010 ; Barré et al., 2012 ; Venkat Ratnam et al., 2016 ; Greenslade et al. 2017 et Wang et al., 2020). Seules de rares études de modélisations ont abordé les intrusions stratosphériques à l’échelle globale et sur une longue période de temps (e.g., James et al., 2003 ; Sprenger & Wernli, 2003 ; Škerlak et al., 2013 et Boothe et al., 2016). Ces précédentes études montrent des influences des STT sur l’ozone troposphérique extrêmement variables (voir table 2.1) en fonction de la période mesurée et de la localisation géographique avec une augmentation des STT au cours du temps en raison des changements climatiques (e.g., Butchart & Scaife, 2001 ; Hegglin & Shepherd, 2009 ; Zeng et al., 2010 et Abalos et al., 2020).

Afin de mieux quantifier l’impact des intrusions stratosphériques sur l’ozone troposphérique à l’échelle globale, il convient de tirer profit de mesures fournies par des instruments embarqués à bord de satellites. Le but de ce travail consiste en particulier à la détection, à la caractérisation et à la quantification des intrusions de l’ozone stratosphérique dans les latitudes moyennes et polaires de la troposphère à l’aide des mesures effectuées par l’instrument IASI sur une période s’étendant de 2008 à 2020. Cet instrument, à bord du satellite MetOp, fournit d’excellentes informations sur la variabilité spatiale et temporelle de l’ozone en raison de son échantillonnage spatio-temporel sans précédent du globe, son bon rapport signal sur bruit, sa résolution spectrale, ainsi que la longue période couverte grâce aux trois instruments IASI successivement lancés (section 3.3). IASI permet également de discriminer la variabilité de l’ozone dans la troposphère et la stratosphère (e.g., Wespes et al., 2016 ; 2018).

Dans la première partie de ce chapitre, nous présentons les mesures d’ozone restituées à partir de l’instrument IASI par le logiciel FORLI (décrit brièvement à la section 3.3.3) en termes de profils verticaux et de distributions globales. La deuxième partie du chapitre consiste à la détection, la caractérisation et la quantification des intrusions stratosphériques. La variabilité

spatiale et temporelle des STT (en termes du nombre d'occurrence) ainsi que leur influence sur l'ozone troposphérique sont finalement étudiées.

4.1 Mesures d'ozone par IASI

Pour chaque mesure de l'instrument IASI, les profils verticaux d'ozone sont restitués à l'aide du logiciel FORLI sur une grille verticale uniforme de 1 km sur 40 couches depuis la surface jusque 40 km d'altitude. Pour ce travail, seules les observations de jour, définies avec un angle zénithal par rapport au Soleil inférieur à 83° , ont été étudiées. Ces données diurnes sont caractérisées par une meilleure sensibilité verticale à la troposphère en raison de la température de surface plus élevée et d'un meilleur contraste thermique (Clerbaux et al., 2009). La sensibilité verticale de l'instrument est caractérisée par les fonctions de lissage A (section 3.2.3) qui relie le profil inversé \hat{x} au profil réel x et au profil *a priori* (la connaissance de l'état de l'atmosphère) par la relation suivante,

$$\hat{x} = x_a + A(x - x_a) + \text{Erreurs} \quad (4.1)$$

Ainsi, la concentration inversée à une altitude donnée est une moyenne des concentrations réelles à toutes les altitudes pondérées par les éléments de la fonction de lissage correspondante. Les fonctions de lissage fournissent donc des informations sur la sensibilité de la mesure aux différentes altitudes sondées et sur le nombre d'informations indépendantes DOFS (nombre de degré de liberté du signal estimé par la trace de la matrice A comme décrit à la section 3.2.3) pouvant être restituées.

La figure 4.1 illustre, pour une observation typique des moyennes latitudes (39° - 42° N/ 6° - 8° O) en juillet, (a) les fonctions de lissage associées à la mesure d'ozone par IASI restituée par FORLI où chaque courbe colorée représente une fonction de lissage caractérisant une altitude sondée (représentée par un point), et (b) le profil du rapport de mélange (VMR, section 1.1.1) d'ozone correspondant avec d'erreur d'inversion associée.

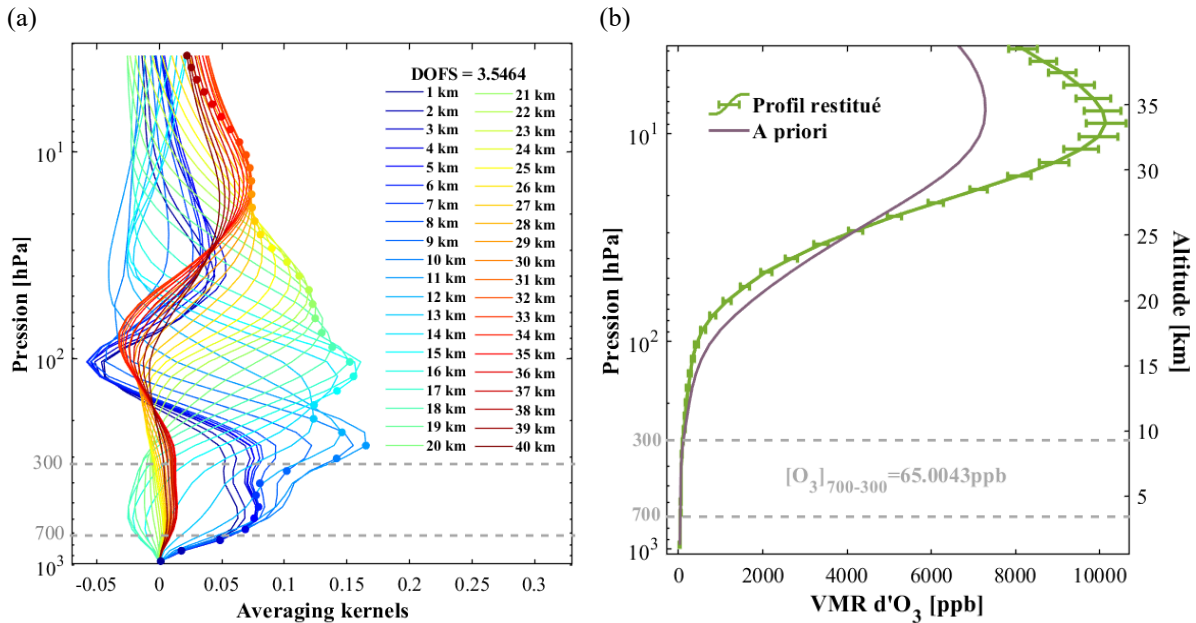


Fig. 4.1 - (a) Fonctions de lissage typique de l'instrument IASI (sans unités) caractérisant un profil d'O₃ restitué par FORLI-O₃, du sol à 40 km d'altitude (échelle de couleur) ; (b) Profil du VMR d'ozone restitué avec erreur totale d'inversion associée (ppb, en vert) et le profil *a priori* (ppb, en mauve) en fonction de la pression (hPa) et de l'altitude (km). Ces profils correspondent à une observation aux latitudes moyennes en juillet (39°-42°N/6°-8°O).

Cet exemple d'observation est caractérisé par un nombre de degré de liberté du signal (DOFS) d'environ 3.5, indiquant que plus de trois colonnes indépendantes peuvent être restituées. La figure 4.1 (a) présente deux pics de sensibilité principaux, autour de 6-10 km d'altitude dans la troposphère et autour de 15-20 km d'altitude dans la basse stratosphère indiquant la discrimination par IASI de la troposphère de la stratosphère.

Nous savons que les intrusions d'ozone stratosphérique affectent l'abondance et la variabilité de l'ozone dans la troposphère. Afin de détecter l'augmentation des concentrations d'ozone à la tropopause, ces concentrations, exprimées en VMR, sont analysées dans la couche troposphérique allant de 700 à 300 hPa (délimitations en pointillés sur la figure 4.1, b ; correspondant à environ 4-10 km d'altitude) où la sensibilité de l'instrument IASI est la plus intense dans la troposphère et où les erreurs totales d'inversion sont en moyenne < 15 % dans cette colonne (Boynard et al., 2018). Rappelons que le VMR (section 1.1.1) est une grandeur qui s'affranchit de la densité de l'air et par conséquent, devrait mieux mettre en évidence, dans la couche considérée, des perturbations de l'ozone à proximité de la tropopause. Une colonne établie sur des niveaux de pression (et non d'altitude) fixes de 700 à 300 hPa permet d'exclure les variations de la hauteur de la tropopause (quasi-constante à 200 hPa) ainsi que d'exclure la basse troposphère où l'instrument IASI est moins sensible à l'ozone. Notons que les intrusions profondes (qui perturbent les masses d'air troposphérique jusqu'à la surface ; section 2.1) peuvent plus difficilement être étudiées en raison de cette faible sensibilité dans les basses couches de l'atmosphère.

Afin d'illustrer la variabilité spatiale des niveaux d'ozone dans la couche atmosphérique de 700 à 300 hPa, les VMR moyens d'O₃ mesurés par IASI dans cette couche au cours de la période de mesure disponible (2008-2020) sont représentées à la figure 4.2. Notons qu'afin de

manipuler plus facilement le flux énorme des observations IASI, les données d'O₃ sont moyennées sur des grilles de 2.5° de latitude et de 2.5° de longitude. Dans la suite de ce travail, l'ensemble des résultats sont calculés sur base de ces grilles d'ozone moyen.

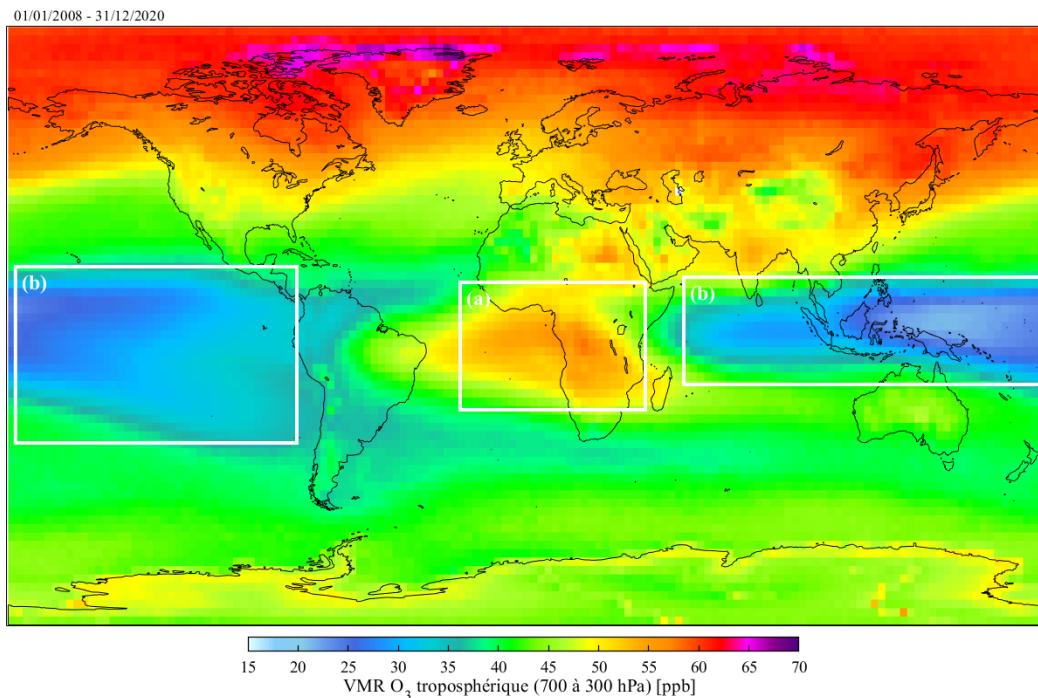


Fig. 4.2 - Distribution globale du VMR de l'ozone troposphérique (ppb) moyen mesuré de 700 à 300 hPa. Les données sont moyennées sur une grille 2.5° latitude × 2.5° longitude sur la période 2008-2020.

Nous observons que dans la couche 700 à 300 hPa, les concentrations d'ozone troposphérique sont plus importantes dans l'hémisphère Nord (H.N.) en raison de la pollution anthropique et naturelle plus importante et des échanges d'O₃ plus importants qui découlent d'une circulation de Brewer-Dobson plus forte dans cet hémisphère (Williams et al., 2019). Des contaminations artificielles d'O₃ stratosphérique qui résultent d'une moins bonne sensibilité verticale de l'instrument à la mesure d'O₃ au-dessus des régions froides sont présentes aux pôles (Wespes et al., 2017). Les niveaux élevés d'O₃ au-dessus de l'Afrique s'expliquent par les activités intenses de feux de forêts en Afrique équatoriale (rectangle a) qui s'accompagnent également d'émissions importantes des précurseurs d'ozone troposphérique. Au niveau de l'Indonésie et du Pacifique Ouest et Est (rectangle b), les concentrations d'ozone diminuent en raison de l'« Indo-Pacifique warm pool (IPWP) », décrit à la section 1.2.1. De plus, le phénomène El Niño-Southern Oscillation (ENSO ; voir section 1.2.1) affecte la variabilité de l'O₃ troposphérique dans les régions tropicales (rectangle b) : les concentrations d'O₃ augmentent dans le Pacifique Ouest, l'Indonésie et le Nord de l'Australie en raison de feux de forêts intenses observés durant les conditions El Niño, tandis qu'au-dessus de l'océan Pacifique oriental et central, les concentrations d'ozone diminuent en raison d'une plus grande convection.

Afin d'obtenir plus d'informations sur la variabilité de l'ozone dans la couche de 700 à 300 hPa, les distributions globales saisonnières du VMR moyen d'ozone mesuré dans cette couche par l'instrument IASI au cours de la mission (2008-2020) sont présentées sur la figure 4.3.

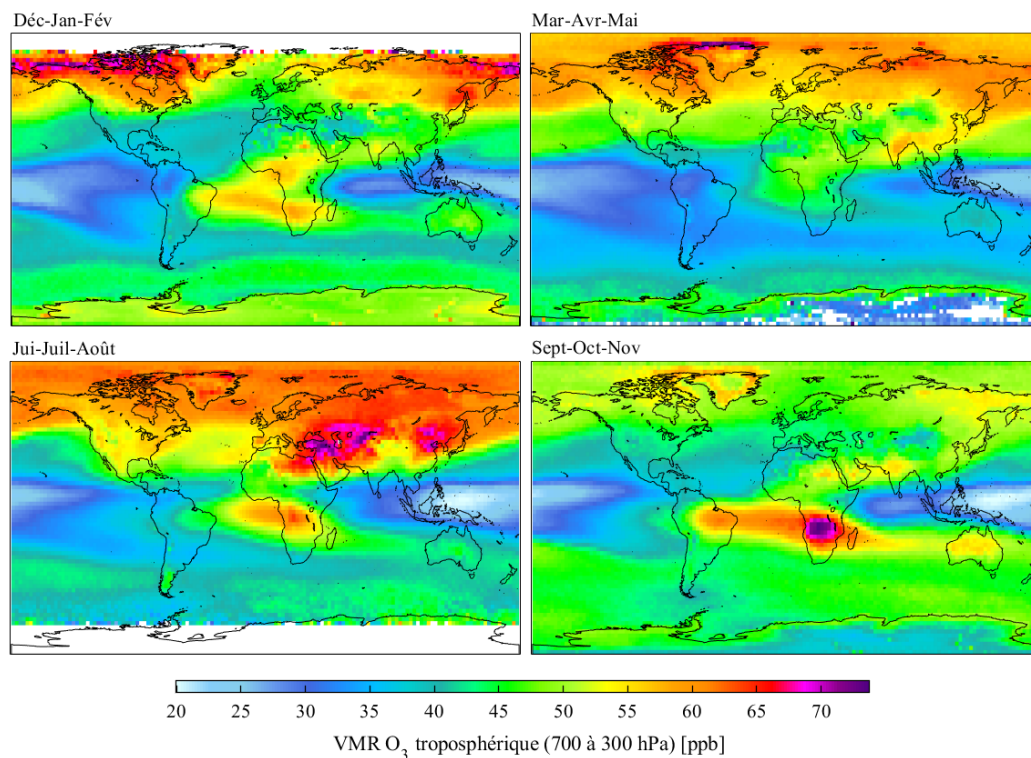


Fig. 4.3 - Les distributions globales saisonnières du VMR de l’ozone troposphérique (ppb) mesuré de 700 à 300 hPa. Les données sont moyennées sur une grille 2.5° latitude \times 2.5° longitude sur la période 2008-2020.

Nous constatons que l’abondance de l’O₃ troposphérique est maximale durant le printemps et l’été dans les moyennes latitudes de l’H.N. en raison de la photochimie plus importante qu’en hiver. Au-dessus des régions très peuplées de la Chine et du Nord de l’Inde (rectangle a, à la figure 4.3), la production photochimique de l’ozone troposphérique est récurrente et alimentée par les émissions anthropiques des précurseurs. Durant les différentes saisons, excepté au printemps au-dessus de l’Afrique, on retrouve les fortes activités des feux de forêts comme mentionné ci-dessus (rectangle b). Pour finir, l’influence de l’IPWP et ENSO apparaissent à toutes les saisons.

Il est important ici de faire remarquer que les échanges de la stratosphère vers la troposphère (STT) ne sont pas détectables sur les distributions annuelles ou saisonnières. En effet, il s’agit d’évènements particuliers qui affectent les concentrations de l’ozone troposphérique localement et sur une courte échelle de temps (de l’ordre de quelques heures/jours). La détection des intrusions stratosphériques parmi les phénomènes discutés ci-dessus nécessite la mise en place d’une méthodologie appropriée qui est décrite à la section suivante.

4.2 Détection, caractérisation et quantification des intrusions stratosphériques

Cette section expose la méthodologie développée dans ce travail pour la détection des intrusions d’ozone stratosphérique dans la troposphère qui trouvent leurs origines dans les processus se déroulant à proximité des jet-streams (section 2.1.2) qui repose sur une série de variables atmosphériques et de leurs anomalies. Celles-ci sont décrites et illustrées à la section 4.2.1. Des profils d’ozone caractéristiques des intrusions stratosphériques sont également analysés pour

quatre cas particuliers d'intrusions afin de permettre une meilleure visualisation de leur contribution à la colonne 700-300 hPa sélectionnée pour l'étude.

4.2.1 Variables utilisées et critères de sélection pour la détection des STT

Pour détecter les intrusions stratosphériques, nous avons utilisé une combinaison de variables atmosphériques (chimiques et dynamiques) dont les variations importantes aident à l'identification des intrusions :

- Les colonnes troposphériques de 700 à 300 hPa de FORLI-O₃ ;
- Les données de la hauteur de la tropopause thermique basées sur des profils de température mesurés par l'instrument IASI. Une intrusion de masse d'air stratosphérique fait abaisser la hauteur de la tropopause thermique ;
- Les réanalyses ERA5⁴ de la vorticité potentielle (PV) et du géopotential (GEO) (section 1.1.2) provenant du Centre Européen de Prévision Météorologique Moyen Terme (ECMWF) à la pression de 300 hPa qui correspond à la limite supérieure de la colonne d'ozone troposphérique considérée. La vorticité potentielle étant plus importante dans la stratosphère, une intrusion stratosphérique se caractérise par une PV plus élevée que dans les masses d'air troposphérique (Stohl et al., 1999 ; Sprenger & Wernli, 2003 ; James et al., 2003 ; Boynard et al., 2009 ; Barré et al., 2012 ; Akritidis et al., 2018 et Wang et al., 2020). Au contraire, le géopotential diminue lors d'une intrusion stratosphérique. En effet, à pression constante, l'altitude de la masse d'air est abaissée dans le cas d'une intrusion suivant l'abaissement de hauteur de la tropopause (Stohl et al., 1999 ; Boynard et al., 2009 ; Akritidis et al., 2018 et Wang et al., 2020).

Afin de mieux mettre en évidence les fines perturbations locales de l'ozone troposphérique induites par les intrusions stratosphériques, comparativement aux variations de plus grande échelle décrites dans la section 4.1, nous calculons les anomalies désaisonnalisées des variables atmosphériques listées ci-dessus. Cette opération a pour effet de supprimer les processus récurrents d'une année à une autre (par exemple, la production photochimique de l'O₃ troposphérique au printemps/été). Les anomalies, exprimées en pourcentage (%), sont calculées à l'aide de la formule suivante (Wespes et al., 2017),

$$\left[100 \times (x_{\text{Mois}} - x_{\text{Mois}}^{\text{Clim}}) / x_{\text{Mois}}^{\text{Clim}}\right] \quad (4.2)$$

Avec x_{Mois} la moyenne mensuelle de la variable x dans la troposphère et $x_{\text{Mois}}^{\text{Clim}}$ la moyenne climatologique calculée indépendamment pour chaque mois en moyennant sur la période d'étude (2008-2020).

⁴ ERA5 est la cinquième génération de réanalyse du ECMWF. Les données ERA5 sont disponibles sur des grilles régulières de latitude-longitude à une résolution de 0.25° x 0.25°, à partir de 1979 (pour la période 1950 à 1978, une version préliminaire est disponible), dans le Climate Data Store. ERA5 fournit des données horaires de nombreuses quantités atmosphériques, de surfaces terrestres et d'état de la mer, ainsi que des estimations d'incertitude (Hersbach et al., 2018).

A titre d'exemple, les anomalies d'ozone dans la couche de 700 à 300 hPa sont présentées sur les distributions saisonnières globales moyennées sur la période 2008-2020 sur la figure 4.4.

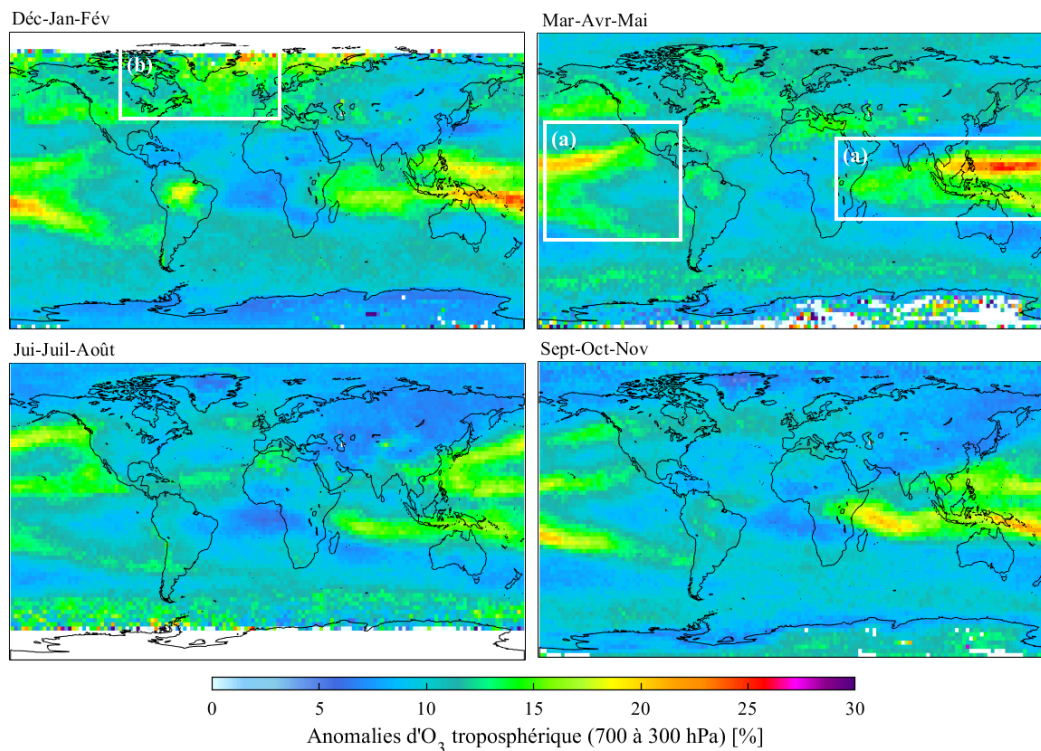


Fig. 4.4 - Distributions globales saisonnières des anomalies (%) d'ozone troposphérique de 700 à 300 hPa. Les données sont moyennées sur une grille 2.5° latitude × 2.5° longitude sur la période 2008-2020.

Les anomalies dans la colonne d'ozone de 700 à 300 hPa sont associées à différents événements (Wespes et al., 2017) :

- ENSO et IPWP avec des anomalies présentes au-dessus du Pacifique, de l'Indonésie et du Nord de l'Australie (rectangle a ; voir la description à la section 4.1) ;
- L'oscillation du Nord-Atlantique (NAO), un phénomène d'alternance des masses d'air entre l'anticyclone centré aux Açores et la dépression d'Islande qui induit des anomalies situées au-dessus de l'Atlantique Nord, de la région Labrador/Groenland, des régions du Nord de l'Europe, en particulier en hiver (rectangle b ; Hurrell, 2005) ;
- Le transport intercontinental de l'ozone d'origine anthropique de l'Est de la Chine jusqu'à l'Ouest des États-Unis en été (JJA).

Des valeurs seuils correspondant à chacune des variables sélectionnées pour la détection des intrusions ainsi qu'à leur anomalie ont été établies sur base de cas connus d'intrusions stratosphériques (Boynard et al., 2009 et Barré et al., 2012 ; voir section 4.2.2) et affinées ensuite en élargissant notre statistique de cas d'étude sur la période d'étude 2008-2020 (voir table 4.2). Les variables et leur seuil de détection d'intrusions stratosphériques sont rassemblés à la table 4.1.

Variables	Unités	Min/Max	Valeurs
VMR O ₃ 700-300 hPa	ppb	Min	50
Anomalies d'O ₃	%	Min	25
Tropopause thermique	km	Max	11
Anomalies de tropopause	%	Min	18
PV à 300 hPa	10 ⁻⁶ K.m ² .kg ⁻¹ .s ⁻¹	Max	3
Anomalies de PV	%	Min	250
GEO à 300 hPa	10 ⁵ m ² .s ⁻²	Min/Max	0,867/0,938
Anomalies du GEO à 300 hPa	%	Min	1,8

Table 4.1 - Critères de sélection pour la détection des intrusions stratosphériques.

Notons que les valeurs de vorticité potentielle sont données en valeur absolue car la PV est positive dans l'H.N. et négative dans l'H.S. (section 1.1.2).

Sachant que les jet-streams de la haute troposphère constituent un lieu privilégié d'échanges de masses d'air de la stratosphère à la troposphère (sections 1.1.3 et 2.1.2) et qu'ils sont associés à un gradient maximum du géopotential (Cohen et al., 2018), les valeurs seuils du géopotential ont été déterminées en fonction des positions de ces courants aériens. Pour déterminer ces valeurs, plusieurs isocontours (courbes auxquelles, en chacun de leurs points, nous pouvons y associer une valeur constante) ont été tracés pour différentes périodes afin de repérer le maximum du gradient du géopotential. La figure 4.5 illustre la distribution globale du géopotential pour avril 2014 et des isocontours qui délimitent les jet-streams subtropical (en rouge) et polaire (en bleu). Les valeurs seuils établies pour le géopotential (table 4.1) prennent en compte la valeur limite supérieure du jet-stream subtropical et la valeur limite inférieure du jet-stream polaire (non montré).

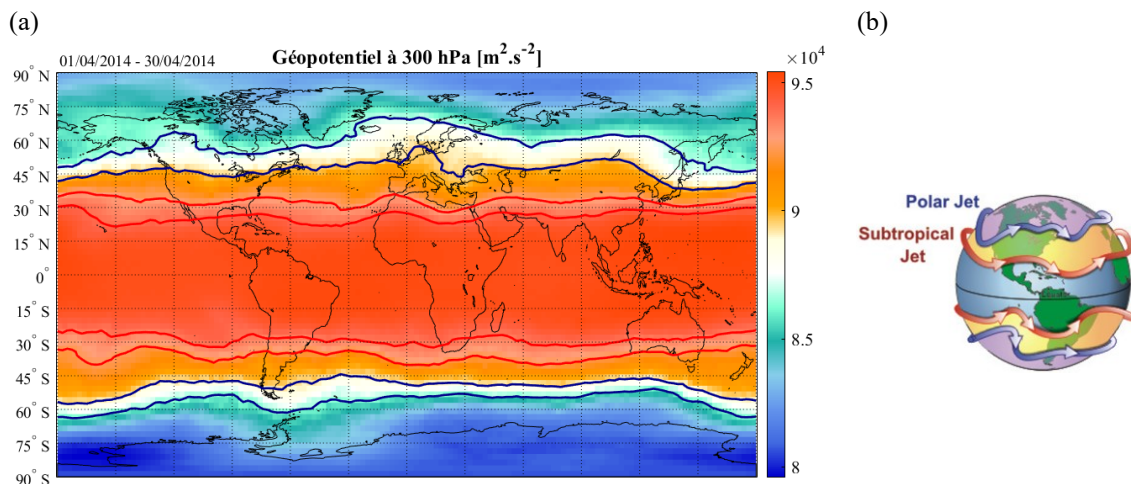


Fig. 4.5 - (a) Distribution globale du géopotential (m².s⁻²) moyenné pour le mois d'avril 2014. Les isocontours associés aux valeurs du géopotential qui délimitent le jet-stream polaire (bleu) et le jet-stream subtropical (rouge) sont représentés ; (b) Représentation schématique des jet-streams polaire (bleu) et subtropical (rouge) (<http://la.climatologie.free.fr/troposphere/jet-stream.htm>).

Faisons remarquer que notre méthode de détection des intrusions stratosphériques ne permet pas d'identifier les échanges de la stratosphère vers la troposphère qui ont lieu dans les régions

tropicales et qui trouvent leur origine dans d'autres mécanismes que ceux qui se produisent à proximité des jet-streams.

4.2.2 Cas d'études utilisés pour l'établissement des critères de sélection

Deux cas d'intrusions stratosphériques de référence présentés dans Boynard et al. (2009) (cas n°1 daté du 15 février 2008 et identifié à partir des mesures de colonnes totales d'O₃ par IASI) et dans Barré et al. (2012) (cas n°2 daté du 23 juin 2009 et identifié à partir des mesures par le satellite MLS) sont caractérisés ci-après en termes des différentes variables atmosphériques sélectionnées pour l'identification des STT :

- **Cas n°1**

La figure 4.6 présente les distributions globales du VMR de l'ozone troposphérique de 700 à 300 hPa (a), de la hauteur de la tropopause thermique (c), de la vorticité potentielle et du géopotential à 300 hPa (e et g), ainsi que de leurs anomalies (b, d, f et h) pour le cas d'intrusion du 15 février 2008. Les isocontours, représentés par les lignes noires épaisses, correspondent aux valeurs seuils minimum ou maximum des variables listées à la table 4.1.

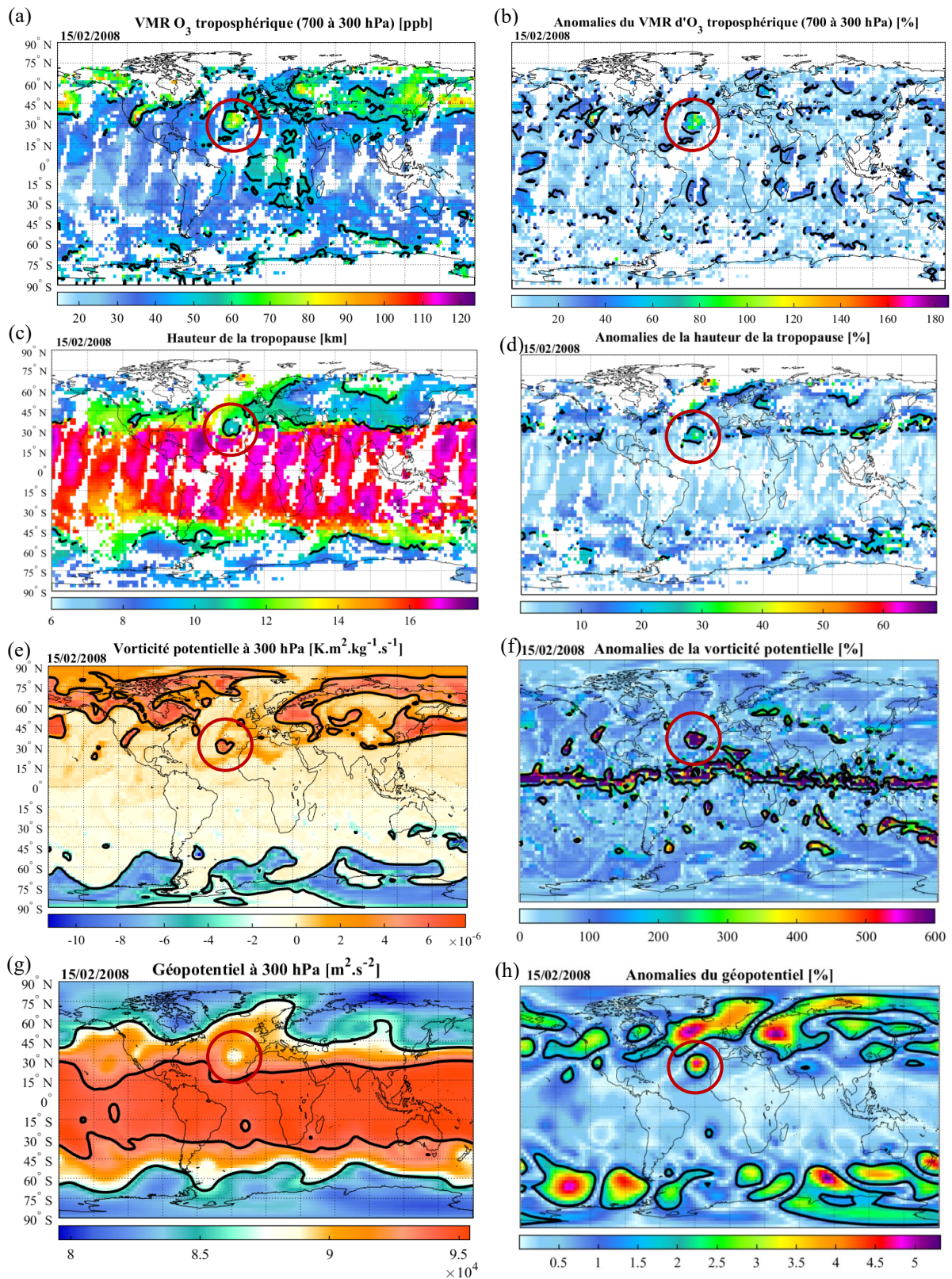


Fig. 4.6 - Distributions globales du VMR de l'ozone troposphérique (ppb) mesuré de 700 à 300 hPa (a), de la hauteur de tropopause thermique (km) (c), de la vorticité potentielle à 300 hPa ($\text{K} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$) (e), du géopotential à 300 hPa ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-2}$) (g), et des anomalies (%) associées (b, d, f et h). Les courbes noires représentent les isocontours associés aux valeurs de détection des STT des différentes variables. Les données sont moyennées sur une grille 2.5° latitude \times 2.5° longitude pour le 15 février 2008 par IASI.

L'intrusion 15 février 2008 se situe à l'Ouest de l'Afrique du Nord, aux latitudes de 27°-35°N et aux longitudes de 22.5°-35°O. Par rapport aux variables que nous avons sélectionnées, le VMR d'ozone augmente dans l'intrusion de 60 ppb jusqu'à environ 80 ppb et entraîne une anomalie de 90 %. La hauteur de la tropopause thermique diminue de 10,5 km jusqu'à 9 km, ce qui correspond à une anomalie d'environ 20-25 %. La PV augmente de 5 PVU à 8 PVU et cette augmentation se reflète dans ses anomalies avec des valeurs d'environ 600 %. Ceci est en accord avec les observations des sondes d'ozone de Wang et al. (2020) qui montrent que la vorticité potentielle à 300 hPa est supérieure à 2 PVU lors d'une intrusion stratosphérique dans l'H.N. Pour finir, le géopotential diminue de $8,8 \cdot 10^4 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-2}$ jusque $8,6 \cdot 10^4 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-2}$ avec des valeurs d'anomalies qui atteignent 4,8 %. Le géopotential provenant des mêmes réanalyses ECMWF que nous utilisons, a également été analysé par Boynard et al. (2009) à 200 hPa comme le montre la figure 4.7.

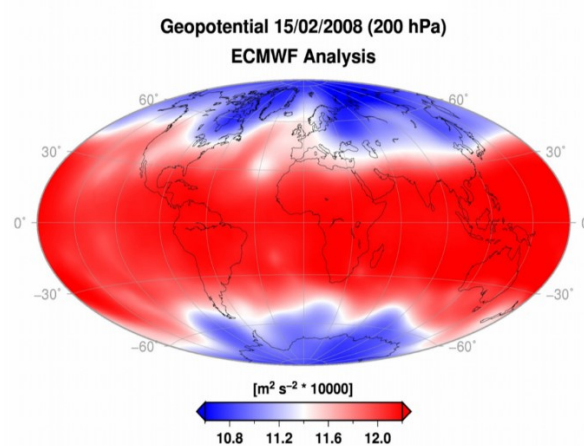


Fig. 4.7 - Distribution globale du géopotential ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-2} \times 10\,000$) à 200 hPa obtenue à partir des réanalyses ECMWF le 15 février 2008 (Boynard et al., 2009).

- **Cas n°2**

La figure 4.8 présente les distributions globales des différentes variables et de leurs anomalies associées au cas d'intrusion du 23 juin 2009.

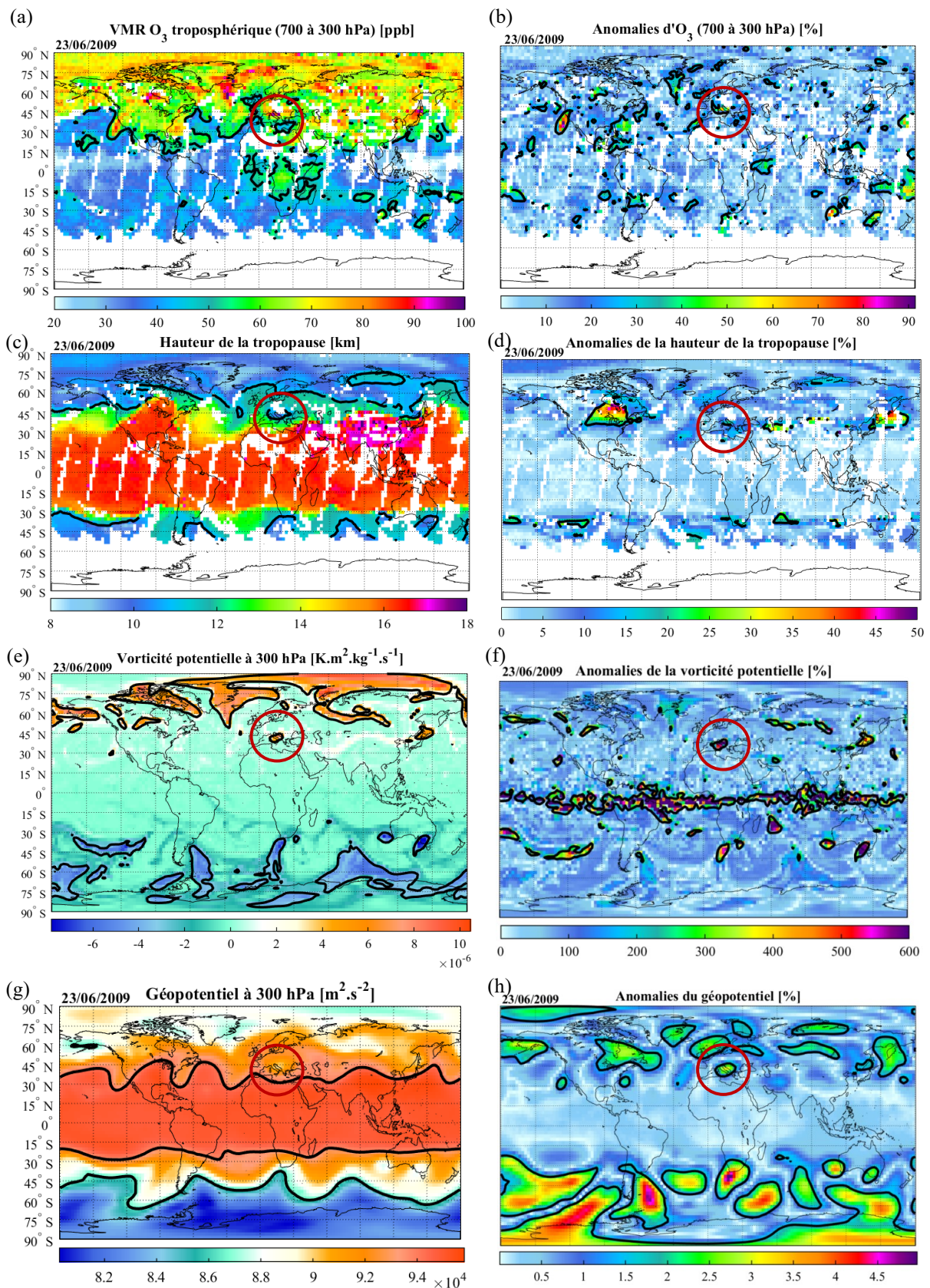


Fig. 4.8 - Distributions globales du VMR de l'ozone troposphérique (ppb) mesuré de 700 à 300 hPa (a), de la hauteur de tropopause thermique (km) (c), de la vorticité potentielle à 300 hPa ($\text{K} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$) (e), du géopotential à 300 hPa ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-2}$) (g), et des anomalies (%) associées (b, d, f et h). Les courbes noires représentent les isocontours associés aux valeurs de détection des STT des différentes variables. Les données sont moyennées sur une grille 2.5° latitude \times 2.5° longitude pour le 23 juin 2009 par IASI.

L'intrusion du 23 juin 2009 se situe au-dessus de l'Italie et de la Hongrie aux latitudes de 42°-45°N et aux longitudes de 7°-20°E. Le VMR d'ozone dans l'intrusion augmente de 80 ppb jusqu'à environ 90 ppb, ce qui se traduit par une anomalie de 65 %. Le VMR d'ozone ne peut pas être comparé avec les résultats de Barré et al. (2012) car ceux-ci considèrent la colonne dans la basse stratosphère et la haute troposphère (UTLS). La hauteur de la tropopause diminue de 10 km jusqu'à 9 km et ses anomalies atteignent 25 %. La PV augmente de 7 PVU à 8 PVU avec des anomalies de 500 %. D'après Barré et al. (2012), la PV associée à cette intrusion est égale à environ 10 PVU (figure 4.9) entre 200 et 300 hPa, ce qui est en accord avec nos résultats. Pour finir, le géopotentiel diminue de $8,9 \cdot 10^4 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-2}$ jusque $8,7 \cdot 10^4 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-2}$, ce qui correspond à une anomalie de 3,5 %. Selon Wang et al. (2020), un géopotentiel atteint, pour un cas d'intrusion se déroulant dans l'H.N., des valeurs d'environ $9,3 \cdot 10^4 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-2}$, ce qui est effectivement proche de la valeur pour l'évènement étudié ici.

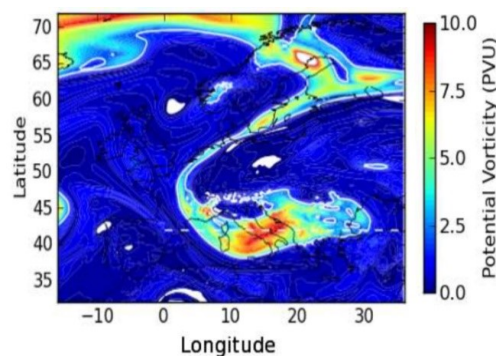


Fig. 4.9 - Distribution de la vorticité potentielle (PVU) entre 200 et 300 hPa obtenue à partir de réanalyses le 23 juin 2009 (voir détails dans Barré et al., 2012).

- **Autres cas sélectionnés**

En se référant aux valeurs des variables choisies dans les deux cas d'intrusions représentés ci-dessus, une série d'autres intrusions stratosphériques marquantes (table 4.2) ont été sélectionnées afin de vérifier et d'affiner sur base d'un plus grand échantillon de mesures nos critères de sélection pour l'identification des STT dans l'entièreté du jeu de données d'ozone de IASI.

Pour effectuer cette sélection, nous avons choisi trois jours consécutifs aléatoires par mois afin d'obtenir un échantillon d'intrusions stratosphériques couvrant les deux hémisphères et toute la période de l'étude (2008-2020). Les 16 intrusions détectées et leur localisation sont identifiées dans la table 4.2.

Intrusions stratosphériques sélectionnées					
Dates	Localisations		Dates	Localisations	
15/01/2008	29° - 36° N	145° - 150° O	08/03/2014	32.5° - 38.5° N	14.5° - 23° E
13/03/2009	22° - 32° N	157° - 164° O	24/02/2015	30° - 35° N	65° - 72.5° E
22/04/2010	32° - 42° N	102° - 111.5° O	21/02/2016	27.5° - 32.5° N	10° - 15° O
12/05/2011	34° - 40° N	26.5° - 35.5° E	24/02/2017	30° - 35° N	142.5° - 150° O
01/09/2012	25.5° - 39.5° S	159.5° - 165° E	26/04/2018	32.5° - 42.5° N	130° - 137.5° O
16/03/2013	40° - 45° N	62.5° - 67.5° E	10/02/2019	25° - 30° N	147.5° - 160° O
14/11/2013	31.5° - 39.5° S	6° - 16.5° E	19/03/2020	32.5° - 37.5° N	25° - 35° E
02/05/2014	37° - 43° N	165° - 177.5° O	08/08/2020	27° - 34.5° S	139° - 150° E

Table 4.2 - Dates et localisations des intrusions stratosphériques sélectionnées.

Les intrusions détectées se trouvent toutes aux latitudes moyennes (entre 20° et 45°) dans les deux hémisphères.

Les distributions des variables pour deux des cas d'intrusions identifiés (surlignés dans la table 4.2), cas du 22 avril 2010 (cas n°3) et du 14 novembre 2013 (cas n°4), sont illustrées ci-dessous.

- **Cas n°3**

La figure 4.10 présente les distributions globales des diverses variables atmosphériques sélectionnées et de leurs anomalies pour le cas d'intrusion du 22 avril 2010.

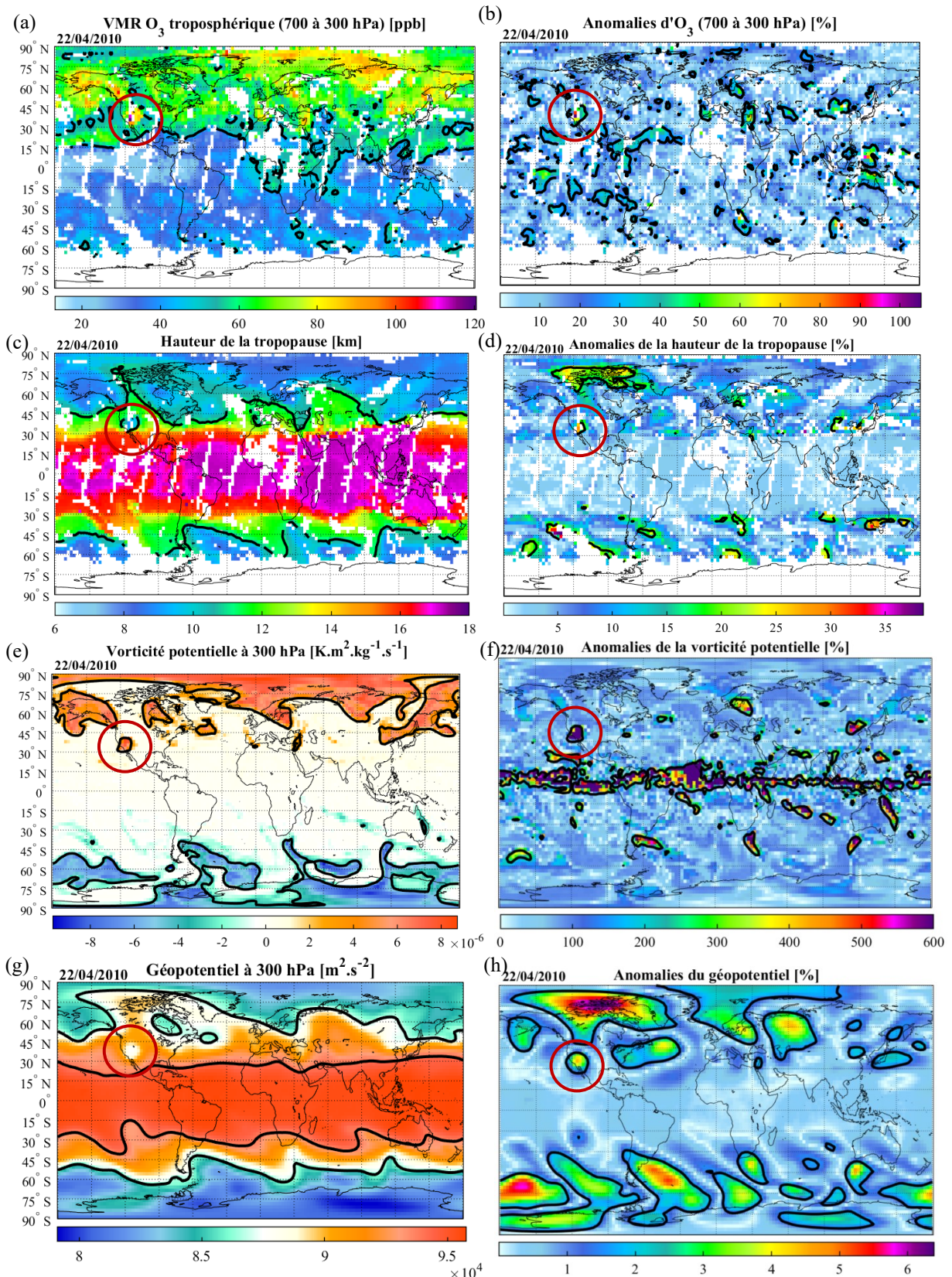


Fig. 4.10 - Distributions globales du VMR de l'ozone troposphérique (ppb) mesuré de 700 à 300 hPa (a), de la hauteur de tropopause thermique (km) (c), de la vorticité potentielle à 300 hPa ($\text{K.m}^2.\text{kg}^{-1}.\text{s}^{-1}$) (e), du géopotential à 300 hPa ($\text{m}^2.\text{s}^{-2}$) (g), et des anomalies (%) associées (b, d, f et h). Les courbes noires représentent les isocontours associés aux valeurs de détection des STT des différentes variables. Les données sont moyennées sur une grille 2.5° latitude \times 2.5° longitude pour le 22 avril 2010 par IASI.

L'intrusion du 22 avril 2010 se situe à l'Ouest des États-Unis aux latitudes de 32°-42°N et aux longitudes de 102°-111.5°O. On voit que le VMR d'ozone augmente de 80 ppb jusqu'à 110 ppb et ses anomalies atteignent 96 %. La hauteur de la tropopause diminue de 11 km jusqu'à 9 km, ce qui se traduit par une anomalie de 27 %. La PV atteint des valeurs de 8 PVU et des anomalies de 600 % sont observées. Pour finir, le géopotentiel diminue de $8,8 \cdot 10^4 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-2}$ jusque $8,6 \cdot 10^4 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-2}$, ce qui correspond à une anomalie d'environ 4,5 %. Les valeurs de PV et du géopotentiel atteintes dans cette intrusion sont en accord avec Wang et al. (2020) de la même manière que pour les cas précédents.

- **Cas n°4**

La figure 4.11 présente les distributions globales des variables et de leurs anomalies associées au cas d'intrusion du 14 novembre 2013.

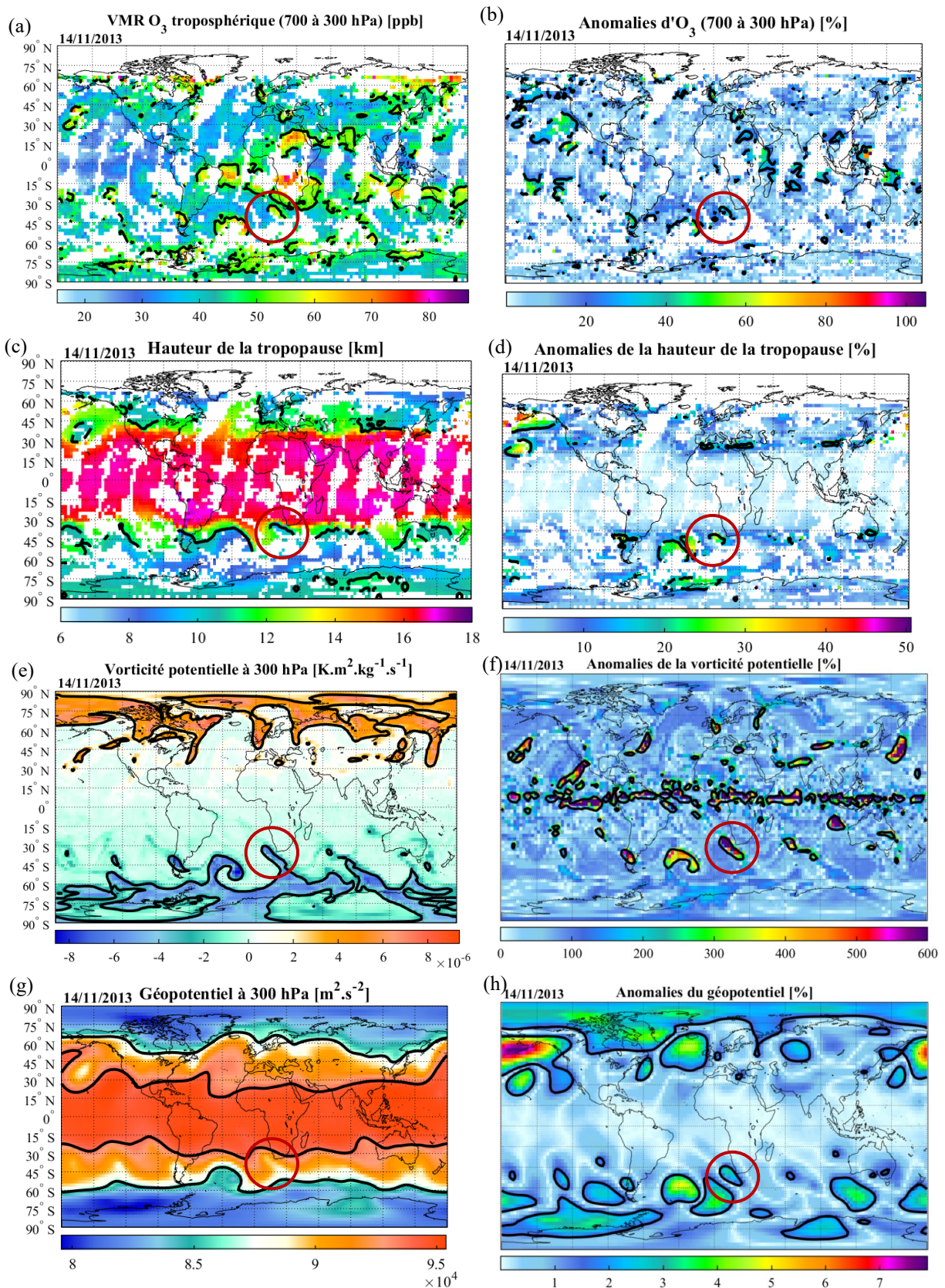
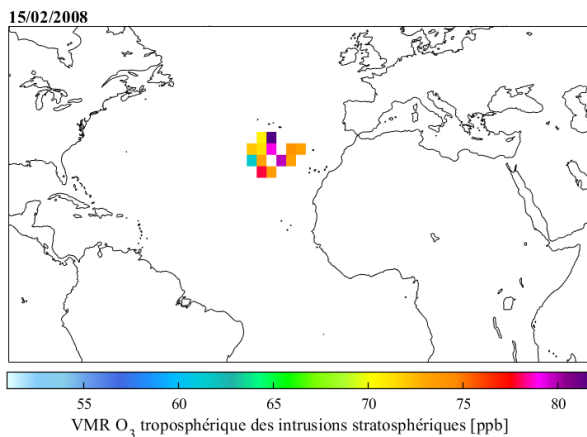


Fig. 4.11 - Distributions globales du VMR de l'ozone troposphérique (ppb) mesuré de 700 à 300 hPa (a), de la hauteur de tropopause thermique (km) (c), de la vorticité potentielle à 300 hPa (K.m².kg⁻¹.s⁻¹) (e), du géopotential à 300 hPa (m².s⁻²) (g), et des anomalies (%) associées (b, d, f et h). Les courbes noires représentent les isocontours associés aux valeurs de détection des STT des différentes variables. Les données sont moyennées sur une grille 2.5° latitude × 2.5° longitude pour le 14 novembre 2013 par IASI.

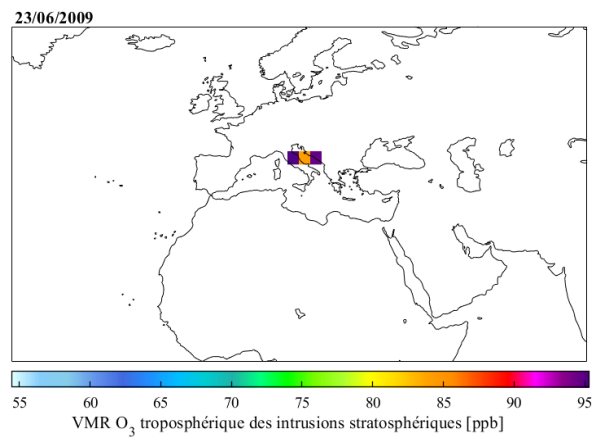
L'intrusion du 14 novembre 2013 se trouve au Sud-Ouest de l'Afrique du Sud aux latitudes de 31.5°-39.5°S et aux longitudes de 6°-16.5°E. Dans cette intrusion, le VMR d'ozone augmente de 55 ppb jusqu'à 65 ppb et ses anomalies atteignent des valeurs de 50 %. La hauteur de la tropopause diminue de 10 km jusqu'à 9,5 km, ce qui induit une anomalie de 30 %. La PV atteint des valeurs négatives de 3-4 PVU avec des anomalies supérieures à 600 %. Pour finir, le géopotential diminue de $9.10^4 \text{ m}^2.\text{s}^{-2}$ jusque $8,8.10^4 \text{ m}^2.\text{s}^{-2}$ et cette diminution se reflète dans les anomalies avec des valeurs de 3,5 %.

En appliquant l'ensemble des critères de sélection (table 4.1) établis sur base des deux cas d'étude de référence et de ceux répertoriés à la table 4.2, nous ne gardons que les observations d'ozone troposphérique (en termes du VMR moyen pour la colonne de 700 à 300 hPa) caractérisées par ces cas d'intrusions stratosphériques. Cette contribution des intrusions à l'ozone troposphérique est représentée à la figure 4.12 pour les quatre cas d'études illustrés ci-dessus.

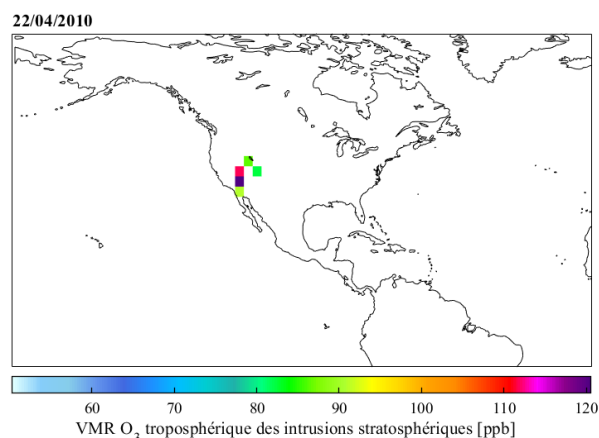
Cas n°1



Cas n°2



Cas n°3



Cas n°4

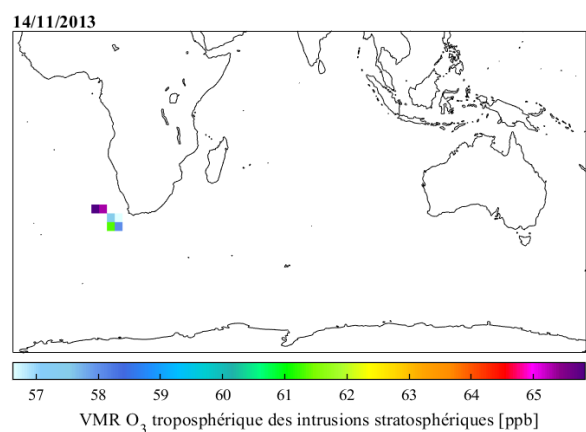


Fig. 4.12 - Distributions globales VMR d'ozone troposphérique (700 à 300 hPa) pour 4 cas d'études des intrusions stratosphériques. Les données sont moyennées sur une grille 2.5° latitude × 2.5° longitude pour les dates concernées.

Notons que d'autres intrusions stratosphériques ont également été identifiées ces mêmes jours par l'application des critères de sélection (pas illustrées ici).

4.2.3 Application des critères de sélection des STT à l'échelle globale sur la période d'étude (2008-2020)

Nous venons de présenter 4 cas particuliers d'intrusions stratosphériques pour lesquels des valeurs caractéristiques d'ozone et de plusieurs variables ont été évaluées. Sur base d'une série élargie de cas d'intrusions, un filtre approprié, combinant différents critères de sélection qui s'appuient sur des valeurs distinctives de concentration d'O₃, de hauteur de tropopause, de PV et du géopotentiel (voir table 4.1), a été établi pour permettre l'identification des intrusions sur toute la série temporelle des données IASI.

L'application de ce filtre général sur l'ensemble des observations de VMR d'O₃ troposphérique (700-300 hPa) sur toute la période d'étude (2008-2020) nous permet donc de distinguer l'ensemble des intrusions stratosphériques qui impactent les mesures d'ozone troposphérique effectuées par IASI. La distribution spatiale de ces VMR d'O₃ troposphérique est représentée à la figure 4.13. Cette carte est la première du genre qui est obtenue sur base d'un ensemble de données observationnelles et elle constitue un résultat important dans notre travail.

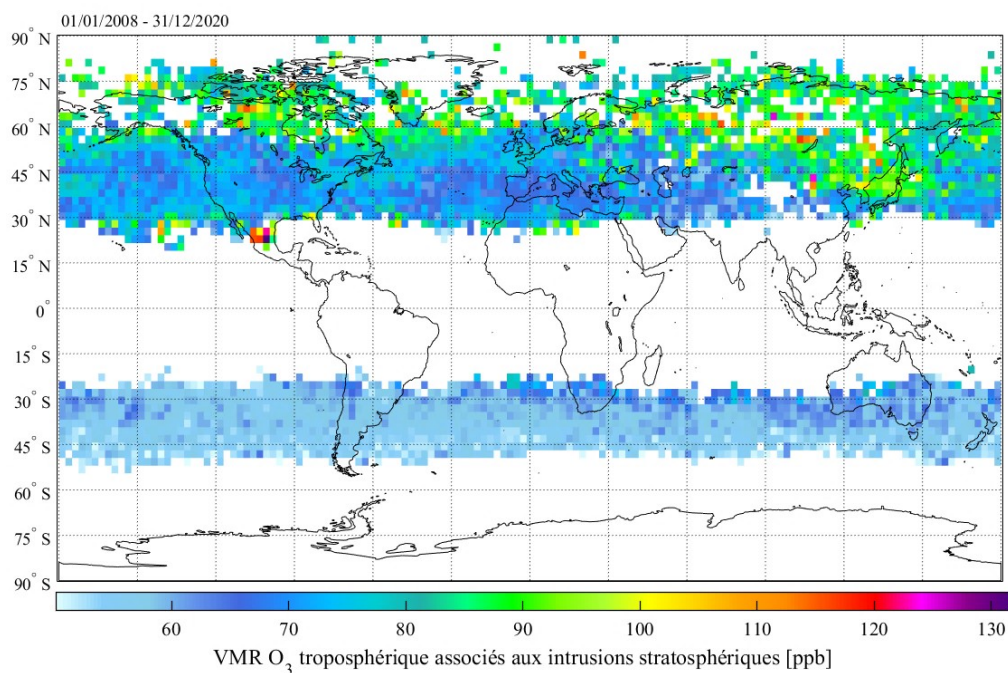


Fig. 4.13 - Distribution globale des VMR d'ozone troposphérique (700 à 300 hPa) caractérisés par des intrusions stratosphériques pour l'ensemble de la période d'étude (2008-2020). Les données sont moyennées sur une grille 2.5° latitude × 2.5° longitude sur la période 2008-2020.

Bien que ceci confirme ce qui était attendu, faisons remarquer que le résultat de notre filtre général montre que l'ensemble des intrusions stratosphériques se situent aux moyennes latitudes dans les deux hémisphères (à partir ~ 20°N/S). Ces intrusions d'ozone impactent une surface plus étendue dans l'H.N. où elles sont observées à des latitudes jusque 90°N comparativement à l'H.S. où les intrusions se limitent à une bande de latitudes plus étroite comprise entre 25°S et 50°S.

Nos observations sont en accord avec celles de James et al. (2003), Sprenger & Wernli (2003), Škerlak et al. (2013) et Boothe et al. (2016) qui rapportent des STT dominants dans les latitudes comprises entre 30° et 90° dans les deux hémisphères, et ce plus particulièrement dans l’H.N. Rappelons que, à l’inverse de ces précédentes études qui discutent également d’intrusions dans les régions tropicales, en particulier au-dessus de l’océan Indien, notre méthode de détection permet uniquement d’identifier les intrusions des latitudes moyennes à proximité des jet-streams (subtropicaux et polaires ; section 2.1).

La distribution spatiale et temporelle du nombre d’occurrence des intrusions stratosphériques identifiées par l’application des critères de sélection ainsi que de l’impact de ces intrusions sur les mesures d’O₃ troposphérique sont discutés plus en détail à la section 4.3.

4.2.4 Evaluation des critères de sélection

La validité et l’importance de chaque critère de sélection constituant le filtre général (voir table 4.1) pour l’identification des intrusions stratosphériques dans les mesures d’O₃ troposphérique effectuées par IASI a été évaluée en testant l’influence de chacune des variables sur le nombre d’occurrence d’intrusions ainsi identifiées. Pour ce faire, chaque variable est exclue séparément de l’ensemble des critères de sélection appliqué. Si l’exclusion d’une des variables entraîne une différence de plus de 5 % sur le nombre de détection d’intrusion stratosphérique, cette même variable est considérée indispensable au filtre général appliqué pour l’identification des intrusions. La table 4.3 résume ces tests d’exclusion effectués sur chacune des variables constituant le filtre général, à l’échelle globale et séparément dans les hémisphères Nord et Sud.

Critères	Nb total des STT	Différence entre test d’exclusion et filtre général (%)	Nb total des STT dans H.N.	Nb total des STT dans H.S.
Filtre général	42 487		29 355	13 132
sans la PV	45 099	6,15	31 442	13 657
sans la tropopause	45 494	7,08	31 188	14 307
sans les anomalies du GEO	45 861	7,94	31 537	14 324
sans le VMR d’O ₃	48 490	14,1	29 487	19 003
sans les anomalies de la PV	49 589	16,7	33 915	15 674
sans les anomalies du VMR d’O ₃	59 245	39,4	42 346	16 899
sans le GEO	68 986	62,4	46 650	22 339
sans les anomalies de la tropopause	75 654	78,1	57 518	18 136

Table 4.3 - Nombre d’occurrence total des STT détecté sur la période d’étude à l’échelle globale et dans chaque hémisphère, par l’application du filtre général et en excluant chaque variable indépendamment. Les différences entre nombre total d’occurrence des STT résultant de l’application du filtre général et en excluant les variables sont également indiquées (%).

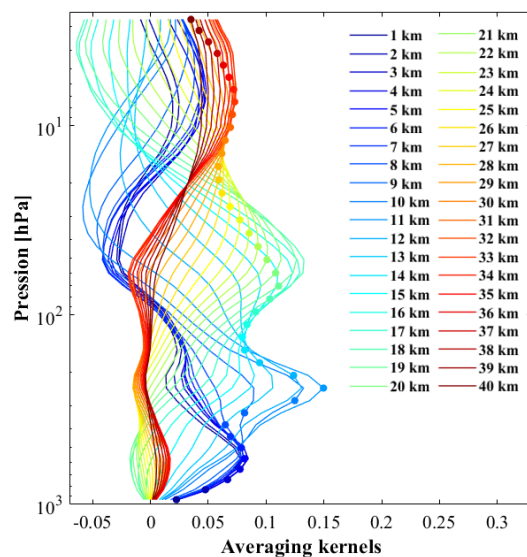
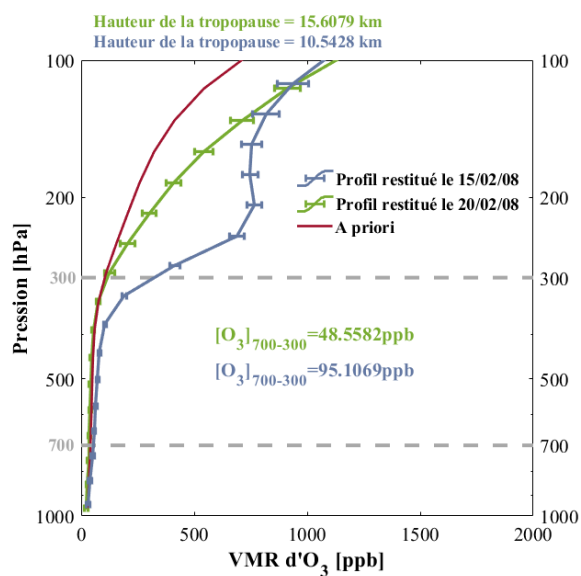
Ces différents tests d’exclusion nous affirment l’utilité de chacune des variables utilisées dans le filtre général à l’échelle globale. De manière intéressante, nous observons en moyenne un facteur 2 entre le nombre d’occurrence des intrusions détectées dans les hémisphères Nord et

Sud et ce, pour le filtre général et les différents tests d'exclusion, indiquant une détection plus abondante des intrusions dans l'H.N. (voir section 4.3.1 pour plus de détails) ainsi qu'une certaine homogénéité spatiale de l'influence de chaque critère utilisé.

4.2.5 Caractérisation des profils verticaux d'O₃ dans les intrusions

Nous l'avons vu, les intrusions stratosphériques ont pour conséquence d'affecter l'abondance de l'ozone dans la troposphère. En effet, la concentration de l'ozone augmente lors du transport d'une masse d'air stratosphérique, riche en ozone, dans la troposphère (voir chapitre 2). Les profils d'ozone associés aux 4 cas d'études décrits précédemment sont présentés sur les figures 4.14 et 4.15 pour permettre une meilleure visualisation de l'impact de l'intrusion sur les valeurs d'ozone troposphérique. Un profil de référence, sélectionné à la localisation de l'intrusion mais 5 jours après celle-ci, est superposé aux figures 4.14 et 4.15. Les fonctions de lissage (averaging kernels) associées aux cas d'intrusions sont également représentées ; elles démontrent une sensibilité élevée dans l'UTLS.

Cas n°1



Cas n°2

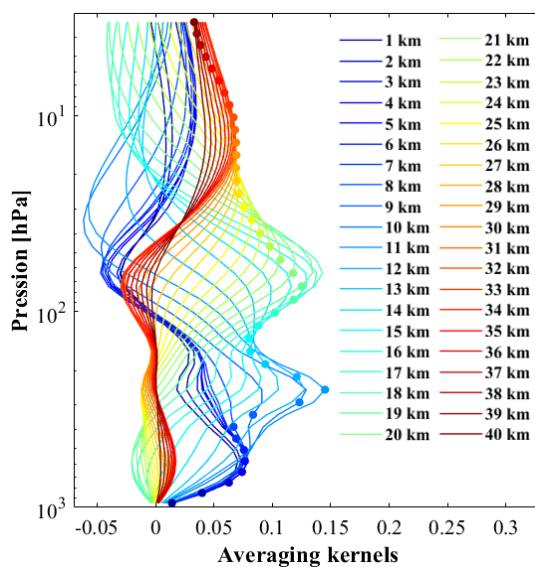
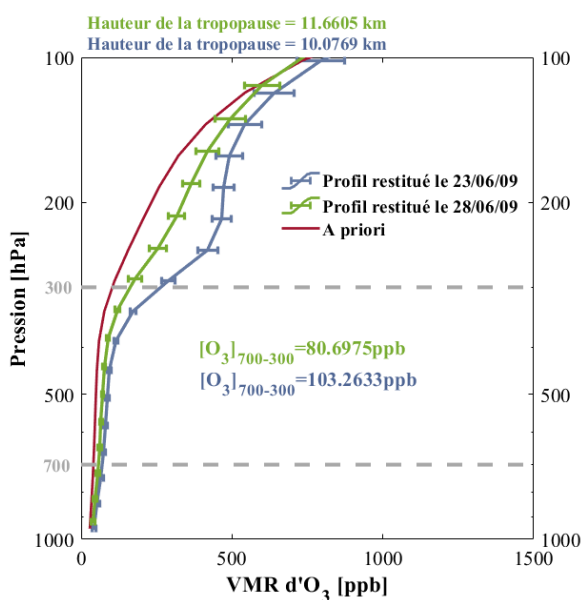
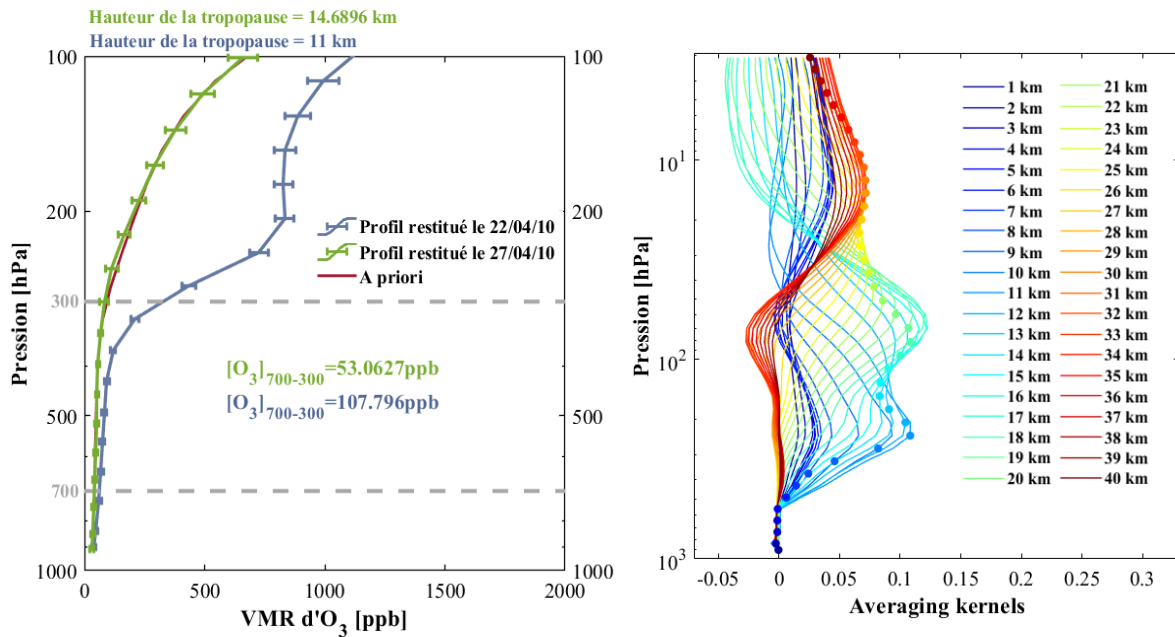


Fig. 4.14 - Profils d'ozone de référence (en vert) et caractérisant une intrusion stratosphérique (en bleu) ainsi que les averaging kernels associées. Les concentrations d'ozone dans la couche de 700 à 300 hPa et la hauteur de la tropopause sont indiquées.

Cas n°3



Cas n°4

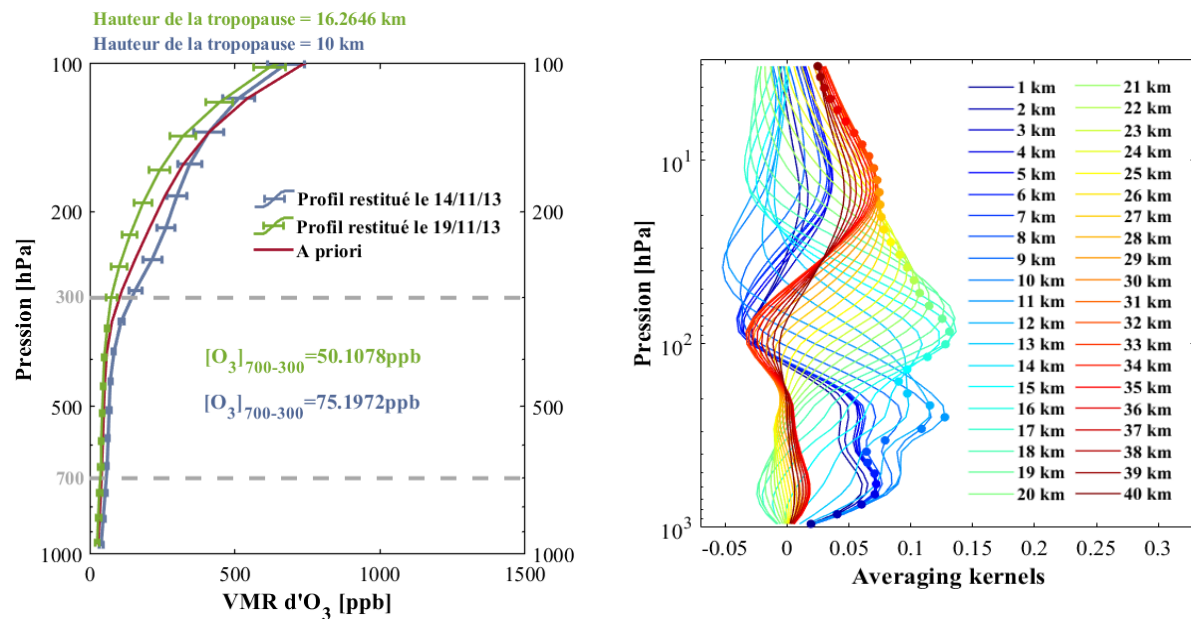


Fig. 4.15 - Profils d'ozone de référence (en vert) et caractérisant une intrusion stratosphérique (en bleu) ainsi que les averaging kernels associées. Les concentrations d'ozone dans la couche de 700 à 300 hPa et la hauteur de la tropopause sont indiquées.

L'apport de l'ozone stratosphérique à l'ozone troposphérique apparaît clairement sur le profil avec une augmentation importante d'O₃ dans la haute troposphère (UTLS), autour de 250 hPa. L'influence de l'ozone stratosphérique est également marquée dans la couche que nous avons sélectionnée (700-300 hPa) avec des augmentations de concentration d'ozone d'environ 47 ppb, 23 ppb, 55 ppb et 25 ppb pour les 4 cas d'études, respectivement. Notons que si le choix d'une colonne 700-300 hPa pourrait paraître légitime au regard des profils, elle augmenterait également le risque de fausse détection des intrusions.

En comparant les fonctions de sensibilité associée aux profils de référence (pas montrées ici) à celles caractérisant les intrusions, nous observons également un léger gain de sensibilité au niveau de la tropopause en raison de cette augmentation de concentrations d’ozone à ces niveaux.

A titre de comparaison avec les résultats des figures 4.14 et 4.15, des profils d’O₃ à haute résolution verticale (mesures de sondes) caractérisant une intrusion stratosphérique et extraits de Barré et al. (2012) et Mkololo et al. (2020) sont illustrés à la figure 4.16. Ces profils montrent une influence de l’intrusion stratosphérique sur les niveaux d’O₃ détectable entre 100 hPa et 215 hPa (figure 4.16, a) et entre 8 et 12 km (~ 350-200 hPa ; figure 4.16, b), ce qui est en accord avec nos résultats. Les concentrations d’O₃ atteintes dans le pic d’intrusion stratosphérique sont en revanche plus faibles que celles observées dans les 4 cas d’étude, présentées dans ce travail, qui caractérisent des intrusions intenses.

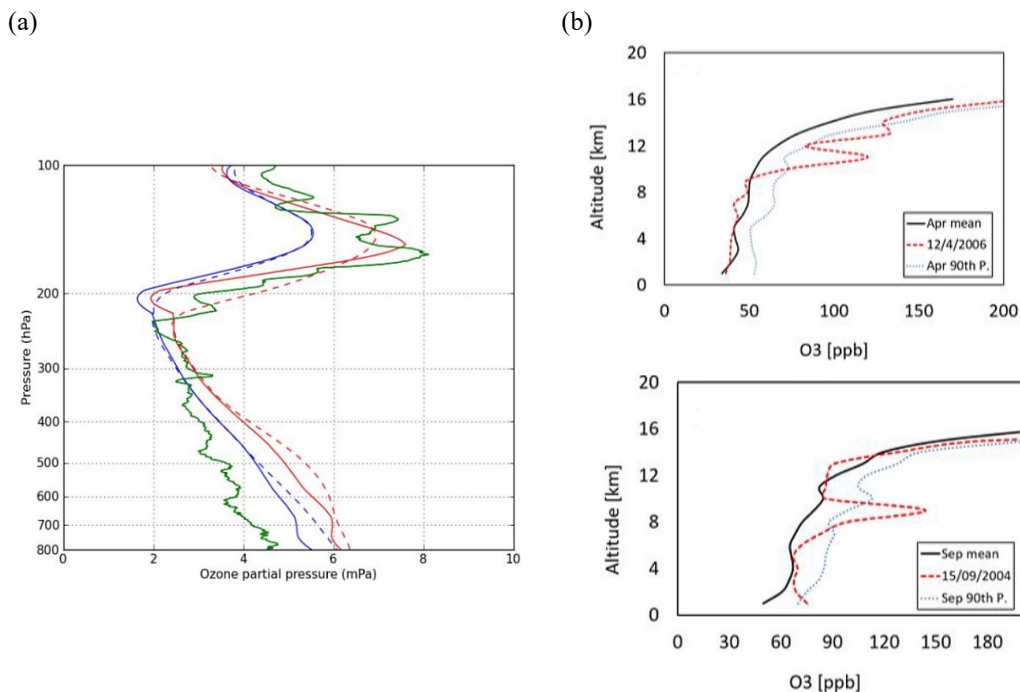


Fig. 4.16 - (a) Distribution verticale de l’ozone (en vert et en pression partielle, mPa) mesurée par une sonde au-dessus de la Pologne le 24 juin 2009 (voir détails dans Barré et al., 2012). (b) Distributions verticales de l’ozone (ppb) mesurées par une sonde au-dessus d’Irène le 12 avril 2006 (haut) et le 15 septembre 2004 (bas) (voir détails dans Mkololo et al., 2020).

En résumé de cette section, la caractérisation d’intrusions stratosphériques de référence nous a permis d’établir un filtre général pour l’identification des intrusions stratosphériques dans les mesures d’ozone troposphérique depuis l’instrument IASI. L’application de ce filtre à l’échelle globale et sur toute la période de mesure IASI disponible nous permet maintenant d’analyser la variation spatiale et temporelle des intrusions stratosphériques identifiées, ainsi que celle de l’influence de ces intrusions sur les mesures d’O₃ troposphérique telle que détectée nettement dans les profils d’ozone autour de 250 hPa.

4.3 Distributions spatio-temporelles des intrusions stratosphériques et de leur influence sur l'O₃ troposphérique mesuré par IASI

Dans cette section, les distributions spatio-temporelles du nombre d'occurrence d'intrusions stratosphériques détectées par l'application des critères de sélection définis à la section 4.2 et de l'influence de ces intrusions sur les niveaux d'O₃ troposphérique moyens (en ppb) mesurés par IASI entre 700 et 300 hPa sur toute la période IASI disponible (2008-2020) sont représentées et discutées.

4.3.1 Occurrence des STT détectés sur la période d'étude (2008-2020)

- **Distribution globale du nombre d'occurrence annuel**

La distribution globale des moyennes annuelles du nombre d'occurrence des STT détectés sur la période d'étude est présentée sur la figure 4.17. Les isocontours associés aux valeurs seuils du géopotential pour la détection des STT et qui délimitent les jet-streams subtropical (en rouge) et polaire (en bleu) (voir section 4.2.1) sont représentés.

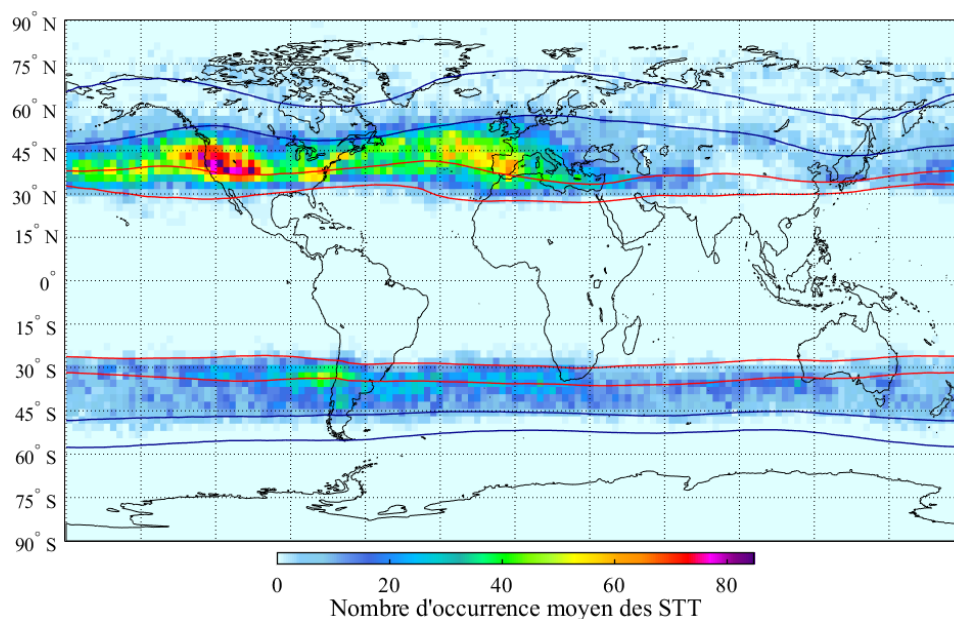


Fig. 4.17 - Distribution globale, en moyenne annuelle, du nombre d'occurrence (échelle de couleur) des STT détectés sur la période 2008-2020, avec les isocontours des valeurs seuils du géopotential délimitant les jet-streams polaire (en bleu) et subtropical (en rouge).

Le nombre d'occurrence total des STT sur la période 2008-2020 est de 42 487 avec 29 355 occurrences dans l'H.N. et 13 132 occurrences dans l'H.S., soit deux fois moins que dans le Nord, comme indiqué à la section 4.2.4 (voir table 4.3).

La distribution globale nous montre que, comme introduit à la section 4.2.3 (voir figure 4.13), les STT sont prépondérants aux moyennes latitudes dans les deux hémisphères à proximité des jet-streams, en particulier dans l'H.N. où ils atteignent les plus hautes latitudes. Dans l'H.S., les intrusions se limitent à une bande de latitude plus étroite comprise entre 25°S et 50°S. Cette

distribution est globalement en accord avec celles qui ressortent d'études précédentes (James et al., 2003 ; Sprenger & Wernli, 2003 ; Škerlak et al., 2013 et Boothe et al., 2016), à l'exception toutefois de l'absence de STT détectés dans les plus hautes latitudes de l'H.S. Dans l'H.N., nous retrouvons la domination des STT, due aux voies orageuses au-dessus de l'Atlantique et du Pacifique et au-dessus des régions de l'Europe occidentale, de l'Afrique du Nord et de l'Ouest des États-Unis. Dans l'H.S., les STT sont observés majoritairement au-dessus de la côte Ouest du Chili, et le long de l'océan Atlantique.

- **Distributions globales du nombre d'occurrence mensuel**

Les distributions globales du nombre d'occurrence mensuel des STT détectés en moyenne par an sur la période d'étude sont représentées sur la figure 4.18. Le nombre d'occurrence total mensuel exprimé en moyenne annuelle est également indiqué.

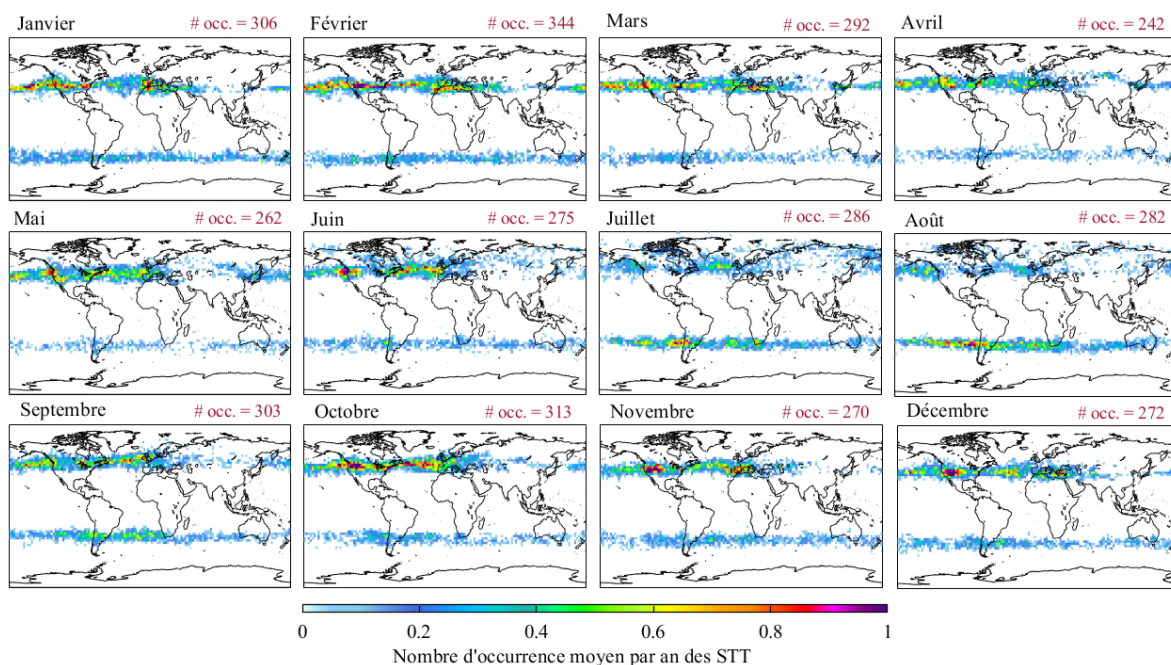


Fig. 4.18 - Distributions globales mensuelles du nombre d'occurrence des STT détecté sur la période 2008-2020 et représenté en moyenne annuelle. Le nombre d'occurrence total mensuel exprimé en moyenne annuelle est également indiqué.

En raison du déplacement latitudinal des jet-streams subtropical et polaire en fonction des saisons (pas représentés sur la figure 4.18 pour plus de clarté), les STT détectés se déplacent vers les plus hautes latitudes durant l'été dans les deux hémisphères (de mai jusqu'en septembre dans l'H.N.). Cette variation latitudinale suit également les fluctuations latitudinales de la hauteur de la tropopause.

Le nombre d'occurrence le plus élevé est observé en automne/hiver dans les deux hémisphères. La prédominance des STT via les voies orageuses apparaît chaque saison. Dans l'H.N., elle est moins marquée en été (juillet et août), en accord avec Škerlak et al. (2013) qui simule une baisse des intrusions durant cette saison dans l'H.N. Le maximum observé au Chili durant l'hiver austral (JJA) est également en accord avec James et al. (2003), Škerlak et al. (2013) et Boothe et al. (2016). Au Sud de l'Afrique, le maximum d'occurrence observé en hiver et au printemps

austral (JJA et SON) ne concorde cependant pas avec l'étude de Škerlak et al. (2013) qui rapporte un maximum au-dessus de cette région tout au long de l'année.

- **Série temporelle journalière du nombre d'occurrence**

Les séries temporelles journalières du nombre d'occurrence total des STT détectés indépendamment dans chacun des hémisphères sur toute la période d'étude (2008-2020) sont représentées à la figure 4.19.

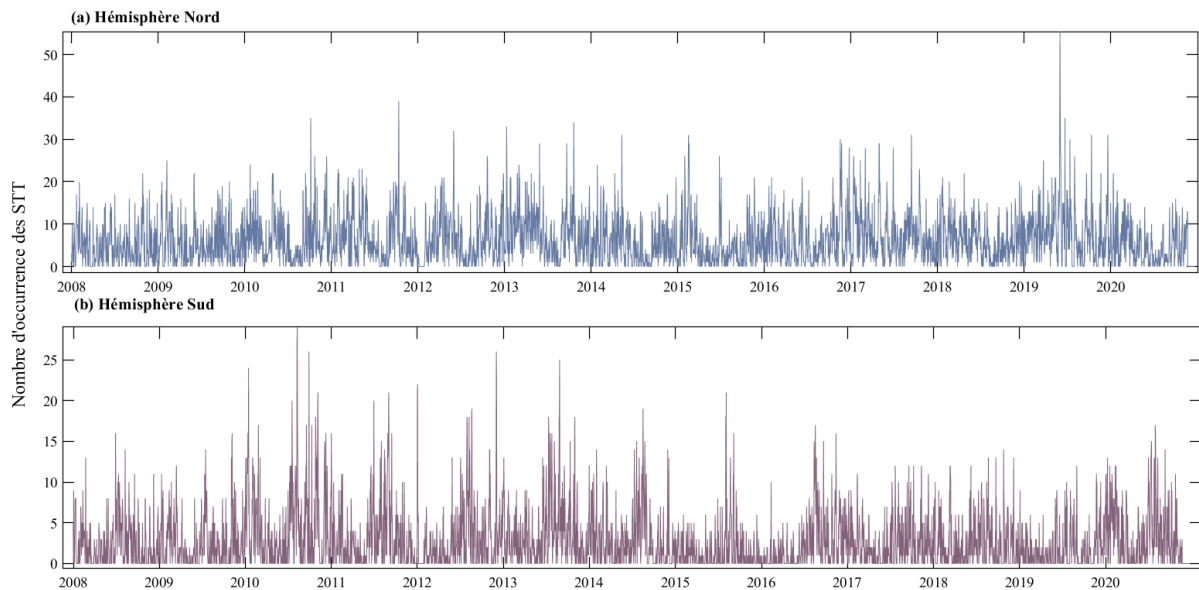


Fig. 4.19 - Distributions journalières du nombre d'occurrence des STT détectés dans chacun des deux hémisphères. Notons que les échelles sont différentes dans les deux hémisphères.

Le nombre d'occurrence détecté journalièrement varie de 0 à 25 dans l'H.N. et de 0 à 15 dans l'H.S. Notons que pour certaines années, des valeurs supérieures à 50 et à 25 sont atteintes (e.g., 2019 dans l'H.N. et 2010 dans l'H.S.). En accord avec la figure 4.18, les maxima annuels apparaissent chaque année en hiver austral. Dans l'H.N., les maxima hivernaux sont plus difficilement décelables certaines années.

- **Cycles saisonniers**

Afin d'encore mieux mettre en évidence la saisonnalité dans le nombre d'occurrence, les nombres totaux d'occurrences des intrusions stratosphériques détectés mensuellement (globalement et pour chaque hémisphère) au cours de la période d'étude (2008-2020) et illustrés à la figure 4.18 sont présentés dans la table 4.4.

Mois	# occ. tot	# occ. H.N.	# occ. H.S.
Janvier	3 721	2 463	1 258
Février	4 155	2 965	1 190
Mars	3 590	2 760	830
Avril	3 019	2 404	615
Mai	3 274	2 788	486
Juin	3 481	2 608	873
Juillet	3 563	1 850	1 713
Août	3 400	1 421	1 979
Septembre	3 723	2 414	1 309
Octobre	3 807	2 957	850
Novembre	3 330	2 305	1 025
Décembre	3 424	2 420	1 004

Table 4.4 - Nombre d'occurrence total, dans l'H.N. et l'H.S., détecté mensuellement sur toute la période 2008-2020.

Le maximum d'occurrence des STT détecté globalement est en février et le minimum en avril. Comme nous l'avons déjà noté, dans l'H.N., les nombres d'occurrence mensuels sont toujours supérieurs à ceux de l'H.S., excepté en août où le nombre d'occurrence atteint son maximum dans l'H.S. Remarquons que les nombres d'occurrence des STT de l'H.N. ne sont pas toujours le double de ceux de l'H.S.

Les cycles saisonniers correspondants sont tracés à la figure 4.20. Comme déjà discuté précédemment (figure 4.17), cette figure montre clairement que le maximum de STT est détecté en hiver dans les deux hémisphères (février dans l'H.N. et août dans l'H.S.). Le minimum est observé en été (août) dans l'H.N. et en automne (mai) dans l'H.S. La saisonnalité, calculée selon $\frac{(\text{valeur}_{\max} - \text{valeur}_{\min})}{(\text{valeur}_{\max} + \text{valeur}_{\min})} \times 100$ (%), est considérablement plus marquée dans l'H.S. (saisonnalité de 60 %) que dans l'H.N. (saisonnalité de 30%).

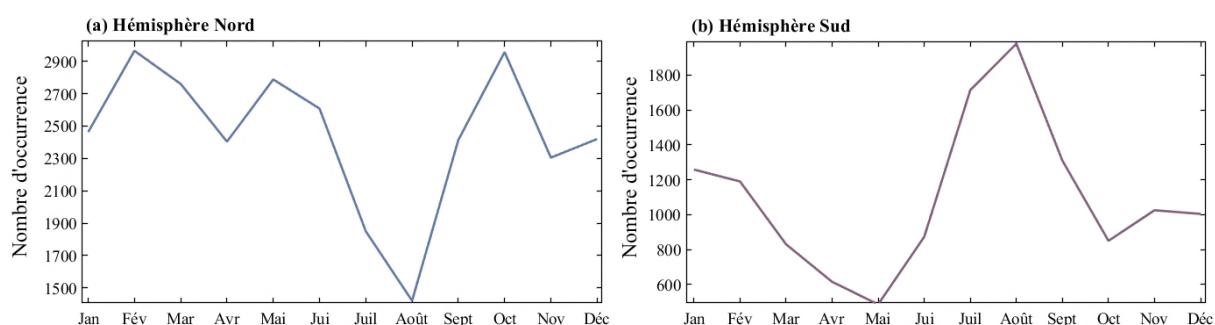


Fig. 4.20 - Cycles saisonniers du nombre d'occurrence moyenné sur la période 2008-2020 pour les deux hémisphères. Les échelles dans les deux hémisphères sont différentes.

Bien que les études de James et al. (2003), de Sprenger & Wernli (2003) et de Škerlak et al. (2013) ne présentent pas un nombre d'occurrence, nous obtenons des résultats similaires pour l'H.N en termes de saisonnalité. En effet, ces précédentes études de modélisation prévoient des valeurs de STT maximales durant l'hiver et des valeurs minimales en août et en septembre. Par contre, dans l'H.S., Škerlak et al. (2013) trouvent des valeurs de STT plus ou moins constantes

tout au long de l'année, dont une saisonnalité bien plus faible que celle que nous trouvons pour l'H.S. et un maximum/minimum en hiver/été austral.

4.3.2 Influence des STT sur l'ozone troposphérique moyen entre 700-300 hPa sur la période d'étude (2008-2020)

Afin d'estimer l'influence des intrusions stratosphériques sur les niveaux moyens d'ozone troposphérique, une première approche consiste à comparer les concentrations d'O₃ troposphérique moyen mesurées entre 700 et 300 hPa dans des situations d'intrusions stratosphériques et mises en évidence par l'application d'un filtre approprié pour l'identification des STT (voir section 4.2), à celles d'O₃ troposphérique moyen mesurées en dehors de toute intrusion stratosphérique pour les mêmes latitudes (entre 30° et 60° pour l'H.N. et entre 25° et 45° pour l'H.S.). Les séries temporelles journalières correspondantes sont illustrées à la figure 4.21.

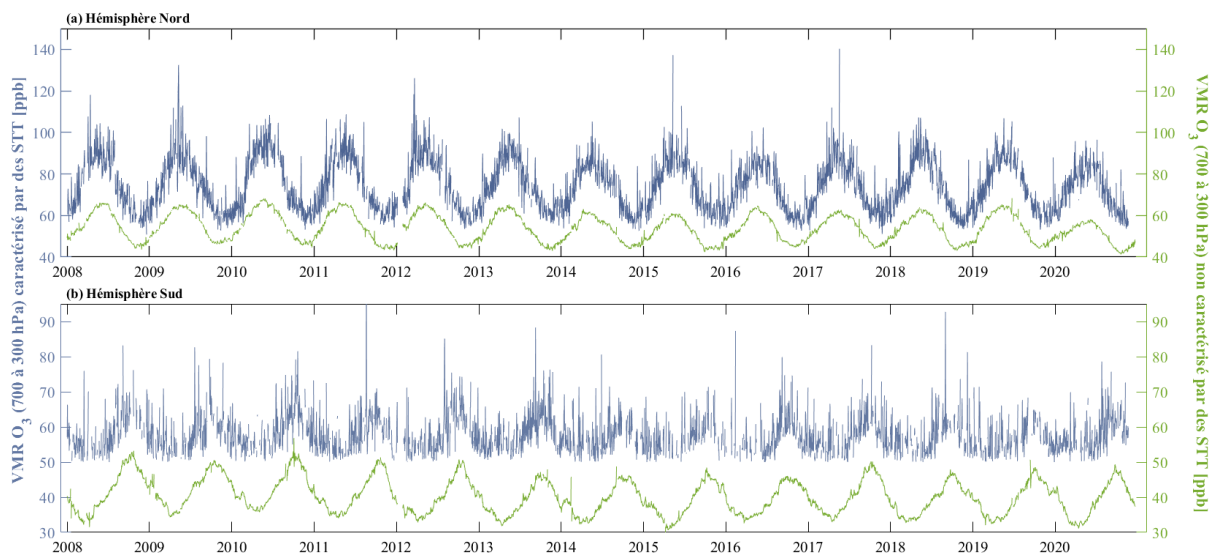


Fig. 4.21 - Séries temporelles journalières des concentrations moyennes d'ozone troposphérique entre 700 et 300 hPa (exprimé en ppb) caractérisé (en bleu) ou non (en vert) par des STT dans les bandes de latitudes comprises entre 30°-60°N et 25°-45°S.

En plus de la saisonnalité de l'O₃ troposphérique qui reflète une production photochimique de l'O₃ importante au printemps et en été (sections 1.2.1 et 4.1), nous observons très clairement ici qu'en cas d'intrusion stratosphérique, les quantités d'ozone troposphérique augmentent d'environ 40 ppb dans l'H.N. et 30 ppb dans l'H.S. en moyenne, par rapport aux concentrations de fond. Notons que ces concentrations sont supérieures aux erreurs totales d'inversion associées aux colonnes d'ozone de 700 à 300 hPa (< 15 %, voir section 4.1).

Une deuxième approche pour quantifier l'influence des intrusions stratosphériques sur les niveaux moyens d'O₃ troposphérique consiste à considérer les anomalies dans les concentrations d'O₃ troposphérique (exprimées en % ou en ppb ; voir section 4.2.1, équation 4.2) en cas d'intrusion stratosphérique sur toute la période étudiée (2008-2020). Les distributions globales des contributions des STT à l'ozone troposphérique ainsi calculées sont illustrées sur la figure 4.22 (en ppb et en %).

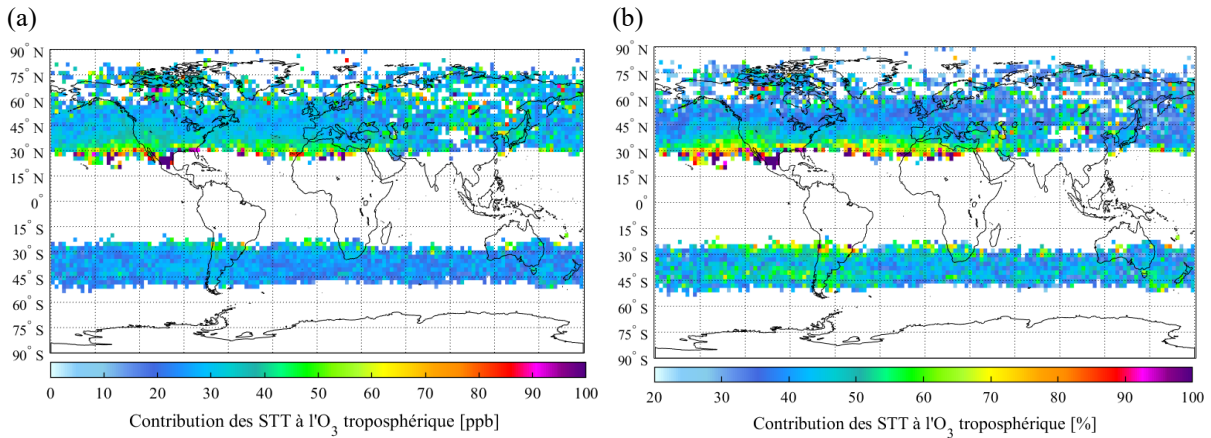


Fig. 4.22 - Distributions globales annuelles des contributions des STT à l'ozone troposphérique moyen entre 700 et 300 hPa, exprimées en ppb (a) et en % (b) pour la période 2008-2020.

Les contributions stratosphériques sont plus importantes dans l'H.N. que dans l'H.S., avec des augmentations d'O₃ troposphérique de ~ 35 ppb (soit ~ 55 %) par rapport à ~ 25 ppb (soit ~ 45 %), en moyenne hémisphérique. Ces distributions nous montrent que les contributions des STT à l'ozone troposphérique sont maximales le long de la bande de latitudes comprise entre 30° et 40° dans l'H.N. tandis que dans l'H.S., les contributions sont plus importantes au-dessus des continents et, en particulier à l'Ouest et au-dessus de l'Amérique du Sud.

Nos résultats sont en accord avec Lamarque et al. (1999) qui ont estimé, à l'aide d'un modèle, que l'influence des STT sur l'ozone troposphérique dans la haute troposphère dans les deux hémisphères est de 40-50 %. Lelieveld et Dentener (2000) considèrent une influence moyenne annuelle entre 25 et 50 % dans la basse et moyenne troposphère extratropicale où IASI est cependant moins sensible (voir section 4.1).

Les distributions globales des contributions (en ppb ; pas illustrées en %) des STT à l'ozone troposphérique en moyenne mensuelle sur toute la période IASI (2008-2020) sont présentées à la figure 4.23. Les contributions sont en général plus importantes dans l'H.N. que dans l'H.S., en particulier de février à mai avec des augmentations moyennes de ~ 40 ppb dans l'H.N. Dans l'H.S., les contributions sont plus intenses en avril et en mai (~ 35 ppb en moyenne).

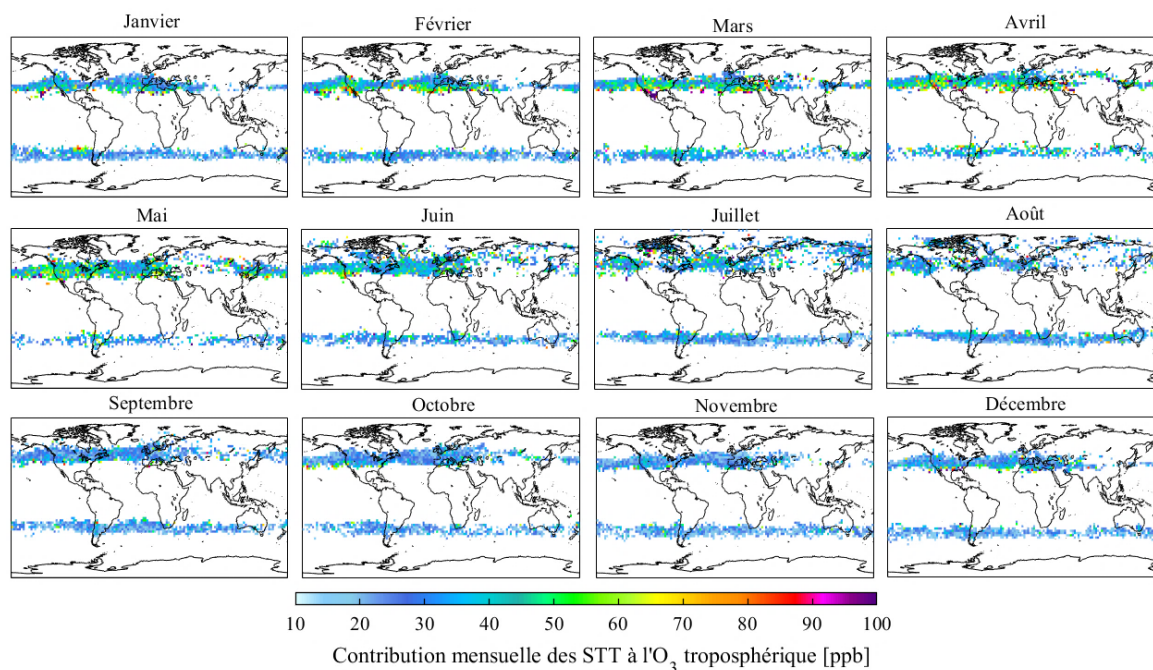


Fig. 4.23 - Distributions globales mensuelles des contributions des STT à l'ozone troposphérique (ppb) moyennées sur la période 2008-2020.

La table 4.5 compare nos résultats à ceux reportés dans la littérature, que nous avons décrits au chapitre 2 (voir en particulier la table 2.1).

Contribution d'O ₃ strato. à l'O ₃ tropo. (en %)		Région	Référence
Réf.	Ce travail		
10-50	45-55	Globe et extratropiques	Lamarque et al. (1999) et Lelieveld et Dentener (2000)
10-35	20-45	Canada	Dibb et al. (1994) et Tarasick et al. (2019)
15-30 ; 50-80	10-45	Europe	Stohl et al. (2000), Zanis et al. (2003), Colette & Ancellet (2005) et Williams et al. (2019)
25-30 ; 50-80	20-30	Océan Austral	Greenslade et al. (2017) et Williams et al. (2019)
15	20-40	Chine	Wang et al. (2020)
25-30 ; 50-80	15-50	États-Unis (Nord-Est)	Thompson et al. (2007) et Williams et al. (2019)

Table 4.5 - Comparaisons des contributions de l'ozone stratosphérique à l'ozone troposphérique (en %) obtenues dans ce travail et dans la littérature.

Nous relevons de cette comparaison les résultats suivants. Au Canada, au printemps et en été, Tarasick et al. (2019) estiment une contribution de 34 % qui concorde avec nos résultats. En Europe, l'influence stratosphérique a été évaluée de 15 à 25 % à la fin de l'hiver et au début du printemps (Stohl et al., 2003) et de 3 à 18% tout au long de l'année (Zanis et al., 2003), dans la gamme des valeurs que nous trouvons, qui grimpent cependant jusqu'à 45 %. En fonction des régions de l'Océan Antarctique et du Pacifique Sud, la contribution de l'ozone stratosphérique varie entre 25 et 80 % (Greenslade et al., 2017 et Williams et al., 2019) sur l'année, en accord avec la valeur mesurée allant de 20 % à 30 %. Au Nord-Est des États-Unis, en été, une influence stratosphérique de plus de 20-25 % est reportée (Thompson et al., 2007) mais d'après Williams

et al. (2019), elle peut atteindre 80 %, en accord avec nos résultats (contribution de ~ 40 % en moyenne, pouvant atteindre 80 % localement). Wang et al. (2020) indiquent une part de 15 % en Chine en avril où nous détectons peu de STT.

Les séries temporelles journalières des concentrations d'O₃ troposphérique moyen mesurées entre 700 et 300 hPa dans les observations caractérisées par des STT (voir aussi figure 4.21) ainsi que de l'influence de ces STT sur les mesures d'O₃ troposphérique sont illustrées sur la figure 4.24.

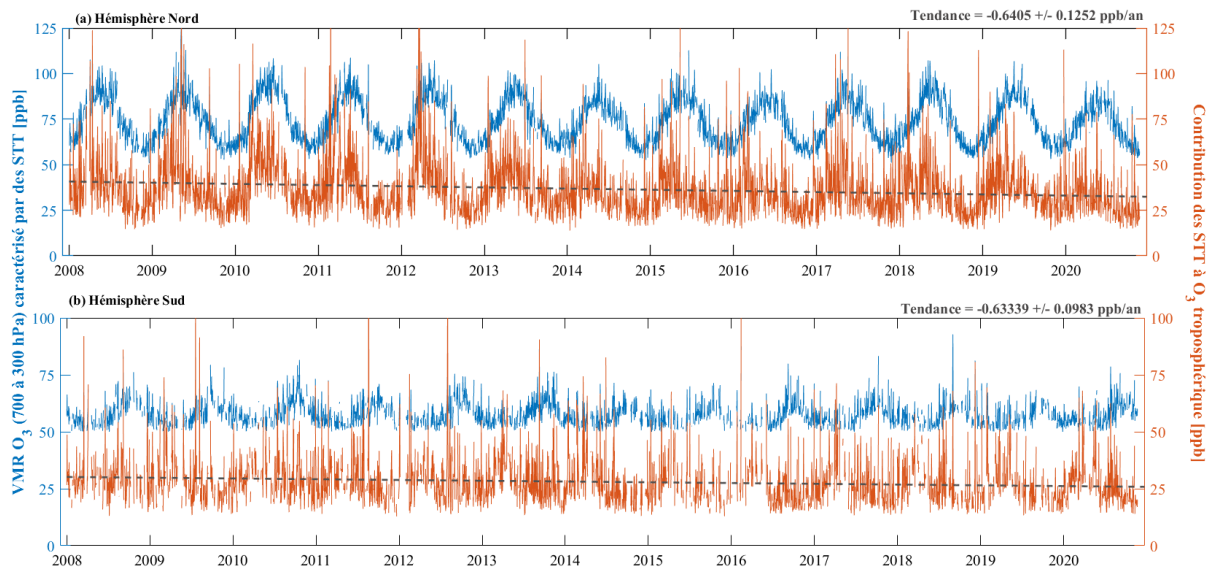


Fig. 4.24 - Séries temporelles journalières des concentrations d'ozone troposphérique moyennées entre 700 et 300 hPa et caractérisées par des STT (ppb ; en bleu), et de la contribution des STT à l'ozone troposphérique (ppb ; en orange). Les régressions linéaires des contributions sont également représentées (en pointillés).

L'influence des STT sur l'ozone troposphérique varie sur cette base journalière entre ~ 20 - 100 ppb et ~ 20 - 60 ppb pour l'H.N. et l'H.S., respectivement. L'amplitude de cette variation dans chacun des hémisphères est supérieure à l'erreur totale d'inversion associée à la mesure d'ozone entre 700 et 300 hPa (~ 13 ppb en moyenne dans l'H.N et ~ 11 ppb dans l'H.S.). Notons que certaines années atteignent des contributions plus importantes dans les deux hémisphères.

Dans la contribution des STT à l'O₃ troposphérique, une nette saisonnalité est également visible, en particulier dans l'H.N. avec un maximum au printemps (février-mai) et un minimum en automne (octobre-novembre). Elle est clairement illustrée à la figure 4.25 qui représente les cycles saisonniers des contributions des STT à l'ozone troposphérique (en ppb) dans les deux hémisphères (saisonnalité calculée de 25 % dans l'H.N. et de 20 % dans l'H.S., soit supérieure à l'erreur totale d'inversion ~ 15 % sur la colonne d'ozone de 700 hPa à 300 hPa). Le minimum présent dans les contributions des STT semble donc décalé de 2-3 mois par rapport au cycle saisonnier du nombre d'occurrence présenté à la figure 4.20 (maximum de STT en hiver/printemps mais minimum en été dans l'H.N.). Cette saisonnalité dans la contribution des STT résulte probablement d'une combinaison de plusieurs effets : saisonnalité dans le nombre d'évènements de STT (figure 4.20), saisonnalité dans l'O₃ de la basse stratosphère (maximum fin hiver/début printemps ; Wespes et al., 2016) et intensité maximale des intrusions profondes en février-mars (Škerlak et al., 2013).

Dans l’H.S., le cycle saisonnier observé dans les contributions des STT est plus complexe à analyser. Il se caractérise par un maximum en avril et un minimum en novembre et semble donc opposé au cycle saisonnier observé dans le nombre d’occurrence des STT (maximum en août et minimum en mai ; figure 4.20) et celui observé dans l’O₃ de la basse stratosphère (Wespes et al, 2016). Nous observons cependant un second mais faible maximum dans les contributions en août qui pourrait refléter le maximum du nombre d’occurrence des STT et le maximum d’ozone dans la basse stratosphère fin d’hiver/début printemps. Le pic inattendu en avril pourrait provenir d’un artefact en raison des très faibles concentrations d’ozone mesurées dans la troposphère durant cette période ; de plus amples investigations sont nécessaires pour préciser ce résultat.

Les tendances linéaires calculées dans les séries temporelles des contributions des STT à l’O₃ troposphérique (voir les régressions linéaires représentées en pointillés à la figure 4.24 et les tendances correspondantes) sont particulièrement faibles et ne permettent donc pas de détecter une augmentation des STT sur la période disponible par IASI et ce, contrairement à Hegglin & Shepherd (2009), Zeng et al. (2010) ou encore Abalos et al. (2020), qui se basent sur de très longues périodes de résultats de simulations (plus de trente ans). De plus, nous considérons une colonne d’ozone troposphérique elle-même affectée par des tendances tantôt positives, tantôt négatives en fonction de la situation géographique (Wespes et al., 2018). Aux moyennes et hautes latitudes de l’H.N., des tendances négatives sont observées en accord avec le déclin des émissions de précurseurs d’ozone (Wespes et al., 2016), ce qui rend toute augmentation des STT particulièrement difficile à détecter.

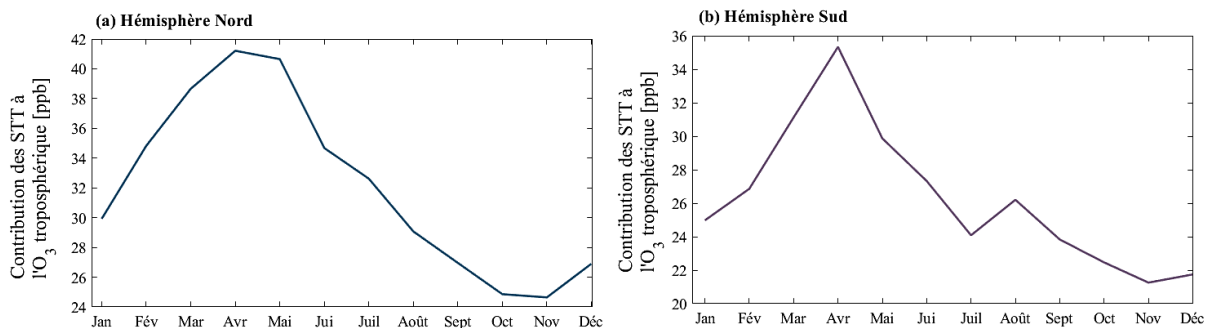


Fig. 4.25 - Cycles saisonniers des contributions des STT à l’ozone troposphérique (ppb) dans les deux hémisphères. Notons que les échelles sont différentes pour chaque hémisphère. L’amplitude du cycle saisonnier (saisonnalité) dans l’hémisphère Nord est de 25 % contre 20 % dans l’hémisphère Sud.

4.4 Conclusions

A la section 4.1, nous avons analysé les concentrations d’ozone, exprimées en VMR, dans la couche troposphérique allant de 700 à 300 hPa (là où la sensibilité de l’instrument IASI dans la troposphère est élevée) pour limiter les variations de la hauteur de la tropopause ainsi que pour exclure la basse troposphère où l’instrument IASI est moins sensible à l’ozone. A la section 4.2, nous avons établi un filtre général combinant différents critères de sélection qui s’appuient sur des valeurs distinctives de plusieurs variables chimiques et dynamiques (concentration d’O₃, hauteur de tropopause, PV, géopotential) et de leurs anomalies, afin de caractériser les

intrusions stratosphériques dans les mesures d’ozone troposphérique effectuées depuis IASI. Nous avons également montré des profils associés à des cas d’intrusions qui mettent clairement en évidence une augmentation d’ozone dans la haute troposphère (autour de 250 hPa) dans des situations d’intrusions stratosphériques. Cet excès s’exprime nettement dans la colonne de 700 à 300 hPa. Pour finir, à la section 4.3, nous avons discuté les distributions spatiales et temporelles des STT et leur influence sur les niveaux d’ozone troposphérique moyens. Nous avons montré un nombre d’occurrence total des STT et des contributions stratosphériques dans l’ensemble plus élevé dans l’H.N. que dans l’H.S. (~ 35 ppb par rapport à ~ 25 ppb) avec des STT prépondérants aux moyennes latitudes dans les deux hémisphères à proximité des jet-streams, en accord avec la littérature. En termes de cycles saisonniers du nombre d’occurrence, des maxima sont observés en hiver (février dans l’H.N. et août dans l’H.S.) et des minima en été dans l’H.N et en automne austral dans l’H.S. En revanche, pour les contributions d’ozone stratosphérique, calculées sur base des anomalies, nous observons un décalage qui s’explique par une combinaison d’effets. Finalement, nous avons calculé des tendances non significatives dans les contributions d’ozone stratosphérique, vraisemblablement en raison d’une série temporelle encore trop courte.

Chapitre 5

Conclusions générales et perspectives

Le premier chapitre a permis de donner un aperçu de la composition et de la dynamique de l'atmosphère en rappelant les principaux processus relatifs à la formation et destruction de l'ozone dans l'atmosphère.

Le deuxième chapitre a expliqué les échanges stratosphère-troposphère (STE) avec en particulier, le transport de la stratosphère à la troposphère (STT) qui amène les masses d'air et les composés atmosphériques de la stratosphère à travers la tropopause en quelques jours (~ 4 jours). Nous avons évoqué que ces STT se déroulent majoritairement aux latitudes moyennes en raison de plusieurs processus : les foliations de la tropopause à proximité des jet-streams polaire et subtropical, les cyclones « cut-off », les systèmes convectifs et les orages. Les cycles saisonniers des flux de masses associés aux STT provenant des études de Škerlak et al. (2013 ; 2014), ont mis en évidence des maxima en hiver et des minima à la fin de l'été dans les deux hémisphères. Pour finir, nous avons montré que la quantification de la contribution des STT à l'ozone troposphérique est encore incertaine et difficile à déterminer. La plupart des études jusqu'ici ont été soit locales, soit basées sur des simulations de modèle.

Le travail exposé dans ce mémoire est une tentative de quantifier la part des intrusions stratosphériques au système troposphérique à partir d'un ensemble unique de mesures d'ozone par l'instrument IASI sur une période de 13 ans. L'instrument de sondage IASI et les mesures d'ozone qui en sont restituées ont été décrites au chapitre 3 où les principaux éléments du transfert radiatif ont été apportés.

Le chapitre 4 a proposé une méthodologie originale pour la détection, la caractérisation et la quantification des intrusions stratosphériques des moyennes et hautes latitudes dans le jeu de données IASI. La méthode pour identifier les intrusions stratosphériques repose sur un filtre général combinant différents critères de sélection qui s'appuient sur des valeurs distinctives de plusieurs variables chimiques et dynamiques, à savoir les concentrations d'O₃ exprimées en VMR dans la couche de 700 à 300 hPa, la hauteur de la tropopause, les réanalyses ERA5 à 300 hPa de la vorticité potentielle et du géopotential, et leurs anomalies. L'ensemble des variables ont été analysées sur une série de cas d'études et illustrées sur 4 d'entre eux. Nous avons également caractérisé des profils d'ozone associés à ces 4 situations d'intrusions. Nous avons finalement étudié les distributions spatio-temporelles du nombre d'occurrence d'intrusions stratosphériques détectées par l'application du filtre général et sur la période IASI disponible (2008-2020). Pour terminer, nous avons quantifié l'influence de ces intrusions sur les niveaux d'O₃ troposphérique moyens mesurés par IASI entre 700 et 300 hPa sur toute la période d'étude.

Les principaux résultats obtenus les suivants :

- Les profils d'ozone associés aux situations d'intrusions stratosphériques mettent en évidence une augmentation d'O₃ dans la haute troposphère (autour de 250 hPa) qui induit également une nette augmentation dans la colonne de 700 à 300 hPa.
- Le nombre d'occurrence total des STT et les contributions stratosphériques sont plus élevés dans l'H.N. que dans l'H.S. (~ 35 ppb par rapport à 25 ppb) avec des STT prépondérants aux moyennes latitudes dans les deux hémisphères à proximité des jet-streams.
- En termes de cycles saisonniers du nombre d'occurrence, des maxima sont observés en hiver (février dans l'H.N. et août dans l'H.S.) et des minima en été dans l'H.N et en automne austral dans l'H.S. Pour les contributions stratosphériques, nous observons un décalage du cycle saisonnier qui s'explique par une combinaison d'effets.
- Les tendances dans les contributions des intrusions à l'ozone troposphérique sur la période 2008-2020 sont faiblement négatives mais inférieures à l'erreur totale d'inversion associée à la colonne d'ozone troposphérique et donc difficilement décelable, vraisemblablement en raison d'une série temporelle analysée encore trop courte.

Notre travail prospectif ouvre sur une série de perspectives à plus ou moins long terme. Par exemples :

- Etant donné que nous avons montré une augmentation de la sensibilité de l'instrument IASI dans l'UTLS lors d'une intrusion, de futures recherches pourraient envisager de considérer des colonnes de 700 à 200 hPa (ou de 300 à 200 hPa) afin d'obtenir une meilleure sensibilité à la contribution de l'ozone dans la colonne troposphérique. Néanmoins, en raison d'une plus faible sensibilité dans l'UTLS, l'erreur totale d'inversion y est particulièrement élevée (~ 50-60 %), rendant probablement difficile la mesure d'une augmentation d'ozone liée à une intrusion stratosphérique.
- La méthode mise au point est limitée entre les moyennes et hautes latitudes (à proximité des jet-streams) en raison de l'utilisation du géopotentiel. Afin de quantifier des intrusions aux tropiques, il serait intéressant de constituer un autre critère général en fonction des conditions d'ozone et de la hauteur de tropopause aux tropiques ne tenant plus compte des valeurs du géopotentiel, soit en considérant un géopotentiel adapté qui ne délimiterait plus les jet-streams.
- Nous avons analysé une période longue de 13 ans, un peu courte pour extraire des tendances sur le long terme. Grâce aux trois instruments IASI successivement lancés, une plus longue étendue sera disponible dans le futur. La série d'instruments IASI sera par ailleurs prolongée avec les instruments IASI-NG, ce qui offrira une continuité des mesures jusqu'en 2040 au minimum. Il sera alors intéressant à terme d'approfondir notre travail sur cette longue période afin de déterminer s'il existe une tendance ou non dans le nombre et l'amplitude des intrusions stratosphériques d'ozone et si celle-ci

s'exprime en réponse aux changements du climat, comme tendent à le suggérer plusieurs études.

Bibliographie

- Abalos, M., Orbe, C., Kinnison, D. E., Plummer, D., Oman, L. D., Jöckel, P., Morgenstern, O., Garcia, R. R., Zeng, G., Stone, K. A., & Dameris, M. (2020). Future trends in stratosphere-to-troposphere transport in CCM1 models. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 20(11), 6883-6901. <https://doi.org/10.5194/acp-20-6883-2020>
- Akritidis, D., Katragkou, E., Zanis, P., Pytharoulis, I., Melas, D., Flemming, J., Inness, A., Clark, H., Plu, M., & Eskes, H. (2018). A deep stratosphere-to-troposphere ozone transport event over Europe simulated in CAMS global and regional forecast systems : Analysis and evaluation. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18, 15515-15534. <https://doi.org/10.5194/acp-18-15515-2018>
- Appenzeller, C., Holton, J. R., & Rosenlof, K. H. (1996). Seasonal variation of mass transport across the tropopause. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 101(D10), 15071-15078. <https://doi.org/10.1029/96JD00821>
- Barré, J., Peuch, V.-H., Attié, J.-L., El Amraoui, L., Lahoz, W. A., Josse, B., Claeysman, M., & Nédélec, P. (2012). Stratosphere-troposphere ozone exchange from high resolution MLS ozone analyses. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12(14), 6129-6144. <https://doi.org/10.5194/acp-12-6129-2012>
- Binder, H. V. (2017). *Warm conveyor belts : Cloud structure and role for cyclone dynamics and extreme events* [Doctoral Thesis, ETH Zurich]. <https://doi.org/10.3929/ethz-b-000164982>
- Blumstein, D., Chalon, G., Carlier, T., Buil, C., Hébert, P., Maciaszek, T., Ponce, G., Phulpin, T., Tournier, B., Simeoni, D., Astruc, P., & Clauss, A. (2004). IASI instrument : Technical overview and measured performances. *Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering*, 5543. <https://doi.org/10.1117/12.560907>
- Boothe, A., & Homeyer, C. (2016). Global large-scale stratosphere-troposphere exchange in modern reanalyses. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 1-34. <https://doi.org/10.5194/acp-2016-788>
- Boynard, A., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Turquety, S., George, M., Hadji-Lazaro, J., Keim, C., & Meyer-Arnek, J. (2009). Measurements of total and tropospheric ozone from IASI: Comparison with correlative satellite, ground-based and ozonesonde observations. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(16), 6255-6271. <https://doi.org/10.5194/acp-9-6255-2009>
- Boynard, A., Hurtmans, D., Garane, K., Goutail, F., Hadji-Lazaro, J., Koukouli, M. E., Wespes, C., Vigouroux, C., Keppens, A., Pommereau, J.-P., Pazmino, A., Balis, D., Loyola, D., Valks, P., Sussmann, R., Smale, D., Coheur, P.-F., & Clerbaux, C. (2018). Validation of the IASI FORLI/EUMETSAT ozone products using satellite (GOME-2), ground-based (Brewer–Dobson, SAOZ, FTIR) and ozonesonde measurements. *Atmospheric Measurement Techniques*, 11(9), 5125-5152. <https://doi.org/10.5194/amt-11-5125-2018>

- Brasseur, G. P., & Solomon, S. (2005). *Aeronomy of the Middle Atmosphere : Chemistry and Physics of the Stratosphere and Mesosphere*. Springer Science & Business Media.
- Burrows, J. P., Platt, U., & Borrell, P. (Éds.). (2011). *The Remote Sensing of Tropospheric Composition from Space*. Springer-Verlag. <https://doi.org/10.1007/978-3-642-14791-3>
- Butchart, N., & Scaife, A. A. (2001). Removal of chlorofluorocarbons by increased mass exchange between the stratosphere and troposphere in a changing climate. *Nature*, *410*(6830), 799-802. <https://doi.org/10.1038/35071047>
- Cayla, F.-R. (2011). L'interféromètre IASI - Un nouveau sondeur satellitaire haute résolution. *La Météorologie [ISSN 0026-1181]*, *2001*, Série 8, N° 32 ; p. 23-39, 32. <https://doi.org/10.4267/2042/36150>
- Chance, K., & Martin, R. V. (2017). *Spectroscopy and Radiative Transfer of Planetary Atmospheres*. Oxford University Press.
- Chanin, M.-L., Clerbaux, C., & Godin-Beeckmann, S. (2015). *L'Evolution de l'ozone atmosphérique : Le point en 2015*.
- Clerbaux, C., Boynard, A., Clarisse, L., George, M., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Hurtmans, D., Pommier, M., Razavi, A., Turquety, S., Wespes, C., & Coheur, P.-F. (2009). Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared IASI/MetOp sounder. *Atmospheric Chemistry and Physics*, *9*(16), 6041-6054. <https://doi.org/10.5194/acp-9-6041-2009>
- Cohen, J., Zhang, X., Francis, J., Jung, T., Kwok, R., Overland, J., Ballinger, T., Blackport, R., Bhatt, U. S., Chen, H., Coumou, D., Feldstein, S., Handorf, D., Hell, M., Henderson, G., Ionita, M., Kretschmer, M., Laliberte, F., Lee, S., ... Yoon, J. (2018). ARCTIC CHANGE AND POSSIBLE INFLUENCE ON MID-LATITUDE CLIMATE AND WEATHER: A US CLIVAR White Paper. *US CLIVAR Reports*, *n/a*. <https://doi.org/10.5065/D6TH8KGW>
- Colette, A., & Ancellet, G. (2005). Impact of vertical transport processes on the tropospheric ozone layering above Europe. : Part II: Climatological analysis of the past 30 years. *Atmospheric Environment*, *39*(29), 5423-5435. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.06.015>
- De Deckker, P. (2016). The Indo-Pacific Warm Pool : Critical to world oceanography and world climate. *Geoscience Letters*, *3*(1), 20. <https://doi.org/10.1186/s40562-016-0054-3>
- Delmas, R., & Mégie, G. (2015). *Physique et chimie de l'atmosphère : 2e édition*. Humensis.
- Dibb, J. E., Meeker, L. D., Finkel, R. C., Southon, J. R., Caffee, M. W., & Barrie, L. A. (1994). Estimation of stratospheric input to the Arctic troposphere : ⁷Be and ¹⁰Be in aerosols at Alert, Canada. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, *99*(D6), 12855-12864. <https://doi.org/10.1029/94JD00742>
- El Amraoui, L., Attié, J.-L., Semane, N., Claeysman, M., Peuch, V.-H., Warner, J., Ricaud, P., Cammas, J.-P., Piacentini, A., Josse, B., Cariolle, D., Massart, S., & Bencherif, H. (2010).

- Midlatitude stratosphere & troposphere exchange as diagnosed by MLS O₃ and MOPITT CO assimilated fields. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(5), 2175-2194. <https://doi.org/10.5194/acp-10-2175-2010>
- Gottelman, A., Kinnison, D. E., Dunkerton, T. J., & Brasseur, G. P. (2004). Impact of monsoon circulations on the upper troposphere and lower stratosphere. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 109(D22). <https://doi.org/10.1029/2004JD004878>
- Greenslade, J. W., Alexander, S. P., Schofield, R., Fisher, J. A., & Klekociuk, A. K. (2017). Stratospheric ozone intrusion events and their impacts on tropospheric ozone in the Southern Hemisphere. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 17(17), 10269-10290. <https://doi.org/10.5194/acp-17-10269-2017>
- Hegglin, M. I., & Shepherd, T. G. (2009). Large climate-induced changes in ultraviolet index and stratosphere-to-troposphere ozone flux. *Nature Geoscience*, 2(10), 687-691. <https://doi.org/10.1038/ngeo604>
- Hersbach, H., Bell, B., Berrisford, P., Biavati, G., Horányi, A., Muñoz Sabater, J., Nicolas, J., Peubey, C., Radu, R., Rozum, I., Schepers, D., Simmons, A., Soci, C., Dee, D., Thépaut, J.-N. (2018). ERA5 hourly data on pressure levels from 1979 to present. *Copernicus Climate Change Service (C3S) Climate Data Store (CDS)*. 10.24381/cds.bd0915c6
- Holton, J. R., Haynes, P. H., McIntyre, M. E., Douglass, A. R., Rood, R. B., & Pfister, L. (1995). Stratosphere-troposphere exchange. *Reviews of Geophysics*, 33(4), 403-439. <https://doi.org/10.1029/95RG02097>
- Hurrell, J. W. (2005). North Atlantic Oscillation. In J. E. Oliver (Éd.), *Encyclopedia of World Climatology* (p. 536-539). Springer Netherlands. https://doi.org/10.1007/1-4020-3266-8_150
- Hurtmans, D., Coheur, P.-F., Wespes, C., Clarisse, L., Scharf, O., Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., George, M., & Turquety, S. (2012). FORLI radiative transfer and retrieval code for IASI. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 113(11), 1391-1408. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2012.02.036>
- Jacob, D. J. (1999). *Introduction to Atmospheric Chemistry*. Princeton University Press.
- James, P., Stohl, A., Forster, C., Eckhardt, S., Seibert, P., & Frank, A. (2003). A 15-year climatology of stratosphere–troposphere exchange with a Lagrangian particle dispersion model 2. Mean climate and seasonal variability. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 108(D12). <https://doi.org/10.1029/2002JD002639>
- Keeley, S. (2013, décembre 17). *Climate reanalysis* [Text]. ECMWF. <https://www.ecmwf.int/en/research/climate-reanalysis>
- Ladstätter-Weissenmayer, A., Meyer-Arnek, J., Schlemm, A., & Burrows, J. P. (2004). Influence of stratospheric airmasses on tropospheric vertical O₃ columns based on GOME (Global Ozone

- Monitoring Experiment) measurements and backtrajectory calculation over the Pacific. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4(4), 903-909. <https://doi.org/10.5194/acp-4-903-2004>
- Lamarque, J.-F., Hess, P. G., & Tie, X. X. (1999). Three-dimensional model study of the influence of stratosphere-troposphere exchange and its distribution on tropospheric chemistry. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 104(D21), 26363-26372. <https://doi.org/10.1029/1999JD900762>
- Lelieveld, J., & Dentener, F. J. (2000). What controls tropospheric ozone? *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 105(D3), 3531-3551. <https://doi.org/10.1029/1999JD901011>
- Liu, J., Rodriguez, J. M., Oman, L. D., Douglass, A. R., Olsen, M. A., & Hu, L. (2020). Stratospheric impact on the Northern Hemisphere winter and spring ozone interannual variability in the troposphere. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 20(11), 6417-6433. <https://doi.org/10.5194/acp-20-6417-2020>
- Mkololo, T., Mbatha, N., Sivakumar, V., Bègue, N., Coetzee, G., & Labuschagne, C. (2020). Stratosphere–Troposphere Exchange and O₃ Variability in the Lower Stratosphere and Upper Troposphere over the Irene SHADOZ Site, South Africa. *Atmosphere*, 11(6), 586. <https://doi.org/10.3390/atmos11060586>
- Mohanakumar, K. (2008). *Stratosphere Troposphere Interactions : An Introduction*. Springer Netherlands. <https://doi.org/10.1007/978-1-4020-8217-7>
- Olsen, M. A., Douglass, A. R., & Schoeberl, M. R. (2002). Estimating downward cross-tropopause ozone flux using column ozone and potential vorticity. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 107(D22), ACH 11-1-ACH 11-9. <https://doi.org/10.1029/2001JD002041>
- Petty, G. W. (2006). *A First Course in Atmospheric Radiation* (2 édition). Sundog Publishing.
- Reutter, P., Škerlak, B., Sprenger, M., & Wernli, H. (2015). Stratosphere–troposphere exchange (STE) in the vicinity of North Atlantic cyclones. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(19), 10939-10953. <https://doi.org/10.5194/acp-15-10939-2015>
- Rodgers, C. D. (2000). *Inverse Methods for Atmospheric Sounding : Theory and Practice*. WORLD SCIENTIFIC. <https://doi.org/10.1142/3171>
- Rothman, L. S., Jacquemart, D., Barbe, A., Chris Benner, D., Birk, M., Brown, L. R., Carleer, M. R., Chackerian Jr., C., Chance, K., Coudert, L. H., Dana, V., Devi, V. M., Flaud, J.-M., Gamache, R. R., Goldman, A., Hartmann, J.-M., Jucks, K. W., Maki, A. G., Mandin, J.-Y., Massie, S. T., Orphal, J., Perrin, A., Rinsland, C. P., Smith, M. A. H., Tennyson, J., Tolchenov, R. N., Toth, R. A., Vander Auwera, J., Varanasi, P., and Wagner, G. (2005). The HITRAN 2004 molecular spectroscopic database. *J. Quant. Spectrosc. and Radiat. Transfer*, 96, 139-204.
- Seinfeld, J. H., & Pandis, S. N. (2016). *Atmospheric Chemistry and Physics : From Air Pollution to Climate Change*. John Wiley & Sons.

- Škerlak, B. (2014). *Climatology and process studies of tropopause folds, cross-tropopause exchange, and transport into the boundary layer* [Doctoral Thesis, ETH Zurich]. <https://doi.org/10.3929/ethz-a-010256937>
- Škerlak, B., Sprenger, M., & Wernli, H. (2013). A global climatology of stratosphere-troposphere exchange using the ERA-interim dataset from 1979 to 2011. *Atmospheric Chemistry & Physics Discussions*, *13*, 11537-11595. <https://doi.org/10.5194/acpd-13-11537-2013>
- Sprenger, M., & Wernli, H. (2003). A Northern Hemispheric climatology of cross-tropopause exchange for the ERA15 time period (1979–1993). *Journal of Geophysical Research*, *108*. <https://doi.org/10.1029/2002JD002636>
- Stohl, A., Bonasoni, P., Cristofanelli, P., Collins, W., Feichter, J., Frank, A., Forster, C., Gerasopoulos, E., Gäggeler, H., James, P., Kentarchos, T., Kromp-Kolb, H., Krüger, B., Land, C., Meloan, J., Papayannis, A., Priller, A., Seibert, P., Sprenger, M., ... Zerefos, C. (2003). Stratosphere-troposphere exchange: A review, and what we have learned from STACCATO. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, *108*(D12). <https://doi.org/10.1029/2002JD002490>
- Stohl, A., Spichtinger-Rakowsky, N., Bonasoni, P., Feldmann, H., Memmesheimer, M., Scheel, H. E., Trickl, T., Hübener, S., Ringer, W., & Mandl, M. (2000). The influence of stratospheric intrusions on alpine ozone concentrations. *Atmospheric Environment*, *34*(9), 1323-1354. [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(99\)00320-9](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(99)00320-9)
- Tang, Q., Prather, M. J., & Hsu, J. (2011). Stratosphere-troposphere exchange ozone flux related to deep convection. *Geophysical Research Letters*, *38*(3). <https://doi.org/10.1029/2010GL046039>
- Tarasick, D. W., Carey-Smith, T. K., Hocking, W. K., Moeini, O., He, H., Liu, J., Osman, M. K., Thompson, A. M., Johnson, B. J., Oltmans, S. J., & Merrill, J. T. (2019). Quantifying stratosphere-troposphere transport of ozone using balloon-borne ozonesondes, radar windprofilers and trajectory models. *Atmospheric Environment*, *198*, 496-509. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2018.10.040>
- Thompson, A. M., Stone, J. B., Witte, J. C., Miller, S. K., Pierce, R. B., Chatfield, R. B., Oltmans, S. J., Cooper, O. R., Loucks, A. L., Taubman, B. F., Johnson, B. J., Joseph, E., Kucsera, T. L., Merrill, J. T., Morris, G. A., Hersey, S., Forbes, G., Newchurch, M. J., Schmidlin, F. J., ... Cammas, J.-P. (2007). Intercontinental Chemical Transport Experiment Ozonesonde Network Study (IONS) 2004: 1. Summertime upper troposphere/lower stratosphere ozone over northeastern North America. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, *112*(D12). <https://doi.org/10.1029/2006JD007441>
- Traub, M., & Lelieveld, J. (2003). Cross-tropopause transport over the eastern Mediterranean. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, *108*(D23). <https://doi.org/10.1029/2003JD003754>
- Tyrlis, E., Škerlak, B., Sprenger, M., Wernli, H., Zittis, G., & Lelieveld, J. (2014). On the linkage

between the Asian summer monsoon and tropopause fold activity over the eastern Mediterranean and the Middle East. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 119(6), 3202-3221. <https://doi.org/10.1002/2013JD021113>

Venkat Ratnam, M., Ravindra Babu, S., Das, S. S., Basha, G., Krishnamurthy, B. V., & Venkateswararao, B. (2016). Effect of tropical cyclones on the stratosphere–troposphere exchange observed using satellite observations over the north Indian Ocean. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(13), 8581-8591. <https://doi.org/10.5194/acp-16-8581-2016>

Wang, Y., Wang, H., & Wang, W. (2020). A Stratospheric Intrusion-Influenced Ozone Pollution Episode Associated with an Intense Horizontal-Trough Event. *Atmosphere*, 11(2), 164. <https://doi.org/10.3390/atmos11020164>

Wespes, C., Hurtmans, D., Clerbaux, C., Boynard, A., & Coheur, P.-F. (2018). Decrease in tropospheric O₃ levels in the Northern Hemisphere observed by IASI. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 18(9), 6867-6885. <https://doi.org/10.5194/acp-18-6867-2018>

Wespes, C., Hurtmans, D., Clerbaux, C., & Coheur, P.-F. (2017). O₃ variability in the troposphere as observed by IASI over 2008-2016 : Contribution of atmospheric chemistry and dynamics: Tropospheric O₃ Variability from IASI. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 122. <https://doi.org/10.1002/2016JD025875>

Wespes, Catherine, Hurtmans, D., Emmons, L. K., Safieddine, S., Clerbaux, C., Edwards, D. P., & Coheur, P.-F. (2016). Ozone variability in the troposphere and the stratosphere from the first 6 years of IASI observations (2008–2013). *Atmospheric Chemistry and Physics*, 16(9), 5721-5743. <https://doi.org/10.5194/acp-16-5721-2016>

Williams, R. S., Hegglin, M. I., Kerridge, B. J., Jöckel, P., Latter, B. G., & Plummer, D. A. (2019). Characterising the seasonal and geographical variability in tropospheric ozone, stratospheric influence and recent changes. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19(6), 3589-3620. <https://doi.org/10.5194/acp-19-3589-2019>

Zanis, P., Gerasopoulos, E., Priller, A., Schnabel, C., Stohl, A., Zerefos, C., Gäggeler, H. W., Tobler, L., Kubik, P. W., Kanter, H. J., Scheel, H. E., Luterbacher, J., & Berger, M. (2003). An estimate of the impact of stratosphere-to-troposphere transport (STT) on the lower free tropospheric ozone over the Alps using ¹⁰Be and ⁷Be measurements. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 108(D12). <https://doi.org/10.1029/2002JD002604>

Zeng, G., Morgenstern, O., Braesicke, P., & Pyle, J. A. (2010). Impact of stratospheric ozone recovery on tropospheric ozone and its budget. *Geophysical Research Letters*, 37(9). <https://doi.org/10.1029/2010GL042812>

