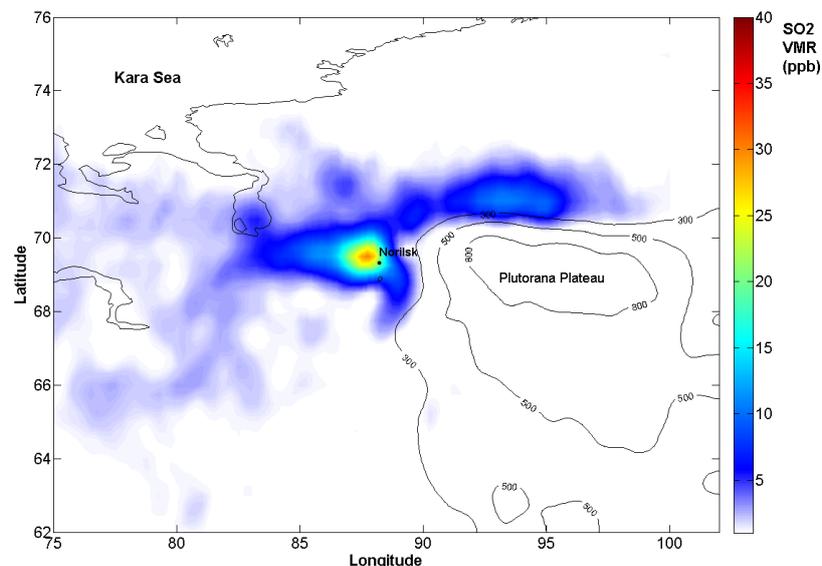


Mesures de la composition chimique dans la couche limite atmosphérique par l'instrument spatial IASI : application à l'étude du dioxyde de soufre dans la région de Norilsk



Faculté des sciences
Année académique 2011 - 2012

Promoteur : Pierre-François Coheur
Service : Chimie quantique et
photophysique

Mémoire de fin d'études présenté
par Sophie BAUDUIN en vue de
l'obtention du diplôme de Master
en sciences chimiques

Table des matières

Remerciements	1
Résumé.....	2
Chapitre 1 : Introduction et méthodes.....	4
1 Introduction.....	4
1.1 Composition chimique de l’atmosphère terrestre et pollution	4
1.2 Notions de durée de vie, temps de transport et de distribution spatiale.....	5
1.3 L’atmosphère terrestre et sa couche limite	8
2 Principes du sondage atmosphérique par satellite.....	9
2.1 Généralités	9
2.2 Formulation générale du transfert radiatif	12
2.3 Méthode inverse	15
2.4 Spécificité du transfert radiatif dans l’infrarouge thermique	16
3 Mesures de la composition de la couche limite atmosphérique par satellite	18
3.1 Résultats antérieurs.....	18
3.2 Objectifs du travail	20
Chapitre 2 : L’instrument spatial IASI et la région de Norilsk.....	22
1 L’instrument spatial IASI.....	22
1.1 Mission et caractéristiques instrumentales	22
1.2 Réalisations passées et présentes.....	26
1.2.1 Algorithmes et méthodes de détection	27
1.2.2 Etudes de la composition atmosphérique.....	29
2 La région polluée de Norilsk.....	30
2.1 Niveau de pollution	30
2.2 Climat.....	30
Chapitre 3 : Sensibilité de IASI au SO ₂ à Norilsk	34
1 Simulations de transfert radiatif	34
1.1 Paramètres de simulation	34
1.2 Définition du contraste thermique.....	36
1.3 Résultats	37
2 Comparaison de l’inversion des bandes v1 et v3	40
2.1 Paramètres d’inversion	41
2.2 Résultats	43
3 Conclusions.....	45
Chapitre 4 : Mesure de la teneur en SO ₂ de la CLA de Norilsk.....	47
1 Paramètres d’inversion	47

2	Résultats	48
2.1	Séries temporelles	49
2.2	Distribution spatiale du SO ₂ autour de Norilsk	52
2.3	Relation entre les concentrations de SO ₂ et le contraste thermique	54
3	Intercomparaison IASI - OMI	54
3.1	L'instrument spatial OMI en bref et données utilisées	54
3.2	Comparaison IASI-OMI	55
	Chapitre 5 : Perspectives	57
1	Perspectives de la méthode OEMSE	57
1.1	Méthode OEMSE	57
1.2	Résultats préliminaires et perspectives	59
2	Autres perspectives	62
	Conclusions générales	64
	Bibliographie	66
	Annexes	70
	Annexe 1: Modèles atmosphériques standards	71
1	Profils de pression	71
2	Profils de température	72
3	Profils d'H ₂ O	72
4	Profil de CO ₂	73
5	Profils d'O ₃	73
6	Profils de CH ₄	74
	Annexe 2 : Sensibilité de IASI à différents polluants de la CLA pour différentes climatologies	75
1	SO ₂ (suite)	75
2	CO	77
3	O ₃	79
4	NH ₃	81
	Annexe 3 : Données complémentaires restituées pour la période 2009-2011	83
1	Données journalières	83
2	Données mensuelles	85

Résumé

Mesurer la composition de la couche limite atmosphérique (CLA) par satellite est essentiel pour améliorer notre compréhension des émissions globales de polluants et de leurs impacts sur la chimie atmosphérique et le climat. Jusqu'à récemment, les satellites opérant dans l'infrarouge thermique (TIR, détectant la radiance émise par la Terre) et dans la géométrie nadir étaient conventionnellement considérés comme inadéquats pour ce type de sondage. Ils ont en effet une très faible sensibilité aux basses couches de l'atmosphère dans la plupart des situations, en raison des faibles contrastes thermiques généralement rencontrés entre la surface terrestre et l'air juste au-dessus d'elle. Cependant, dans certaines régions, les contrastes thermiques peuvent être élevés, tant positivement que négativement. Des études récentes réalisées à l'ULB ont, d'ailleurs, démontré que la sensibilité des instruments TIR aux espèces traces présentes dans la CLA est fortement amplifiée dans des situations de contrastes thermiques positifs élevés. Ceci a notamment permis la restitution des distributions globales d'ammoniac.

Dans ce travail, nous exploitons pour la première fois les mesures prises par des sondeurs TIR dans des cas de contrastes thermiques négatifs pour détecter la pollution de la couche limite. Nous utilisons en particulier les observations de haute résolution spectrale de l'*Infrared Atmospheric Sounding Interferometer* (IASI), à bord de la plateforme MetOp. Nous nous concentrons également sur la région industrielle de Norilsk. Située au sein du cercle polaire arctique, la ville de Norilsk connaît des conditions hivernales extrêmes, caractérisées par des inversions de température persistantes. La région est également connue pour l'extraction de métaux lourds (nickel, cuivre,...) et pour ses importantes émissions de dioxyde de soufre (SO₂). Cette dernière espèce, qui n'a été détectée jusqu'à présent avec IASI que dans les panaches volcaniques au-delà de la CLA, est celle que nous ciblons dans ce travail.

Dans une première étape, nous avons réalisé une large gamme de simulations de transfert radiatif, afin d'évaluer la sensibilité du sondeur au signal provenant du SO₂ de la couche limite. Ces simulations ont été réalisées sur la région spectrale 1000-1450 cm⁻¹, pour inclure les bandes vibrationnelles ν_1 et ν_3 du SO₂, pour différentes valeurs de contraste thermique et de concentrations de gaz. Des conditions d'humidité distinctes ont été utilisées pour l'été et l'hiver. Les résultats obtenus ont montré que la bande ν_3 émerge théoriquement du bruit instrumental, pour des conditions de pollution modérée et de faible humidité, lorsque le contraste thermique est égal ou supérieur à 5° (en valeur absolue). Une pollution et/ou des contrastes thermiques plus élevés sont nécessaires pour exploiter l'information de la bande ν_1 . Une brève étude de sensibilité à la mesure des concentrations de SO₂ dans la CLA, via l'inversion de spectres dans les bandes ν_1 et ν_3 séparément et conjointement, a été réalisée. Les résultats ont confirmé l'utilisation plus avantageuse du signal de radiance de la bande ν_3 pour mesurer la concentration de SO₂ de la CLA. Nous avons alors montré qu'en utilisant cette information, le SO₂ pouvait être effectivement observé dans la CLA de la région entourant Norilsk pour les cinq mois froids de l'année, se caractérisant par des inversions de température à basse altitude.

Sur base de ces résultats, nous avons restitué les colonnes partielles de surface de SO₂ à Norilsk, en inversant les spectres enregistrés sur la période 2009-2011 pour les mois d'hiver (novembre à mars). Nous montrons que les colonnes restituées atteignent des maxima de l'ordre de 500 ppb, mais que la variabilité journalière de ces valeurs est importante. Les moyennes mensuelles sont comprises entre 20-30 ppb. Des séries temporelles ont été construites pour la période et placées dans un contexte plus large en utilisant des mesures existantes pour les années 1990. La réunion des différentes mesures montre une diminution importante des concentrations de SO₂ en 2002, celles-ci restant à des valeurs relativement constantes par la suite. Nos résultats apportent ainsi une démonstration de la réduction effective des émissions de SO₂ par rapport aux années 1990.

Les distributions spatiales des concentrations de SO₂ dans la CLA ont été obtenues dans une large zone entourant Norilsk. Elles montrent des maxima de concentration localisés sur la ville de Norilsk elle-même, ainsi que sur la ville industrielle voisine de Kayarkan. Enfin, la complémentarité des sondeurs UV (OMI a été utilisé pour cette analyse) et TIR a également été mise en évidence, les premiers fournissant les colonnes de SO₂ estivales et les seconds restituant les hivernales.

Finalement, dans la dernière partie du mémoire, nous avons montré que le recours à une méthode de détection des espèces traces, utilisant simultanément de nombreux canaux spectraux, permet d'améliorer considérablement les résultats. Elle ouvre de nombreuses perspectives au sondage du SO₂ de la couche limite, en élargissant notamment les capacités de mesure des sondeurs TIR à des contrastes thermiques plus faibles et une humidité plus élevée.

Chapitre 1 : Introduction et méthodes

1 Introduction

Les problèmes liés au changement climatique et à la qualité de l'air sont actuellement devenus des sujets de première importance à travers le monde, tant au niveau scientifique que politique. Depuis la révolution industrielle, la population mondiale ainsi que son niveau de vie ont fortement augmenté grâce, notamment, à l'accessibilité à une énergie peu coûteuse, produite en majorité par la combustion des ressources fossiles. Cependant, cette croissance humaine et technologique s'est accompagnée d'émissions non négligeables de gaz (à effet de serre, polluants) et d'aérosols dans l'atmosphère, en raison de l'augmentation des activités industrielles, du développement d'une agriculture intensive et d'une déforestation galopante, en particulier en région tropicale. Ces émissions, encore élevées à l'heure d'aujourd'hui, altèrent profondément l'atmosphère et sa composition, et les conséquences en sont profondes voire désastreuses. On peut citer comme exemples, le réchauffement climatique, la destruction de la couche d'ozone ou encore les épisodes de pollution de surface extrêmes (ex : Londres, 1952, smog de type soufré). Par ses activités et son développement, l'Homme a donc un impact global sur le système terrestre et est devenu, en quelque sorte, la principale force géophysique de la planète, capable de modifier son environnement. Cet état de fait a conduit certains scientifiques à définir une nouvelle ère géologique débutant avec la révolution industrielle (XVIII^e siècle): l'Anthropocène [1].

Au cours de la dernière décennie, les scientifiques ont fait des progrès significatifs dans la compréhension des causes et des implications des changements environnementaux [2, 3]. Cependant, de nombreux processus du système atmosphérique global restent incertains et en partie incompris. Etant donné l'impact qu'ils ont sur le climat, mais également sur la santé humaine et les écosystèmes, il existe aujourd'hui un important besoin de comprendre les changements atmosphériques présents et de prédire les changements futurs. Ceci permettra d'établir des politiques efficaces de régulation et de diminution des rejets de certains composés problématiques (polluants, gaz à effet de serre,...). Utiliser des techniques de surveillance avancées, établir des observations à long terme, tant au niveau régional que global, et intégrer celles-ci dans des modèles théoriques complexes devient donc indispensable à la compréhension et aux prévisions de ces changements globaux. Il est à noter que contrairement aux gaz à effet de serre, les observations à long terme dédiées aux espèces réactives et aux aérosols n'ont que récemment été initiées, notamment en réponse aux conventions et protocoles internationaux.

Dans cette introduction, nous parlerons de la notion de « pollution atmosphérique » qui nous intéresse plus particulièrement dans ce mémoire, lequel vise à réaliser les premières mesures par sondeurs IR, embarqués sur satellites, de la teneur en dioxyde de soufre (SO₂, polluant important) dans l'air de surface de la ville de Norilsk. Dans cette partie, nous décrivons tout d'abord la composition générale de l'atmosphère, ensuite nous abordons les notions de durée de vie et de distributions spatiales des composés atmosphériques. Ces deux notions nous seront très utiles pour comprendre et interpréter les variations temporelles des quantités de SO₂ mesurées au cours d'une année à Norilsk (chapitre 4). Enfin, nous définissons et discutons de la notion de couche limite atmosphérique polluée.

1.1 Composition chimique de l'atmosphère terrestre et pollution

L'atmosphère terrestre est principalement constituée de gaz inertes : 78.09% de N₂, 20.95% d'O₂ et 0.93% d'Ar pour l'air sec. La vapeur d'eau est le composant majoritaire suivant. Elle se trouve principalement dans les basses couches de l'atmosphère et sa quantité est très variable : elle peut atteindre plus de 3%. Les constituants restants représentent moins de 1% de l'atmosphère. On

distingue les gaz mineurs, tels que le dioxyde de carbone (CO₂) ou le méthane (CH₄), des gaz en traces (SO₂, CO,...).

- **Sources, espèces primaires et secondaires**

Parmi les différents composants présents dans l'atmosphère, on distingue généralement les espèces primaires des espèces secondaires : une espèce primaire est directement émise dans l'atmosphère tandis qu'une espèce secondaire est formée dans l'atmosphère à la suite de processus physico-chimiques. On distingue également les émissions liées à l'activité naturelle (ex : éruptions volcaniques, organismes vivants), des émissions anthropiques, liées à l'activité humaine (ex : transports). Selon l'espèce primaire considérée, les sources anthropiques jouent un rôle plus ou moins important.

- **Pollution atmosphérique et qualité de l'air**

La notion de « polluants atmosphériques » fait référence aux composés en traces de l'atmosphère, émis principalement par une activité anthropique ou résultant de la transformation de composés primaires, qui ont un effet néfaste sur la santé ou les écosystèmes lorsqu'ils sont présents dans des quantités excédant un certain seuil (différent selon l'espèce). Le terme « qualité de l'air » décrit donc généralement la composition chimique en gaz en traces (ayant un impact négatif sur la santé) de l'air. Par cette définition, il est évident que le problème de pollution atmosphérique concerne essentiellement l'atmosphère de surface. Les polluants les plus importants qui s'y retrouvent sont : le SO₂, l'ozone (O₃), les oxydes d'azote (NO_x), le monoxyde de carbone (CO) et les composés organiques volatiles (COV). Leurs concentrations contribuent à déterminer la qualité de l'air. A titre d'exemple, les standards de qualité de l'air en Europe pour le SO₂ imposent, dans le cas de la protection de la santé humaine, une concentration limite de 125 µg/m³ pour un maximum de 4 jours par an, et dans le cas de la protection des écosystèmes, une concentration seuil de 20 µg/m³ en moyenne annuelle [4].

Aux polluants gazeux s'ajoutent les aérosols, constitués de particules solides ou liquides en suspension dans l'air. Leur composition chimique est variable, on distingue en général les aérosols inorganiques des aérosols organiques. Ils peuvent également être des mélanges complexes d'espèces organiques, inorganiques, de suie et éventuellement d'eau liquide. Leur taille s'étend de quelques nanomètres à quelques dizaines de micromètres. De la même manière que pour les gaz, on distingue les aérosols primaires (émis) des aérosols secondaires (formés). Leurs émissions peuvent être naturelles ou anthropiques. Les aérosols peuvent avoir un impact direct sur la santé ; c'est notamment le cas des particules ultrafines qui ne sont pas filtrées par l'appareil respiratoire.

1.2 Notions de durée de vie, temps de transport et de distribution spatiale

Les notions de durée de vie (ou temps de résidence) d'une espèce atmosphérique et de temps de transport sont importantes pour comprendre comment cette espèce se distribue dans l'atmosphère et donc pour évaluer son impact.

- **Durée de vie ou temps de résidence atmosphérique d'une espèce**

La durée de vie d'une espèce atmosphérique est une mesure moyenne du temps nécessaire pour qu'une molécule représentative de celle-ci quitte une région donnée de l'atmosphère. Trois types de processus peuvent être responsables de la disparition de l'espèce de l'atmosphère : le transport hors de la zone considérée, les phénomènes de déposition et les réactions chimiques.

Le principe physique fondamental décrivant le comportement d'un composé dans l'atmosphère est la conservation de la masse. Si on considère un certain volume d'air, celle-ci peut s'écrire mathématiquement de la façon suivante :

$$\frac{dQ}{dt} = (F_{in} - F_{out}) + (P - R)$$

Où Q est la masse totale de la substance dans le volume d'air, F_{in} et F_{out} sont les flux de masse de la substance dans et hors du volume d'air respectivement, P est la vitesse d'introduction de l'espèce à partir d'une source et R est la vitesse d'élimination de l'espèce.

La durée de vie (τ) du composé s'exprime donc comme :

$$\tau = \frac{Q}{R + F_{out}}$$

Dans le cas particulier où la masse totale dans le volume d'air est constante ($dQ/dt = 0$), on obtient :

$$\tau = \frac{Q}{R + F_{out}} = \frac{Q}{P + F_{in}}$$

On est alors dans des conditions « d'état stationnaire ».

Dans le cas où le volume d'air représente toute l'atmosphère, F_{in} et F_{out} sont égaux à 0.

Enfin, les termes P et R regroupent chacun différentes contributions:

$$P \left\{ \begin{array}{l} \text{émissions naturelles} \\ \text{émissions anthropiques} \\ \text{réactions chimiques} \end{array} \right. \quad \text{et} \quad R \left\{ \begin{array}{l} \text{déposition sèche} \\ \text{déposition humide} \\ \text{réactions chimiques} \end{array} \right.$$

- **Temps de transport atmosphérique**

Le temps de transport atmosphérique représente le temps nécessaire au transport d'un composé au sein d'un réservoir ou entre différents réservoirs atmosphériques. Ce temps est donc directement relié à une échelle spatiale (continentale, hémisphérique,...).

Le transport d'espèces dans l'atmosphère résulte des mouvements d'air. On distingue les transports horizontaux des transports verticaux. Les temps moyens caractéristiques de ceux-ci pour la troposphère sont résumés dans le tableau 1.1 [5].

Tableau 1.1 : Temps caractéristiques moyens de transport dans la troposphère.

	Transport	Temps moyens caractéristiques
Transport horizontal dans les basses couches atmosphériques	Continental	1 semaine
	Intercontinental	2 semaines
	Hémisphérique	1 mois
	Inter-hémisphérique	1 an
Transport vertical	Couche limite atmosphérique	1 heure à 1 journée
	Troposphère	1 mois
	Echange troposphère vers stratosphère	5 à 10 ans

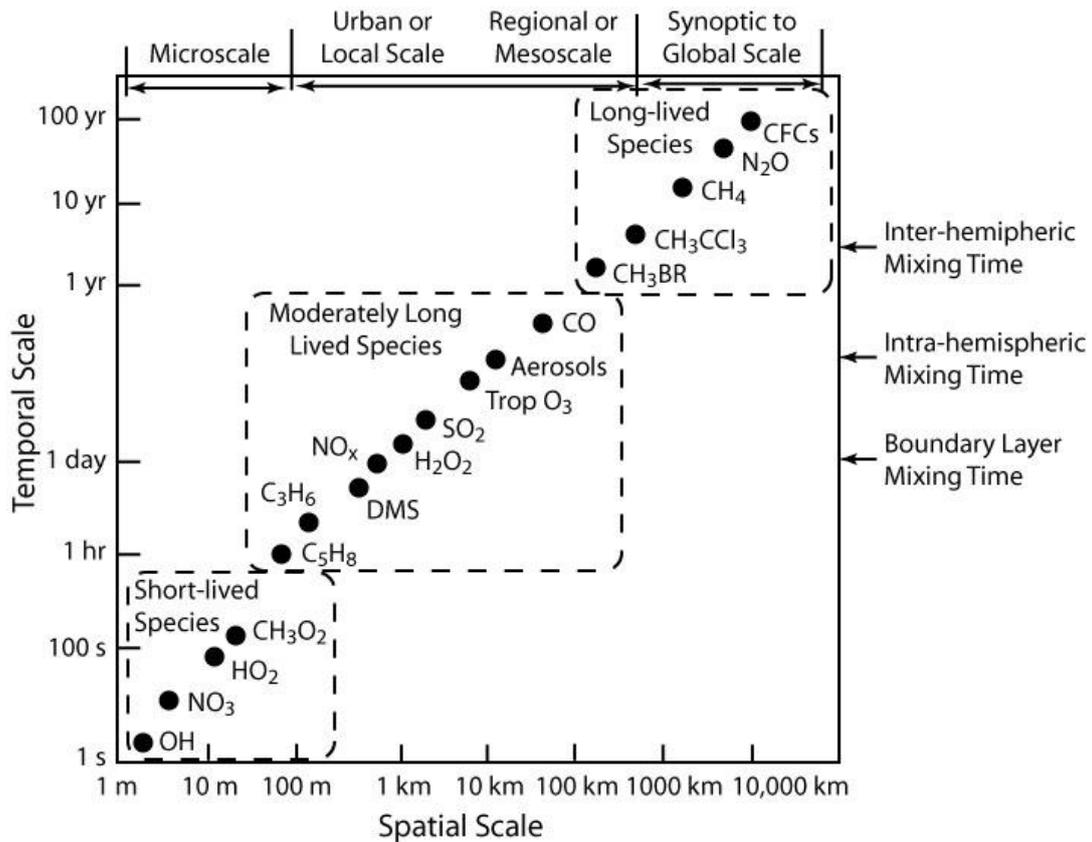


Figure 1.1 : Echelles temporelle et spatiale caractéristiques de certaines espèces atmosphériques. Sur l'axe des abscisses se trouve l'échelle de transport spatiale, associée au temps de vie de l'espèce (axe des ordonnées). Les différents constituants de l'atmosphère sont regroupés en trois catégories : espèces à courtes, à moyennes et à longues durées de vie. L'impact associé à chaque type de substance est indiqué en haut de la figure. Enfin, certains temps de transport caractéristiques de l'atmosphère sont indiqués à droite de la figure. Image tirée de [6].

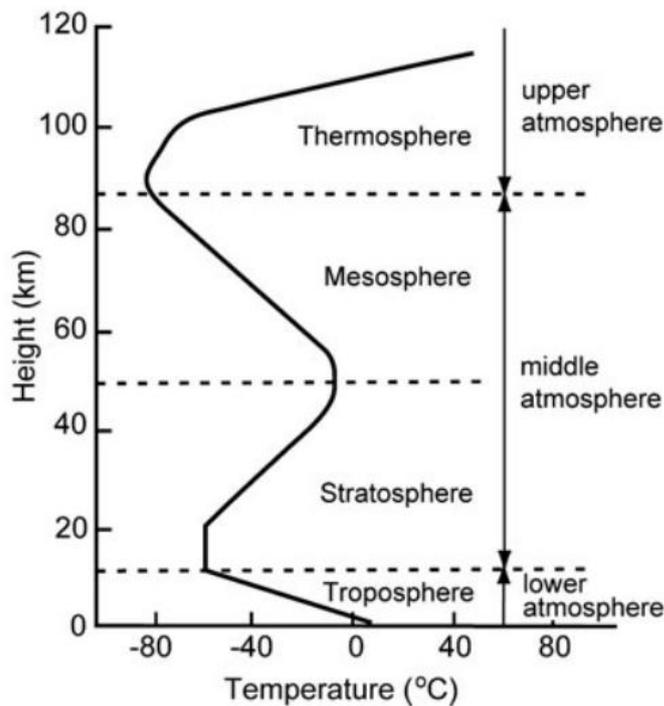


Figure 1.2 : Stratification de l'atmosphère terrestre (profil de température US Standard 1976).

Les deux notions introduites ci-dessus nous permettent de comprendre comment une espèce se distribue dans l'atmosphère et d'évaluer si son impact sera plutôt local ou global : en effet, plus sa durée de vie est courte, plus son échelle spatiale caractéristique sera petite et inversement. Par exemple, le radical hydroxyle (OH), dont la durée de vie est inférieure à la minute, a une échelle de transport horizontal de l'ordre du mètre (voir figure 1.1).

La comparaison de la durée de vie d'une espèce et du temps moyen de transport dans l'atmosphère nous permet de prédire l'impact que pourra avoir cette espèce sur le système atmosphérique. Si la durée de vie d'une substance est de l'ordre du temps moyen de transport à l'échelle continentale, alors la substance aura un impact continental, si le temps de vie est comparable au temps de transfert de la troposphère à la stratosphère, l'impact de l'espèce touchera la stratosphère, etc.

Nous pouvons illustrer les concepts précédents (résumés à la figure 1.1) par l'exemple du SO₂, qui nous concernera par la suite. La durée de vie de celui-ci est de l'ordre de 2 jours, avec des variations au cours des saisons. Il est en effet plus long en hiver (environ trois jours) et plus court en été (1 jour voire moins) [7]. L'impact du SO₂ est donc relativement local, et devrait se restreindre, dans le cas de Norilsk que nous décrivons plus loin, à la ville et à ses alentours. L'un des phénomènes de disparition principaux de ce composé est son oxydation en H₂SO₄ qui a, lui, un temps de vie de l'ordre de 5 jours. Les pluies acides engendrées par les rejets de SO₂ ont donc un impact continental, et dans le cas particulier de Norilsk, elles vont jusqu'à affecter une partie de l'Arctique [8]. Sur l'échelle verticale, le SO₂ peut être considéré comme uniformément mélangé dans la couche limite atmosphérique (définition à la sous-section suivante). Par opposition aux composés fortement réactifs dont fait partie le SO₂, nous pouvons citer à titre illustratif le cas des CFCs, composés extrêmement stables (durée de vie de plusieurs dizaines d'années) dont l'impact est global et s'étend à la stratosphère, et le CH₄, dont le temps de vie est de l'ordre de 10 ans et peut donc être considéré comme uniformément mélangé sur le globe dans la troposphère.

1.3 L'atmosphère terrestre et sa couche limite

Après avoir décrit la composition de l'atmosphère terrestre, nous nous intéressons dans cette sous-section à décrire sa structure verticale et nous nous attardons plus particulièrement sur sa couche limite, qui fait l'objet de ce travail et qui est, par nature, la plus affectée par les émissions de surface.

La stratification de l'atmosphère est définie selon le gradient de la température. On distingue (voir figure 1.2) :

- La **troposphère** qui est la plus basse couche de l'atmosphère et qui s'étend de la surface à 10-15 km (tropopause) selon la latitude et la période de l'année. Le gradient de température y est négatif.
- La **stratosphère** qui s'étend de la tropopause à la stratopause (de 45 à 55 km d'altitude) et qui comprend la couche d'ozone. Le gradient de température y est positif.
- La **mésosphère** qui s'étend de la stratopause à la mésopause (de 80 à 90 km d'altitude). Le gradient de température y est négatif.
- La **thermosphère** qui s'étend jusqu'à ~ 500 km d'altitude.
- L'**exosphère** qui s'étend au-delà de 500 km d'altitude.

La couche limite atmosphérique (CLA) est définie comme la partie de la troposphère directement soumise à l'influence de la surface terrestre. Elle est donc directement concernée par les problèmes de pollution atmosphérique. La partie restante de la troposphère est appelée « troposphère libre ».

La hauteur de la couche limite est très variable: elle peut atteindre 2 à 3 km en cours de journée ou n'être que de quelques centaines de mètres pendant la nuit. Elle est déterminée par la

présence d'une faible inversion de température (la température croît avec l'altitude au lieu de diminuer) à la jonction avec la troposphère libre. Les conditions régnant dans la CLA sont également variables et sont, entre autre, liées à l'évolution du profil de température de la couche au cours d'une journée. Typiquement¹, pendant le jour, le sol est chauffé par le rayonnement solaire et le profil de température est décroissant. Des masses d'air chaudes ascendantes se développent et contribuent au brassage vertical de la couche limite (on parle d'état instable de la CLA). Pendant la nuit, le sol se refroidit et sa température peut devenir inférieure à la température de l'air au-dessus : on assiste à la formation d'une inversion de température de surface. Cette inversion de température empêche tout brassage vertical (on parle d'état stable de la CLA) : les composés émis au sol, tels que des polluants par exemple, s'accumulent donc à la surface. Il est important de remarquer que la formation d'inversion de température de surface ne se produit pas exclusivement pendant la nuit. En effet, dans certains cas particuliers, elles peuvent se former et perdurer pendant le jour, lorsque le rayonnement solaire ne réchauffe pas suffisamment le sol. Ce genre de situations se rencontre notamment en hiver aux hautes latitudes, en particulier dans les régions situées au-delà du cercle polaire arctique, où très peu de rayonnement solaire atteint la surface (durée de jour très courte). Elles sont au centre de nos préoccupations car, comme nous l'expliquerons par après (voir sous-section 2.4 et chapitre 2), ces conditions sont favorables pour les mesures de pollution depuis les satellites opérant dans l'infrarouge.

Par ce qui a été décrit ci-dessus, il apparaît que l'étude de la qualité de l'air passe par une bonne compréhension des processus dynamiques se déroulant dans la couche limite atmosphérique. Ceux-ci détermineront, en effet, le transport et le brassage des polluants. De plus, le suivi permanent de la composition de cette couche est nécessaire, afin de déterminer les concentrations des espèces nocives et de pouvoir avertir les populations d'un éventuel épisode de pollution.

2 Principes du sondage atmosphérique par satellite

Il existe plusieurs façons de sonder l'atmosphère, chacune ayant ses propres caractéristiques. Les mesures sont tout d'abord caractérisées par une échelle temporelle : elles peuvent être réalisées sur une période restreinte, pour étudier un phénomène en particulier par exemple, ou s'étendre sur une longue période, et ainsi suivre l'évolution d'un paramètre atmosphérique (ex : concentration d'un gaz à effet de serre). De plus, les mesures se caractérisent par une échelle spatiale : elles peuvent être locales, régionales ou encore globales. Enfin, on peut également distinguer les mesures *in situ* des mesures « à distance ». Les observations *in situ* consistent en la récolte d'un échantillon d'air et en son analyse par divers méthodes (chromatographie en phase gazeuse, spectrométrie de masse,...). Les mesures « à distance » regroupent, elles, les diverses techniques permettant de détecter les propriétés de l'atmosphère en un point éloigné de l'instrument de mesure (ex : mesures satellites).

Au cours de ce travail, nous nous sommes intéressés au sondage de l'atmosphère par satellite. Nous décrivons donc les principes généraux s'appliquant à ce type de mesure dans les sous-sections suivantes.

2.1 Généralités

L'étude de l'atmosphère par des mesures satellites s'est développée ces vingt dernières années. Les satellites sont aujourd'hui des éléments centraux pour différentes problématiques dans le domaine de l'observation de la planète Terre. Le principe de ce sondage repose sur l'interaction entre un rayonnement électromagnétique et la matière (ici, les constituants atmosphériques)².

¹ Ceci n'est qu'une description simplifiée et très générale. Les cas réels sont en grande partie beaucoup plus complexes et variés.

² Notons que ce principe n'est pas retreint aux mesures satellites, mais s'applique également à d'autres types de mesures à distance. Ex : mesures faites depuis le sol.

L'absorption, l'émission et la diffusion du rayonnement résultant de cette interaction provoquent une modification des propriétés spectrales du rayonnement de départ. La détection de ce changement par des instruments spécialisés (spectromètres, interféromètres,...) montés sur plateforme satellite permet d'obtenir des informations sur l'état de l'atmosphère.

- **Sondage actif et passif**

Les systèmes de mesure à bord des satellites ne sont pas tous identiques et diffèrent, entre autre, par la source de rayonnement utilisée. On distingue ainsi (figure 1.3) :

- Le sondage passif : la source de rayonnement est naturelle (ex : rayonnements solaire, terrestre,...).
- Le sondage actif : la source de rayonnement est artificielle et provient de l'instrumentation présente à bord du satellite.

La région spectrale étudiée varie également d'un instrument à l'autre. Elle est généralement comprise entre les domaines de l'ultraviolet et des microondes. Son choix, lors du développement de l'instrumentation, dépendra notamment du ou des paramètres atmosphériques que l'on souhaite étudier.

- **Géométries d'observation**

Le sondage de l'atmosphère par satellite comprend différentes géométries d'observations (figure 1.4) :

- Nadir : pointage de l'instrument vers le bas. Le rayonnement solaire réfléchi par la surface ou rétrodiffusé par l'atmosphère, de même que le rayonnement thermique émis par la surface terrestre et/ou l'atmosphère, sont détectables dans cette géométrie.
- Limbe : pointage de l'instrument au limbe de l'atmosphère. Le déplacement du satellite permet de réaliser des mesures à différentes altitudes.
- Occultation : pointage de l'instrument au limbe de l'atmosphère lors d'un « lever » ou d'un « coucher » d'un astre (Soleil, étoile,...). Le déplacement du satellite permet de réaliser des mesures à différentes altitudes.

- **Orbites**

Finalement, on distingue principalement deux types d'orbites satellitaires :

- Les orbites basses (généralement polaires) : l'altitude du satellite est d'environ 800 km et l'orbite peut être synchronisée sur le Soleil (le satellite croise toujours l'équateur à la même heure locale). Ce type d'orbite correspond à celle de la plateforme MetOp (qui comprend l'instrument IASI³) qui nous concerne dans ce mémoire, et dont une description est fournie dans le chapitre 2.
- Les orbites géostationnaires : l'altitude du satellite est d'environ 36000 km et l'instrumentation suit la rotation de la Terre.

L'orbite d'un satellite et sa géométrie de mesure déterminent sa capacité d'observation. En effet, sa couverture spatiale, son échantillonnage temporel et sa résolution verticale dépendent fortement de ces deux caractéristiques. Ainsi :

- Un sondeur dont l'orbite est polaire et observant en mode nadir a une couverture quasi globale de la planète et un échantillonnage temporel de 12h dans le meilleur des cas. Les

³ IASI = *Infrared Atmospheric Sounding Interferometer*.

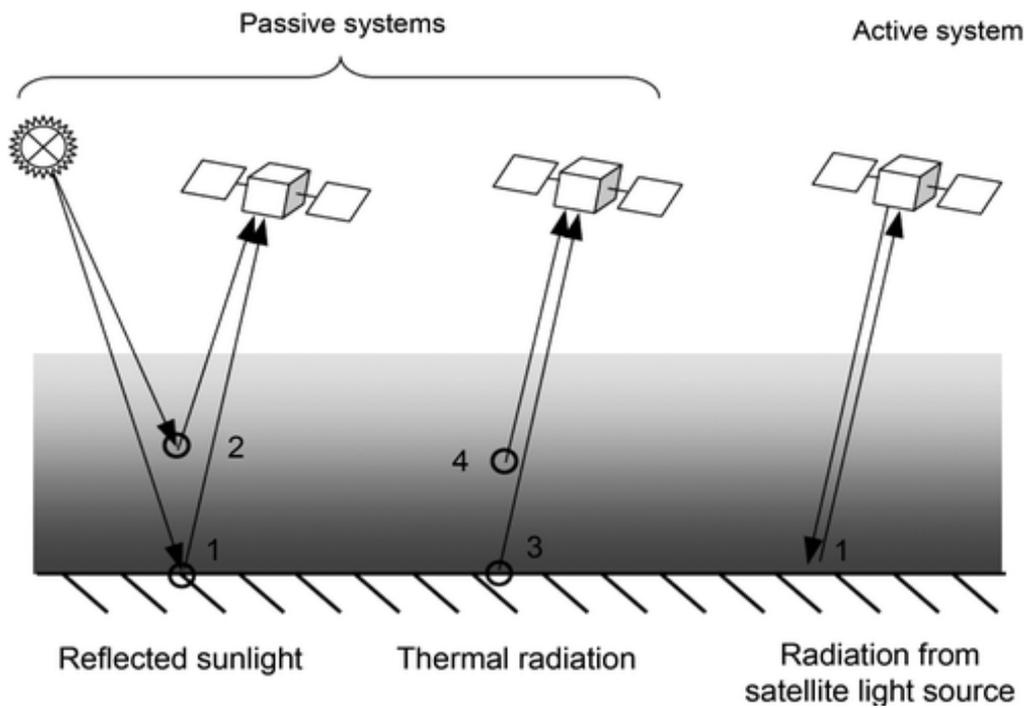


Figure 1.3 : Sondage passif et actif. Le rayonnement solaire peut être réfléchi par la surface ou diffusé par l'atmosphère. La radiation thermique détectée au sondeur peut être émise par la surface terrestre et/ou par les gaz atmosphériques. Dans le cas d'un système actif, le rayonnement redirigé vers le sondeur est analysé. Image tirée de [3].

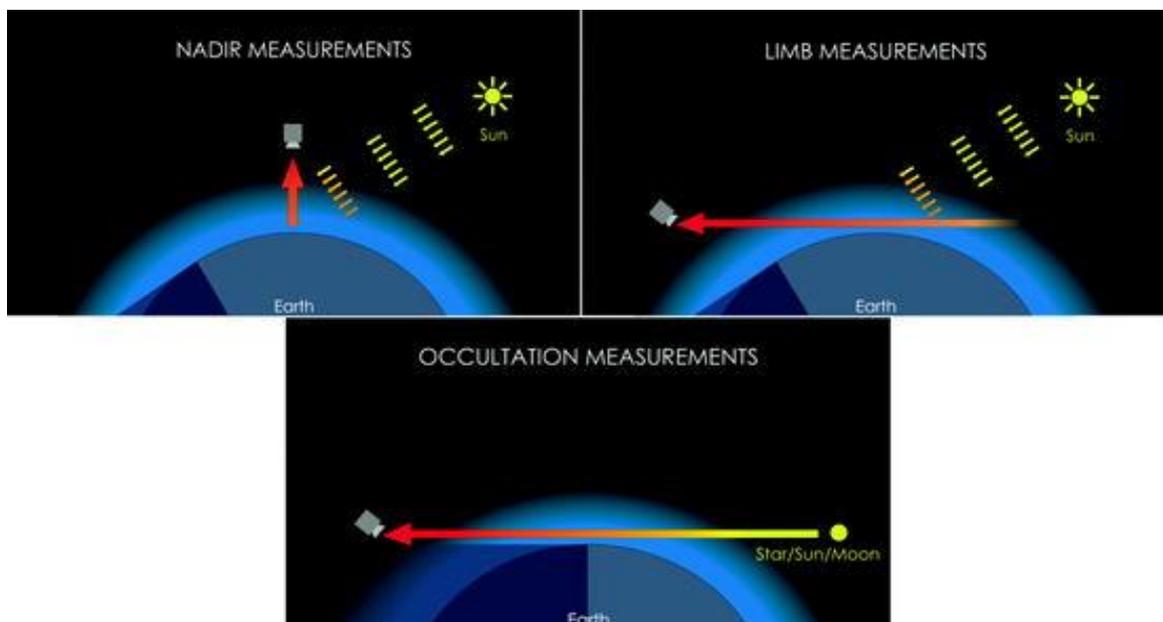


Figure 1.4 : Géométries d'observations possibles pour le sondage par satellite. Image tirée de [3].

observations du même sondeur, mais dont le mode d'observation est l'occultation solaire, seront limitées au terminateur de la planète.

- Une orbite géostationnaire limite l'étude de l'atmosphère à une partie du globe, mais son échantillonnage temporel pour cette partie est élevé et meilleur que celui d'une orbite polaire (une mesure toutes les 30 à 60 minutes).
- Un sondeur, dont l'observation est réalisée en occultation ou au limbe, a une bien meilleure résolution verticale qu'un sondeur opérant au nadir. En effet, le premier effectue des mesures à différentes altitudes, ce qui permet de construire les profils verticaux de différents paramètres atmosphériques (ex : concentrations de gaz en traces). Le second recueille, quant à lui, une mesure intégrée sur l'ensemble de l'atmosphère. La détermination de profils verticaux est alors plus complexe. Notons que, dans le cas de sondeur nadir, on quantifie généralement les constituants atmosphériques en termes de colonnes⁴.
- Enfin, selon le type de géométrie d'observation, différentes parties de l'atmosphère peuvent être sondées : les mesures au limbe et en occultation couvrent généralement une région allant de la haute troposphère à la haute atmosphère (mésosphère et thermosphère), alors que les mesures faites au nadir concernent plutôt les basses couches de l'atmosphère (troposphère et stratosphère).

Comme nous l'avons décrit ci-dessus, le sondage de l'atmosphère par satellite repose sur les principes de spectroscopie. Afin de déduire l'état de l'atmosphère à partir des spectres enregistrés par les instruments à bord des satellites, il faut avoir recours à des modèles de transfert radiatif et à des méthodes inverses. Nous abordons ces deux aspects dans les sous-sections suivantes.

2.2 Formulation générale du transfert radiatif

L'étude du transfert radiatif est l'étude de la transmission d'un rayonnement électromagnétique par un certain milieu. Dans le cas du sondage atmosphérique, le transfert radiatif décrit comment ce rayonnement traverse l'atmosphère, en tenant compte de son altération par les processus d'absorption, d'émission et de diffusion [9].

L'équation générale du transfert radiatif dans l'atmosphère, décrivant la propagation de la radiation dans la dimension verticale, peut s'écrire de la façon suivante [10] :

$$L^\uparrow(\tilde{\nu}; \theta, z) = L^\uparrow(\tilde{\nu}; \theta, 0)t(\tilde{\nu}; \theta, 0, z) + \int_0^z J(\tilde{\nu}, \Omega, z') \frac{\partial}{\partial z'} t(\tilde{\nu}; \theta, z', z) dz' \quad (1.1)$$

Où $L^\uparrow(\tilde{\nu}; \theta, z)$ est la radiance monochromatique ($\tilde{\nu}$) enregistrée au sondeur, $L^\uparrow(\tilde{\nu}; \theta, 0)$ est la radiance monochromatique ($\tilde{\nu}$) au départ de la source de radiation, $t(\tilde{\nu}; \theta, z', z)$ est la transmittance du milieu de l'altitude z' à l'altitude z , et $J(\tilde{\nu}, \Omega, z')$ est le terme de source de l'atmosphère, qui tient compte de l'émission thermique et de la diffusion. L'angle θ est l'angle zénithal au sol, défini comme l'angle entre la verticale et le chemin optique du sol au satellite, et Ω représente la dépendance de J vis-à-vis des angles zénithal (θ) et azimuthal (ϕ).

La signification de cette équation est relativement simple à formuler. En effet, elle exprime que la radiance $L^\uparrow(\tilde{\nu}; \theta, z)$ mesurée au sondeur est la somme de deux contributions : l'atténuation par les constituants atmosphériques du rayonnement provenant de la source (premier terme dans le membre de droite de l'équation (1.1)), et l'atténuation (par les constituants atmosphériques) du rayonnement émis et diffusé par l'atmosphère (second terme).

⁴ La colonne d'un constituant atmosphérique représente la quantité de ce constituant dans une certaine colonne d'air (choisie selon le cas, elle peut être totale ou partielle, par exemple troposphérique,...). Elle s'exprime en molécules/unité de surface.

L'expression des différents termes de l'équation (1.1) dépend du domaine spectral étudié. Par exemple, l'émission thermique de l'atmosphère peut être négligée si la région spectrale étudiée se situe dans l'ultraviolet. Ceci ne sera pas notre cas, puisque nous nous intéresserons justement au domaine infrarouge et au mode d'observation nadir (voir chapitre 2 pour des détails de l'instrument).

Pour pouvoir calculer un spectre atmosphérique, la radiance $L^\uparrow(\tilde{\nu}; \theta, z)$ doit être évaluée et l'équation (1.1) doit être résolue [10]. Ceci nécessite de déterminer les contributions des différents termes de cette équation.

- **Ray tracing ou tracé du chemin optique**

La définition du chemin parcouru par le rayonnement dans l'atmosphère est indispensable à la résolution de l'équation du transfert radiatif. C'est ce qu'on appelle le « ray tracing ». Le trajet parcouru s est exprimé entre autre en fonction de l'altitude z , de l'angle zénithal θ et en tenant compte de la courbure de la Terre.

- **Terme atmosphérique $J(\tilde{\nu}, \Omega, z')$**

Au cours du travail réalisé, seules des scènes claires ou très peu nuageuses (couverture nuageuse < 25%) ont été considérées. Dans ces conditions, nous pouvons approximer l'atmosphère à un milieu non-diffusif dont seule l'émission thermique doit être prise en compte. Le terme $J(\tilde{\nu}, \Omega, z')$ se simplifie et s'exprime donc comme $B(\tilde{\nu}, T)$, l'émission d'un corps noir de température T pour le nombre d'onde $\tilde{\nu}$.

- **Transmittance $t(\tilde{\nu}; \theta, z', z)$**

La transmittance du milieu entre les altitudes z' et z tient compte de la contribution de l'ensemble des espèces capables d'atténuer la radiation de nombre d'onde $\tilde{\nu}$. Elle se relie donc aux sections efficaces d'absorption de celles-ci de la façon suivante :

$$t(\tilde{\nu}; \theta, z', z) = \exp \left[- \int_{z'}^z \sum_j \sigma_j(\tilde{\nu}; z'') \rho_j(z'') \frac{\partial s(\theta, z'')}{\partial z''} dz'' \right] \quad (1.2)$$

Où $\sigma_j(\tilde{\nu}; z'')$ est la section efficace d'absorption de l'espèce j pour le nombre d'onde $\tilde{\nu}$ et pour l'altitude z'' , $\rho_j(z'')$ est la densité moléculaire (en molécules/cm³) de l'espèce j à l'altitude z'' , et $s(\theta, z'')$ est le chemin parcouru par la radiation déterminé par le ray tracing.

- **Radiance source $L^\uparrow(\tilde{\nu}; \theta, 0)$**

Dans le cas qui nous occupe, c'est-à-dire une visée au nadir dans l'infrarouge, le terme de la source de radiation est principalement gouverné par l'émission thermique (corps noir) de la surface. Deux autres contributions sont également à prendre en compte, en raison de l'émissivité et de la réflectivité de la surface terrestre. Le terme de source s'écrit donc de la façon suivante :

$$L^\uparrow(\tilde{\nu}; \theta, 0) = \epsilon(\tilde{\nu})B(\tilde{\nu}, T_S) + (1 - \epsilon(\tilde{\nu}))L_0^{\downarrow\uparrow}(\tilde{\nu}) + \alpha(\tilde{\nu})L_0^{\downarrow*}(\tilde{\nu}) \quad (1.3)$$

Où $\epsilon(\tilde{\nu})$ est l'émissivité de la surface terrestre pour le nombre d'onde $\tilde{\nu}$, $B(\tilde{\nu}, T_{surf})$ est la fonction de Planck représentant l'émission de la surface terrestre de température T_S pour le nombre d'onde $\tilde{\nu}$, $L_0^{\downarrow\uparrow}(\tilde{\nu})$ est la radiance moyenne émise par l'atmosphère et dirigée vers la surface, $\alpha(\tilde{\nu})$ est la réflectivité effective de la surface terrestre, et $L_0^{\downarrow*}(\tilde{\nu})$ est la quantité de rayonnement solaire atteignant la surface.

Chaque terme de l'équation (1.3) caractérise une contribution particulière à la radiance source. Le premier terme décrit l'émission du corps noir terrestre corrigée par l'émissivité de la surface (qui n'est pas un corps noir parfait). Le deuxième terme est la fraction du rayonnement émis par l'atmosphère réfléchi par la surface terrestre (dans la direction du sondeur) avec, dans notre cas, la réflexion qui est considérée lambertienne⁵. Le troisième terme de l'équation exprime, quant à lui, la fraction du rayonnement solaire réfléchi par la surface terrestre dans la direction du sondeur. $\alpha(\tilde{\nu})$ tient compte des contributions des réflexions lambertienne et spéculaire⁶. Remarquons que, la contribution de ce troisième terme dans la région spectrale que nous avons étudiée (infrarouge thermique, en dessous de 2000 cm^{-1} , voir chapitre 2) est négligeable, et ne sera par conséquent pas prise en compte.

De manière pratique, pour pouvoir résoudre l'équation du transfert radiatif (1.1), l'atmosphère est discrétisée en couches⁷. Chaque couche est définie par deux niveaux, un inférieur et un supérieur. Par convention, ils sont numérotés de 0 à N en commençant par le bas de l'atmosphère. Les couches sont, par conséquent, numérotées de 1 à N. Pour chacune d'entre elles, la moyenne de chaque paramètre atmosphérique est calculée (ex : $\bar{T}_i, \bar{P}_i, \dots$), de même que le chemin parcouru (ray tracing). Pour chaque couche, la colonne partielle de chaque espèce j est également calculée, et cela de la façon suivante :

$$PC_{i,j} = \int_{z_i}^{z_{i+1}} \rho_j(z) \frac{\partial s(z, \theta)}{\partial z} dz \quad (1.4)$$

Où $PC_{i,j}$ est la colonne partielle de l'espèce j dans la couche i (molécules/cm²) et $\rho_j(z)$ est la densité moléculaire de l'espèce j (molécules/cm³).

L'équation (1.1) est, elle, évaluée successivement pour chaque couche (de 1 à N). La température étant considérée constante pour chacune d'entre elles, l'équation (1.1) devient pour une couche i :

$$L_i^\uparrow = \bar{B}_i + (L_{i-1}^\uparrow - \bar{B}_i) \tilde{\tau}_i \quad (1.5)$$

Où L_i^\uparrow est la radiance sortant de la couche i , \bar{B}_i est la fonction de Planck d'émission de la couche i calculée à sa température moyenne \bar{T}_i , L_{i-1}^\uparrow est la radiance sortant de la couche $i - 1$ et $\tilde{\tau}_i = t(\tilde{\nu}; z_{i-1}, z_i)$ est la transmittance effective de la couche i .

L'émission de la surface L_0^\uparrow est évaluée en utilisant l'équation (1.3). La transmittance effective $\tilde{\tau}_i$ est, elle, calculée en utilisant une formulation semblable à l'équation (1.2), mais en utilisant les paramètres moyennés définis ci-dessus :

$$\tilde{\tau}_i = \exp \left[- \sum_j PC_{i,j} \sum_l \sigma_{j,l}(\tilde{\nu}; \bar{T}_i, \bar{P}_i) \right] = \exp \left[- \sum_j PC_{i,j} \sum_l \sigma_{j,l}^{int} \times g_{j,l}(\tilde{\nu}; \bar{T}_i, \bar{P}_i) \right] \quad (1.6)$$

Où i fait référence à la couche, j à l'espèce et l à la raie spectrale (si celle-ci est résolue), $\sigma_{j,l}(\tilde{\nu}; \bar{T}_i, \bar{P}_i)$ est la section efficace d'absorption de l'espèce j pour la raie l , $\sigma_{j,l}^{int}$ est la section efficace d'absorption intégrée (de l'espèce j pour la raie l) et $g_{j,l}(\tilde{\nu}; \bar{T}_i, \bar{P}_i)$ est le profil de raie. Le calcul de cette transmittance nécessite l'utilisation d'une base de données spectroscopiques (ici,

⁵ La réflexion lambertienne est une réflexion pour laquelle la quantité totale de rayonnement atteignant la surface est réfléchi de façon égale dans toutes les directions, quelle que soit la direction de la source.

⁶ Une réflexion spéculaire est une réflexion pour laquelle l'angle d'incidence est égal à l'angle de réflexion.

⁷ Cette discrétisation n'est pas fixée dans notre cas et sera précisée dans les premières sections des chapitres 3 et 4.

HITRAN 2008 [11]) qui compile les paramètres de raie, tels que la position, $\sigma_{j,l}^{int}$ et les paramètres d'élargissement, permettant de calculer $g_{j,l}(\tilde{\nu}; \bar{T}_i, \bar{P}_i)$. La procédure utilisée est dite raie à raie et un profil de Voigt est choisi comme profil de raie. Notons que, dans le cas de molécules lourdes, les raies spectrales ne sont généralement pas résolues en laboratoire. Des sections efficaces d'absorption $\sigma(\tilde{\nu})$, idéalement recueillies à différentes températures et pressions, sont alors utilisées à la place des paramètres de raie, et la valeur correspondant au couple (T, P) se rapprochant le plus des conditions atmosphériques est choisie. Enfin, les continuums des molécules d'H₂O, d'O₂, de N₂ et de CO₂ sont également pris en compte dans le calcul de la transmittance.

Finalement, le spectre obtenu après résolution de l'équation (1.1) est convolué par la fonction d'appareil de l'instrument de mesure (voir chapitre 2).

2.3 Méthode inverse

Pour obtenir des informations sur l'état de l'atmosphère à partir des spectres enregistrés par un instrument satellitaire, la résolution du transfert radiatif seule n'est pas suffisante. En effet, l'évaluation de l'équation (1.1) nécessite la connaissance des paramètres atmosphériques, tels que la température et les profils verticaux de divers constituants de l'atmosphère. Or, ces informations sont généralement parfaitement inconnues et se trouvent être, d'ailleurs, celles que l'on souhaite obtenir. Une deuxième étape est donc requise pour traiter les spectres observés : l'inversion.

La méthode d'inversion utilisée dans ce travail est la méthode de l'Estimation Optimale, développée par Rodgers [12], et est résumée ci-dessous [10, 13].

L'équation du transfert radiatif (1.1) peut être généralisée de la façon suivante :

$$\mathbf{y} = \mathbf{F}(\mathbf{x}; \mathbf{b}) + \boldsymbol{\eta} \quad (1.7)$$

Où \mathbf{y} est le vecteur de mesure contenant les radiances mesurées par l'instrument, \mathbf{x} est le vecteur d'état contenant les concentrations moléculaires (que l'on recherche), \mathbf{b} est le vecteur représentant tous les autres paramètres fixés ayant un impact sur la mesure (pression, température, paramètres instrumentaux,...), $\boldsymbol{\eta}$ est de bruit de la mesure et \mathbf{F} est le modèle du transfert radiatif, qui relie l'état de l'atmosphère aux mesures.

Le but de l'inversion est de trouver un vecteur d'état $\hat{\mathbf{x}}$, bonne approximation du vrai vecteur état \mathbf{x} , qui est le plus cohérent avec les mesures réalisées (\mathbf{y})⁸ et avec l'information a priori que l'on a de l'atmosphère. Ceci nécessite donc la définition d'un vecteur d'état a priori \mathbf{x}_a , représentant une connaissance hypothétique (idéalement réaliste) des profils verticaux de concentrations moléculaires, et de sa matrice de covariance \mathbf{S}_a , représentant la variabilité associée à ces concentrations.

Dans le cas d'un problème linéaire, le vecteur $\hat{\mathbf{x}}$, solution de l'Estimation Optimale, est donné par :

$$\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{x}_a + (\mathbf{K}^T \mathbf{S}_\eta^{-1} \mathbf{K} + \mathbf{S}_a^{-1})^{-1} \mathbf{K}^T \mathbf{S}_\eta^{-1} (\mathbf{y} - \mathbf{K} \mathbf{x}_a) \quad (1.8)$$

Où \mathbf{K} est la matrice des Jacobiens du modèle \mathbf{F} , dont les lignes sont les dérivées du spectre par les variables ajustées ($\partial \mathbf{y} / \partial \hat{\mathbf{x}}$), et \mathbf{S}_η est la matrice de covariance des erreurs de mesures, représentant essentiellement le bruit qui leur sont associées.

⁸ Remarquons que dans le cas de notre sondeur nadir, nous sommes en présence d'un problème sous-contraint (nombre d'inconnues > nombre de mesures). Plusieurs solutions à l'équations (1.7) sont donc possibles.

Cependant, nous sommes confrontés dans ce travail à un problème modérément non linéaire. L'équation (1.8) est alors itérativement répétée jusqu'à convergence⁹. Pour l'itération i , on a :

$$\mathbf{x}_{i+1} = \mathbf{x}_a + (\mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_\eta^{-1} \mathbf{K}_i + \mathbf{S}_a^{-1})^{-1} \mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_\eta^{-1} [\mathbf{y} - \mathbf{F}(\mathbf{x}_i) + \mathbf{K}(\mathbf{x}_i - \mathbf{x}_a)] \quad (1.9)$$

A convergence, le spectre mesuré est dit « ajusté ». Le vecteur $\hat{\mathbf{x}}$ est connu et sa matrice de covariance $\hat{\mathbf{S}}$, représentant l'erreur statistique totale associée à $\hat{\mathbf{x}}$, est calculée de la façon suivante :

$$\hat{\mathbf{S}} = (\mathbf{K}^T \mathbf{S}_\eta^{-1} \mathbf{K} + \mathbf{S}_a^{-1})^{-1} \quad (1.10)$$

De la méthode, nous pouvons également définir la matrice des noyaux moyens \mathbf{A} comme

$$\mathbf{A} = \mathbf{G}\mathbf{K} = \frac{\partial \hat{\mathbf{x}}}{\partial \mathbf{x}} \quad (1.11)$$

$$\text{où } \mathbf{G} = \frac{\partial \hat{\mathbf{x}}}{\partial \mathbf{y}} = (\mathbf{K}^T \mathbf{S}_\eta^{-1} \mathbf{K} + \mathbf{S}_a^{-1})^{-1} \mathbf{K}^T \mathbf{S}_\eta^{-1} \quad \text{est la matrice de gain.}$$

Les noyaux moyens expriment la sensibilité de la mesure dans la détermination de $\hat{\mathbf{x}}$, en comparaison au véritable profil. La position de leur maximum indique l'altitude de sensibilité maximale.

2.4 Spécificité du transfert radiatif dans l'infrarouge thermique

Comme nous l'avons déjà dit dans la sous-section 2.2, l'équation générale du transfert radiatif peut être simplifiée selon le domaine spectral étudié, mais est donc aussi spécifique à celui-ci. Le travail réalisé s'étant basé sur le transfert radiatif dans l'infrarouge thermique (TIR), cette sous-section a pour but de décrire les spécificités associées à celui-ci.

La région spectrale correspondant à l'infrarouge thermique s'étend d'environ $4 \mu\text{m}$ (2500 cm^{-1}) à $50 \mu\text{m}$ (200 cm^{-1}). Cette région est celle dans laquelle la surface terrestre et l'atmosphère émettent principalement. Par conséquent, le sondage atmosphérique dans l'infrarouge thermique est tributaire des profils verticaux de température, lesquels doivent être connus précisément pour inverser au mieux les spectres observés, et en obtenir les profils de concentrations moléculaires les plus exacts possibles. Dans le cas de ce travail, les profils de température utilisés (voir chapitre 2) sont caractérisés par une erreur de l'ordre de 1.5 K à la surface et dans la haute troposphère, et de l'ordre de 0.6 K dans la troposphère libre [14].

Une spécificité associée au sondage dans l'infrarouge thermique est l'influence du contraste thermique (TC) sur la sensibilité des mesures dans les basses couches de l'atmosphère. Le contraste thermique se définit généralement comme la différence entre la température de la surface terrestre T_s et la température de l'air situé à une altitude d'intérêt (voir par exemple figure 3.3). Cette influence peut s'expliquer facilement grâce à l'équation simplifiée du transfert radiatif dans une atmosphère non-diffusive¹⁰ :

$$\frac{dL(\tilde{\nu})}{ds} = \beta_a(\tilde{\nu})(B(T, \tilde{\nu}) - L(\tilde{\nu})) \quad (1.12)$$

Où $dL(\tilde{\nu})$ est la variation d'une radiance monochromatique ($\tilde{\nu}$) observée après passage à travers une couche d'air d'épaisseur infinitésimale ds , $\beta_a(\tilde{\nu})$ est le coefficient d'absorption de la couche infinitésimale pour le nombre d'onde $\tilde{\nu}$, $B(T, \tilde{\nu})$ est la fonction de Planck pour le nombre

⁹ Le critère de convergence choisi ici est : $|F(\mathbf{x}_{i+1}) - F(\mathbf{x}_i)| < 0.02 \times \sqrt{S_{\eta, jj}}$ où $S_{\eta, jj}$ sont les éléments diagonaux de la matrice \mathbf{S}_η [13].

¹⁰ Notons que l'équation (1.1) donnée dans la sous-section 2.2 est une expression similaire mais plus détaillée.

d'onde $\tilde{\nu}$ représentant l'émission de la couche caractérisée par une température T , et $L(\tilde{\nu})$ est la radiance monochromatique initiale.

Considérons maintenant que la radiance initiale est celle émise par la surface terrestre et qu'elle est représentée par la fonction de Planck d'un corps noir de température T_S . A présent, sur base de l'équation (1.12), nous pouvons faire les remarques suivantes :

- La variation de radiance observée $dL(\tilde{\nu})$ est négative si $L(\tilde{\nu})$ est supérieure à $B(T, \tilde{\nu})$. Ceci est le cas lorsque la température de surface T_S est supérieure à la température de la couche. Le contraste thermique est donc positif et le signal apparaît en absorption (figure 1.5 en orange, pour l'exemple d'une signature de NH_3).
- La variation de radiance observée $dL(\tilde{\nu})$ est positive si $L(\tilde{\nu})$ est inférieure à $B(T, \tilde{\nu})$. Ceci est le cas lorsque la température de surface T_S est inférieure à la température de la couche. Le contraste thermique est donc négatif et le signal apparaît en émission (figure 1.5 en bleu).
- Lorsque le contraste thermique est nul ou presque, les termes $L(\tilde{\nu})$ et $B(T, \tilde{\nu})$ sont égaux ou presque et aucune variation de radiance n'est observée. Par conséquent, aucune structure spectrale n'est observée (figure 1.5 en vert).

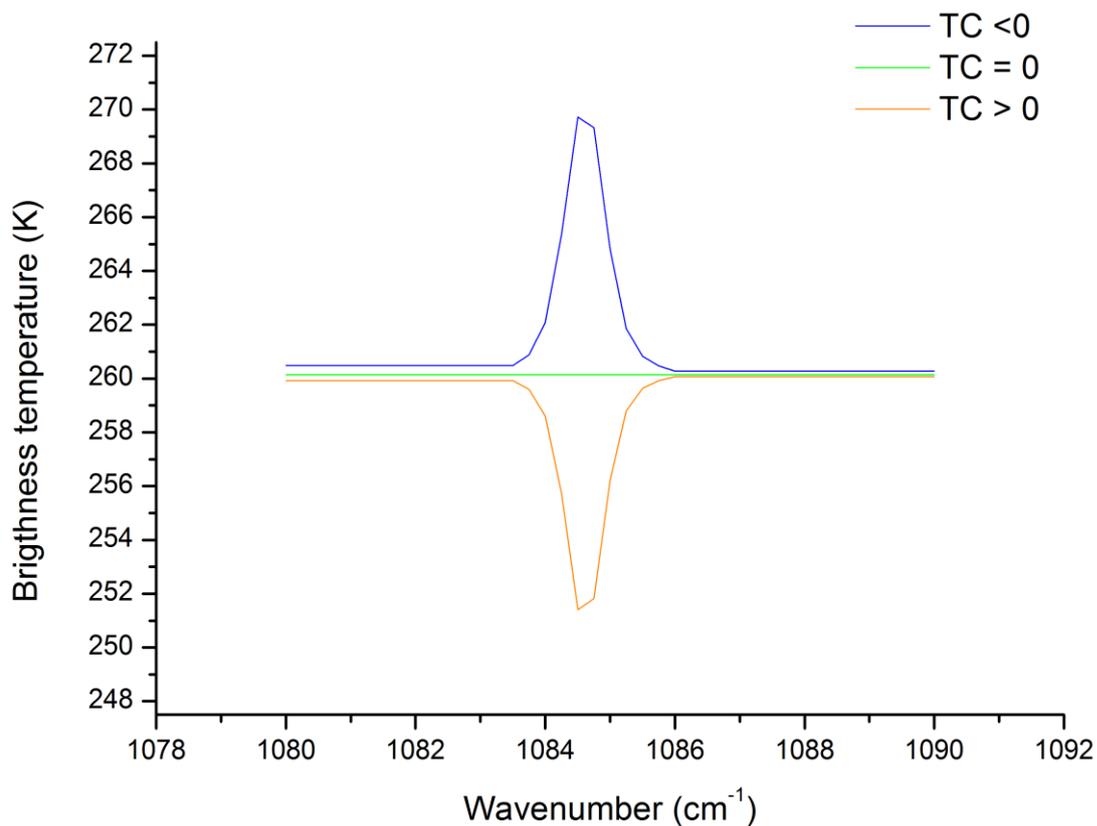


Figure 1.5 : Influence du contraste thermique sur la sensibilité des sondes opérant dans l'infrarouge thermique. Une signature du gaz NH_3 , contenant une série de raies individuelles (HITRAN 2008), a été simulée pour trois cas de contrastes thermiques (TC). Elle apparaît en émission pour un $\text{TC} < 0$ et en absorption pour un $\text{TC} > 0$. Pour un $\text{TC} = 0$, la signature n'est pas observée. Notons que la simulation est réalisée pour une atmosphère restreinte à une couche de surface d'un kilomètre d'épaisseur et ne contenant que le gaz NH_3 . La température de cette couche a été gardée constante et seule la température de surface a été modifiée suivant le cas de contraste thermique. L'axe des y est donné en température de brillance et non en radiance (voir chapitre 2 pour l'expression de la température de brillance).

3 Mesures de la composition de la couche limite atmosphérique par satellite

Mesurer la composition de l'atmosphère depuis l'espace est essentiel pour surveiller les polluants atmosphériques. Grâce à une utilisation des mesures satellitaires en synergie avec des modèles théoriques, la quantification des émissions anthropiques et la compréhension de leurs impacts sur l'environnement et le climat deviennent possibles. Comme nous l'avons explicité précédemment, le sondage de la couche limite atmosphérique est particulièrement important, car c'est elle qui est directement sujette aux flux de surface. Cependant, ce sondage est logiquement difficile depuis les satellites en orbite, car les concentrations des gaz émis sont généralement faibles et confinées dans une petite portion de la colonne atmosphérique totale (voir sous-section 1.3).

Le but du travail réalisé s'inscrit dans ce cadre et est explicité dans la sous-section 3.2. Préalablement, la section 3.1 ci-dessous donne un aperçu d'autres études, s'intéressant à la composition de la couche limite et aux émissions qui s'y déroulent (pour une description plus complète du sondage de la CLA par les satellites, voir [15]).

3.1 Résultats antérieurs

Le sondage de la couche limite atmosphérique n'est pas possible dans toutes les géométries d'observation. En effet, seule la visée au nadir donne accès à des informations sur les couches situées à proximité de la surface, en fournissant une observation de toute la colonne atmosphérique. Par contre, différentes régions spectrales peuvent être utilisées pour mesurer la composition de la couche limite atmosphérique. Nous nous intéressons ici aux domaines allant de l'ultraviolet à l'infrarouge thermique, généralement utilisés pour les mesures de composition.

- **UV-visible-proche IR**

Les instruments mesurant la radiation solaire réfléchi/rétrodiffusée dans les régions spectrales de l'UV-visible ou du proche infrarouge sont connus pour leur capacité à sonder l'atmosphère jusqu'à la surface. Leur sensibilité dans la couche limite atmosphérique dépend, entre autre, de la réflectivité de la surface terrestre. La diffusion atmosphérique influence également cette sensibilité. En effet, d'une diffusion moléculaire importante résulte qu'une partie (plus ou moins grande) de l'intensité mesurée au sondeur n'a pas traversé la CLA.

Ce type d'instrument a été utilisé, entre autre, pour obtenir les colonnes troposphériques de dioxyde d'azote (NO_2), jouant un rôle clé dans la formation d'ozone troposphérique, et ainsi identifier les régions du globe les plus émettrices. Notons que, 1) le NO_2 ayant une courte durée de vie, la colonne troposphérique observée est dominée par la teneur en NO_2 de la couche limite, 2) les plus grandes concentrations en NO_2 apparaissent dans les régions urbaines et industrialisées. Enfin, les tendances temporelles des émissions de ce gaz ont également été étudiées pour différentes parties du globe, révélant notamment, une augmentation des émissions dans l'est de la Chine [16].

Dans une moindre mesure, les émissions de SO_2 de certaines sources anthropiques, en particulier de l'industrie de l'extraction de métaux lourds, ont été observées dans le domaine de l'ultraviolet pour différentes parties du globe (Russie, Pérou,... [17, 18]). Un exemple de distribution globale de SO_2 , obtenue par l'instrument UV GOME¹¹, est donné sur la figure 1.6. Notons l'observation de la région de Norilsk, qui est ciblée dans ce mémoire.

Enfin, dans le proche infrarouge, les premières observations et tendances d'émissions des gaz à effet de serre, CO_2 et CH_4 , ont été mises en évidence [19, 20, 21].

¹¹ GOME = *Global Ozone Monitoring Experiment*.

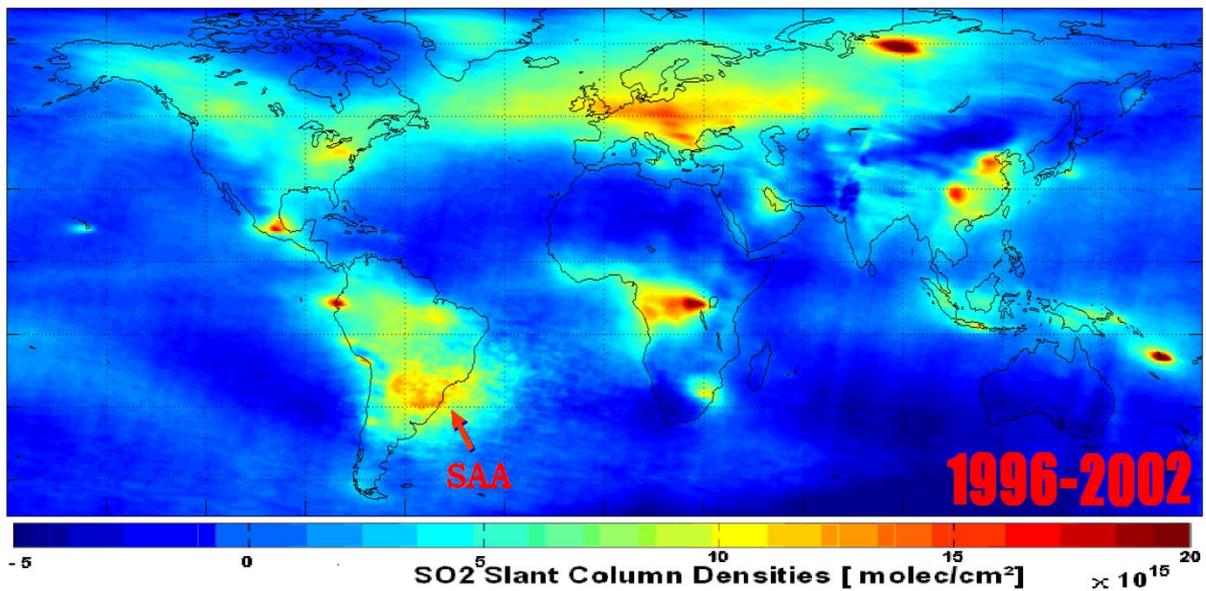


Figure 1.6 : Distribution globale de SO₂ réalisée sur une moyenne de sept ans (1996-2002) à partir des mesures de l'instrument GOME. On peut observer l'activité de différents volcans : le Nyamuragira au Congo, l'Etna en Sicile ou encore le Popocatépetl au Mexique. Des émissions anthropiques peuvent également être observées, comme la région de Norilsk (Russie), qui nous intéresse particulièrement dans ce travail. Image tirée de [18].

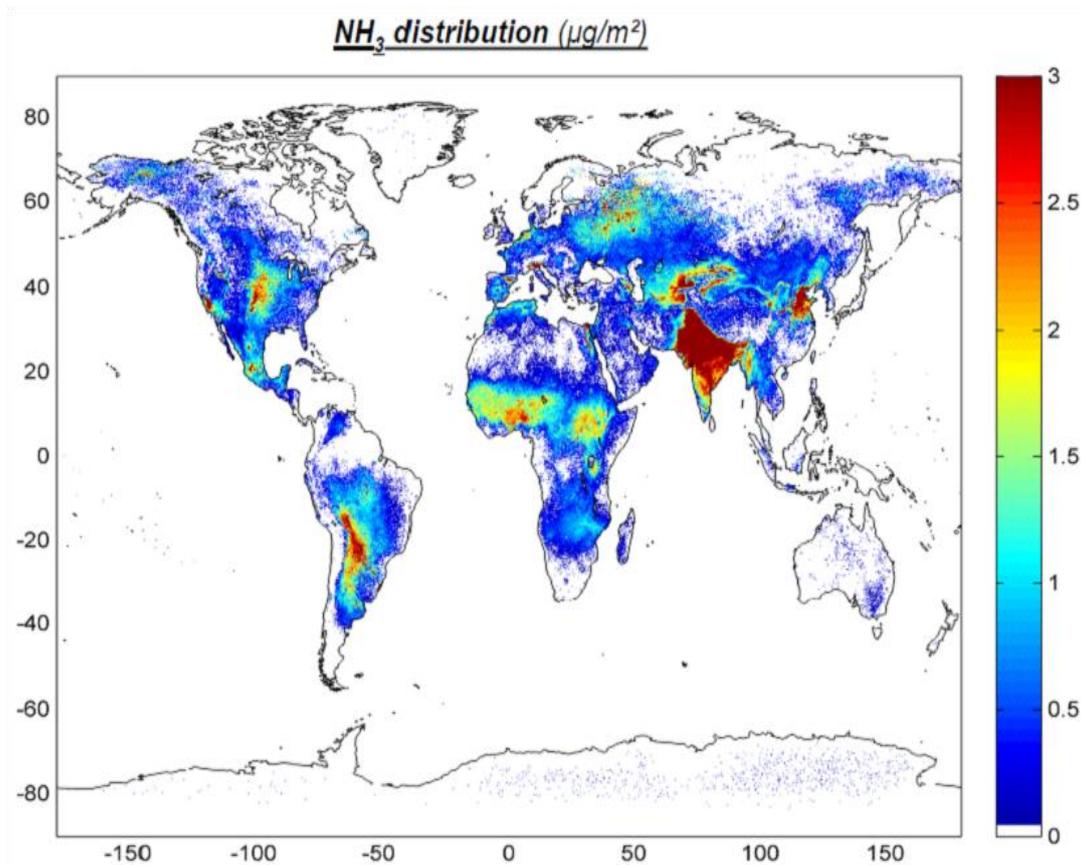


Figure 1.7 : Distribution globale d'ammoniac pour l'année 2010 obtenue par IASI (M. Van Damme, communication personnelle). Les zones les plus émettrices sont facilement distinguables.

- **IR thermique**

Les sondeurs mesurant le rayonnement émis par la Terre dans la région de l'infrarouge thermique sont conventionnellement considérés inadéquats pour réaliser des mesures dans la couche limite atmosphérique. En effet, ils ne sont sensibles à cette couche que dans les cas de contrastes thermiques positifs ou négatifs élevés [22] (voir aussi sous-section 2.4). Cependant, ils ont certains avantages par rapport aux instruments UV-visible et proche IR : ils ne sont pas limités par la disponibilité de la radiation solaire et/ou par des surfaces réfléchives, et sont généralement caractérisés par une meilleure résolution spatiale¹².

Jusqu'à récemment, ce type de sondeur n'était capable de détecter précisément les sources d'émissions locales qu'en réalisant des moyennes de concentrations sur plusieurs années. On peut citer, par l'exemple, le cas de l'étude du CO émis par des régions à forte densité de population par l'instrument MOPITT¹³ [23], pour laquelle la détection des émissions urbaines n'a pu être possible qu'en réalisant une moyenne des mesures sur une période de sept ans. Notons que ce type de résultat, bien que révélateur des potentialités offertes par les instruments IR, n'est pas en faveur de la surveillance journalière de la qualité de l'air par ces instruments.

Avec l'avènement d'une nouvelle classe de sondeurs plus performants, de nouvelles perspectives s'ouvrent pour l'observation de la couche limite dans l'infrarouge thermique, comme peut en témoigner la réalisation de la première distribution globale de l'ammoniac par l'instrument IASI [24]. Les régions les plus émettrices, telles que les zones agricoles, ont pu ainsi être mises en évidence. La figure 1.7, réalisée en moyennant les données de l'année 2010, en est un bon exemple. Il est important de noter que l'ammoniac est un gaz de très courte durée de vie (quelques heures), et se trouve donc confiné dans la CLA. Notons également que les concentrations de NH₃ peuvent être mesurées avec IASI quotidiennement à proximité des principales sources [25], ouvrant des perspectives concrètes pour le suivi de la qualité de l'air.

3.2 Objectifs du travail

Le principal objectif de ce mémoire est d'étendre nos connaissances quant à la capacité des sondeurs opérant dans l'infrarouge thermique à mesurer la composition chimique de la CLA. Il s'inscrit dans la continuation des études récentes menées à l'ULB, qui ont montré que la sensibilité de ce type de sondeur au NH₃ de la CLA est fortement augmentée dans des situations de contrastes thermiques positifs élevés [24, 25]. Cependant, il soulève un nouveau défi en s'attachant à la région de l'Arctique, où les basses températures rendent de telles situations de contrastes thermiques peu fréquentes. Les cas de contrastes thermiques négatifs, résultant du développement d'inversions de température dans les basses couches, sont donc ciblés dans notre recherche. Nous limitons celle-ci à la région industrielle de Norilsk, située au-delà du cercle polaire arctique et bien connue pour ses larges émissions de SO₂ (dues principalement à l'industrie de l'extraction de métaux lourds – nickel, cuivre – implantée à proximité de la ville) et pour ses niveaux records et persistants de pollution. Le SO₂ est une espèce qui se caractérise par un temps de résidence relativement court étant donné sa réactivité, et qui reste donc essentiellement confinée dans la couche limite atmosphérique. Possédant deux bandes vibrationnelles relativement intenses dans l'infrarouge thermique, elle constitue un cas d'étude particulièrement bien adapté à la problématique que nous abordons dans ce travail.

Notre recherche repose sur les mesures réalisées entre 2009 et 2011 par l'instrument IASI, embarqué sur la plateforme MetOp-A, dont les caractéristiques instrumentales (bruit de mesure, couverture et résolution spatiales) et de visées (petit pixel au sol) permettent de mesurer efficacement des épisodes de pollution locale.

¹² La résolution spatiale est déterminée par la taille du champ de vue du satellite. Plus celui-ci est petit, plus la résolution spatiale est bonne.

¹³ MOPITT = *Measurement Of Pollution In The Troposphere*.

Afin de déterminer les capacités de IASI pour le suivi de la pollution au SO₂ dans la région arctique de Norilsk, notre travail s'est organisé en différentes parties. La première, qui repose sur des simulations de transfert radiatif pour des atmosphères avec des niveaux hypothétiques de pollution, vise à démontrer la faisabilité théorique de la mesure et à identifier les paramètres spectraux (bande vibrationnelle) et géophysiques (contrastes thermiques, concentrations en polluant, taux d'humidité) déterminants pour cette mesure. La seconde partie traite de spectres réels et vise, sur base des résultats obtenus, à fournir une première cartographie de la pollution en SO₂ dans cette région de l'Arctique avec un instrument IR, en particulier durant les mois d'hiver pendant lesquels les sondeurs UV-visible sont inutilisables.

Les différentes parties décrites ci-dessus sont abordées successivement dans différents chapitres. Le chapitre 2 est consacré à la description de l'instrument spatial IASI et de la région arctique étudiée. Le chapitre 3 s'intéresse à la sensibilité du sondeur au SO₂ de la CLA. Le chapitre 4 se concentre sur les mesures de SO₂ à Norilsk et la description des distributions spatiales des concentrations de SO₂ dans la CLA et des tendances temporelles dans l'évolution de ces concentrations. Enfin le chapitre 5 décrit les perspectives qui s'ouvrent à la suite du travail réalisé.

Chapitre 2 : L'instrument spatial IASI et la région de Norilsk

Comme nous venons de l'expliquer, ce travail vise à mesurer pour la première fois la concentration de SO₂ dans la couche limite polluée, à l'aide de mesures satellites obtenues dans l'IR thermique. Il se focalise sur la zone industrielle de Norilsk en Arctique et utilise les données du sondeur IASI sur MetOp. Ce chapitre aborde successivement les caractéristiques de l'instrument et fournit une brève description de Norilsk et des conditions qui y règnent.

1 L'instrument spatial IASI

1.1 Mission et caractéristiques instrumentales

IASI est un sondeur hyperspectral¹⁴ développé conjointement par le CNES (*Centre National d'Etudes Spatiales*, agence spatiale française) et par EUMETSAT (*Organisation européenne pour l'exploitation des satellites météorologiques*). Il se trouve actuellement à bord de la plateforme MetOp-A, lancée le 19 Octobre 2006, et se déplace sur une orbite polaire autour de la Terre. L'objectif principal de la mission MetOp est de fournir des données en continu et à long terme pour supporter la météorologie opérationnelle, les prévisions environnementales et la surveillance du système climatique global. Cette mission consiste en une série de trois satellites (MetOp-A, B et C), qui seront lancés séquentiellement tous les cinq ans environ afin de fournir des observations sur une période de plus de quinze ans.

L'instrument IASI a pour objectif premier d'améliorer les prévisions météorologiques, en mesurant les profils de température et d'humidité troposphériques avec une résolution verticale et une précision inégalées. Son deuxième objectif est de contribuer aux mesures de la composition atmosphérique. Par conséquent, ses caractéristiques instrumentales sont un compromis entre les nécessités associées à ces deux objectifs : IASI combine ainsi une bonne couverture horizontale avec une résolution spectrale modérée. Le détail de ses caractéristiques est donné ci-dessous [26, 27].

- **Design instrumental et orbite**

L'instrument IASI consiste en un interféromètre de Michelson associé à un imageur. Il a été développé pour mesurer le spectre émis par la Terre dans l'infrarouge thermique en utilisant la géométrie d'observation nadir. Il opère depuis la plateforme MetOp, en orbite polaire autour de la Terre et située à une altitude d'environ 817 km. L'orbite de la plateforme est synchronisée sur le Soleil. Le satellite croise l'équateur à 9h30 (pour le matin) et à 21h30 (pour le soir) environ. Le temps nécessaire au satellite pour parcourir une orbite complète est de 101 minutes. Il effectue donc un peu plus de 14 fois son orbite par jour.

- **Champ de vue et couverture horizontale**

Le champ de vue instantané de IASI est composé de 2x2 pixels circulaires, chacun ayant un diamètre de 12 km lorsque l'instrument pointe au nadir (figure 2.1). Les dimensions de ce champ de vue sont de 3.3°x3.3° ou 50x50 km au nadir.

¹⁴ Un sondeur hyperspectral est un instrument dispersif capable de mesurer des centaines ou des milliers de canaux spectraux. Dans l'IR thermique, un sondeur hyperspectral a typiquement une résolution spectrale inférieure au cm⁻¹.

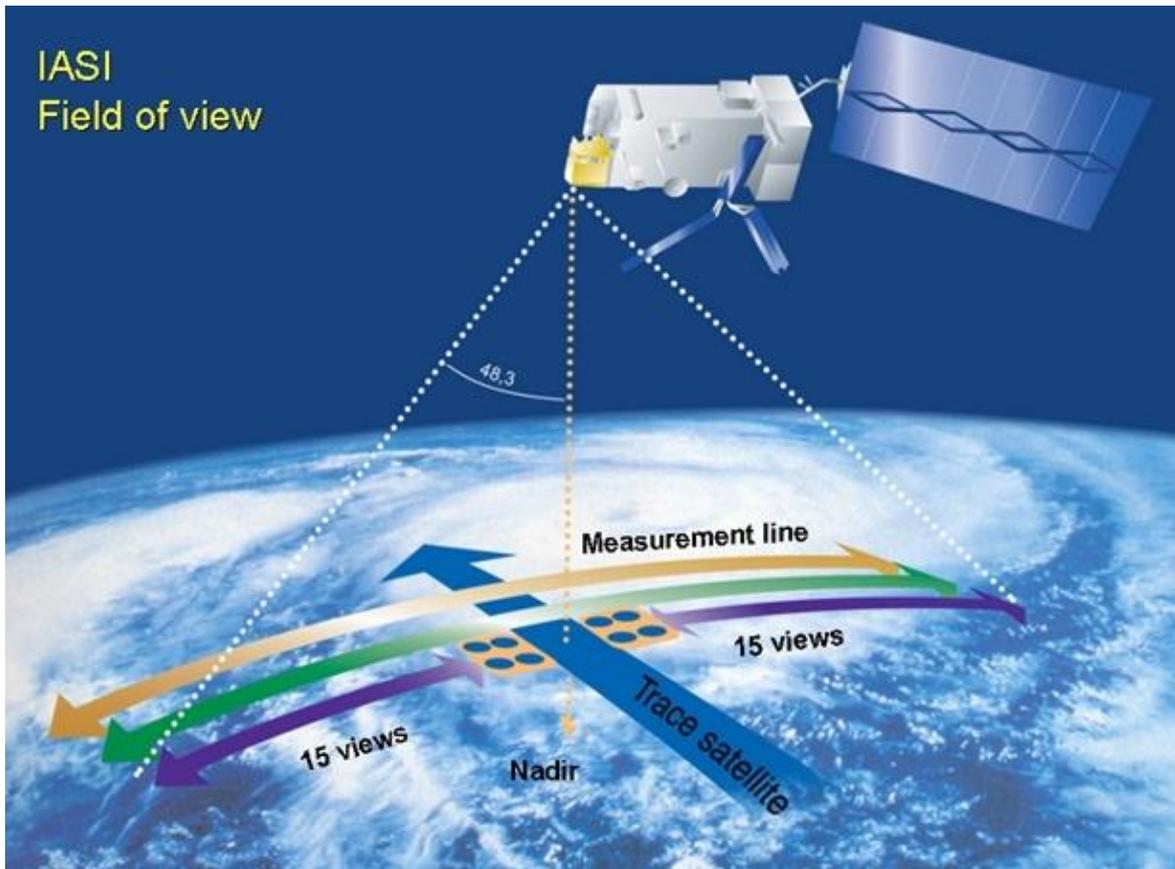


Figure 2.1 : Champ de vue de l'instrument IASI. Image tirée de [27].

Afin d'avoir une couverture horizontale maximale (notamment nécessaire pour les mesures météorologiques), l'instrument ne pointe pas uniquement au nadir, mais balaye une région de part et d'autre de cette position. Ce balayage s'effectue jusqu'à un angle de 48.3° de chaque côté de la trace du satellite (voir figure 2.1). Ceci correspond à la mesure de 15 champs de vue de chaque côté de la position nadir et à une couverture horizontale de 2×1100 km de part et d'autre de la trace du satellite.

- **Région spectrale et spectres**

L'instrument couvre une région spectrale continue s'étendant de 645 cm^{-1} ($15.5 \mu\text{m}$) à 2760 cm^{-1} ($3.62 \mu\text{m}$). Ceci est réalisé par trois détecteurs, mesurant chacun le spectre dans une bande de nombres d'onde distincte : $645\text{-}1210 \text{ cm}^{-1}$ ($8.26\text{-}15.5 \mu\text{m}$), $1210\text{-}2000 \text{ cm}^{-1}$ ($5.0\text{-}8.26 \mu\text{m}$) et $2000\text{-}2760 \text{ cm}^{-1}$ ($3.62\text{-}5.0 \mu\text{m}$). La région spectrale a été choisie pour inclure l'intense bande d'absorption du CO_2 à 667 cm^{-1} ($15 \mu\text{m}$), utilisée pour déterminer les profils de température, la bande de l'ozone à 1042 cm^{-1} ($9.6 \mu\text{m}$), et l'intense bande ν_2 de la vapeur d'eau à $\sim 1600 \text{ cm}^{-1}$ ($6.25 \mu\text{m}$) (exemples de spectres sur les figures 2.2 et 2.3). D'autres bandes d'absorption moléculaires sont présentes sur l'ensemble du domaine spectral de IASI, notamment les bandes ν_1 (1152 cm^{-1}) et ν_3 (1362 cm^{-1}) du SO_2 sur lesquelles nous nous concentrons dans les chapitres 3 et 4. C'est à partir de ces bandes moléculaires que les concentrations de gaz en traces peuvent être restituées, suivant les méthodes inverses décrites précédemment (chapitre 1, sous-section 2.3). Il est important de noter que le signal enregistré par l'instrument pour les nombres d'onde supérieurs à 2000 cm^{-1} contient une contribution du rayonnement solaire réfléchi/rétrodiffusé vers l'espace (équation 1.3, chapitre 1, section 2).

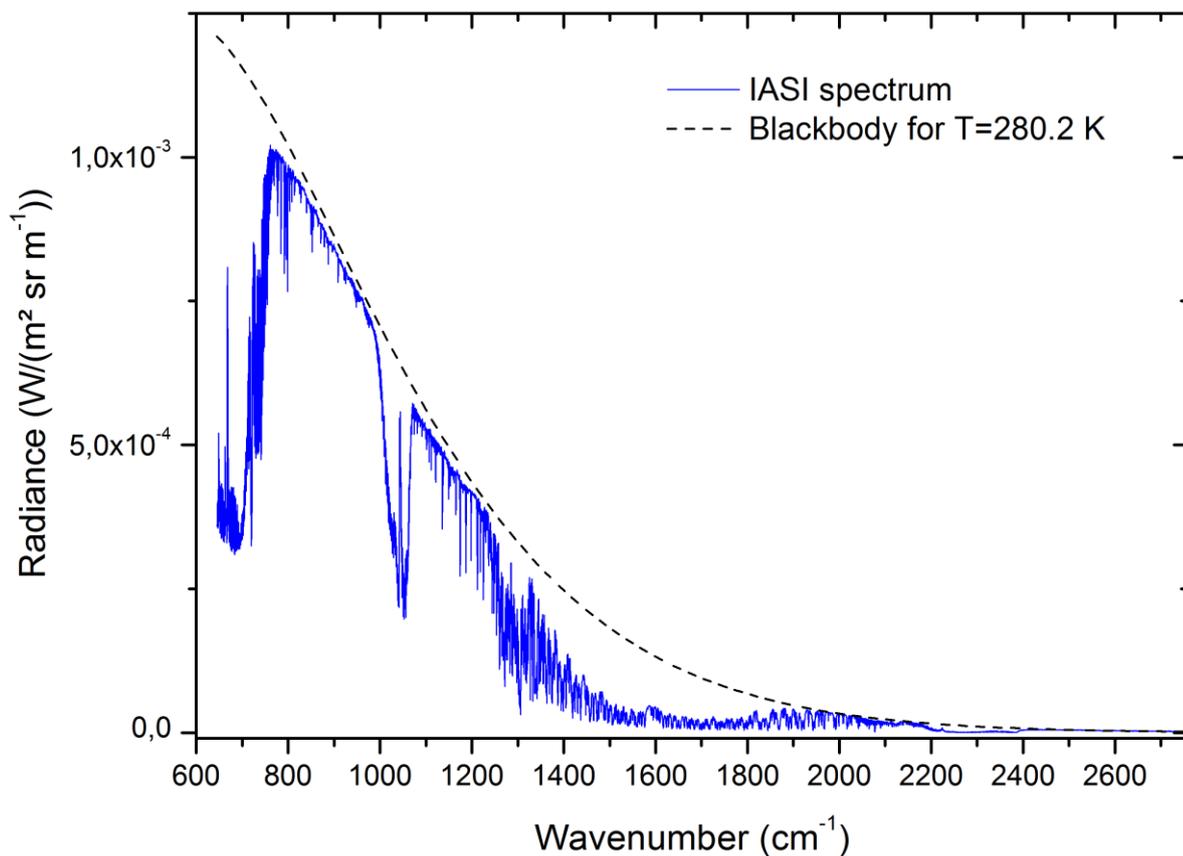


Figure 2.2 : Spectre IASI en radiance ($W/(m^2 \text{ sr } m^{-1})$) mesuré à $57.73^\circ N$ et $1.08^\circ E$ (Mer du Nord) le 25/03/2012. Les traits pointillés représentent la fonction de Planck pour un corps noir dont la température est de 280.2 K. Cette température est également la température de la surface terrestre pour le spectre enregistré, telle que renseignée dans les données de niveau 2 (voir ci-dessous).

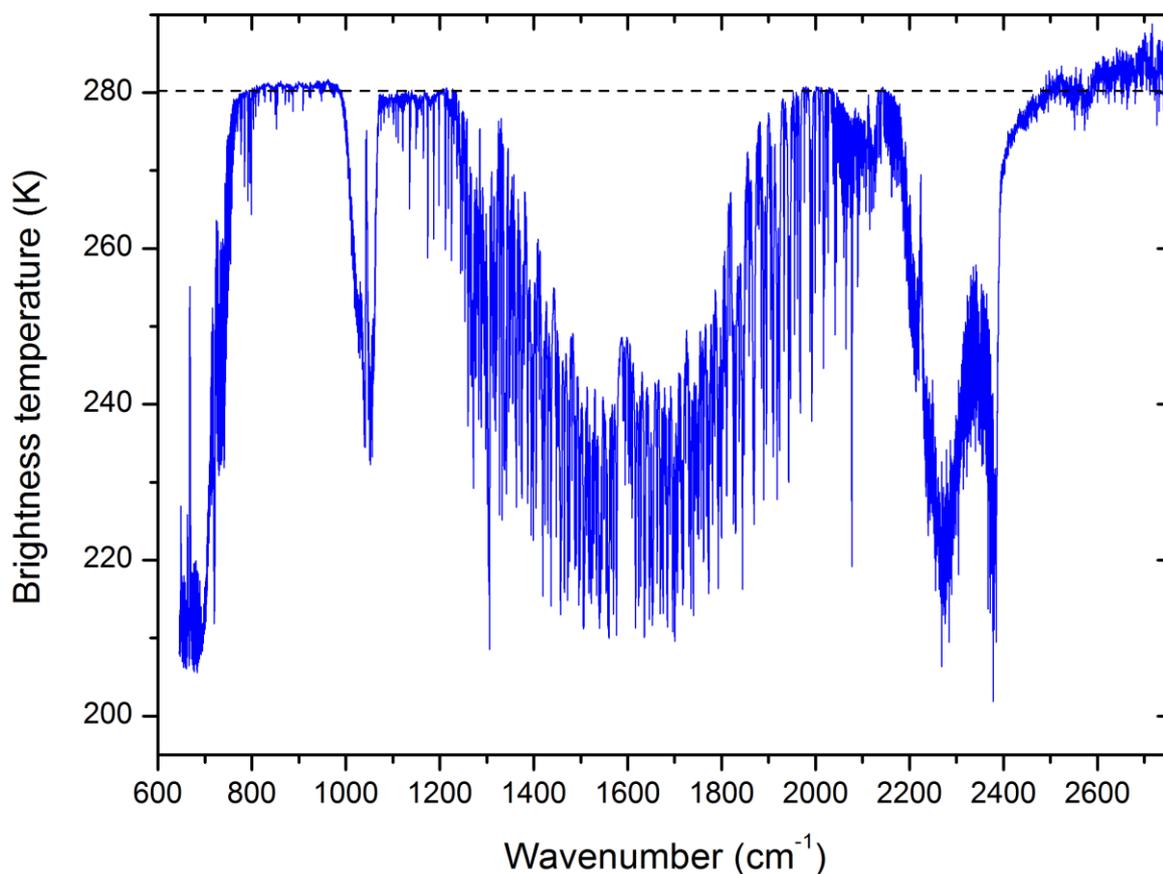


Figure 2.3 : Spectre identique à celui de la figure 2.2 exprimé en température de brillance. Le trait discontinu représente la température de la surface terrestre de 280.2 K pour le spectre enregistré.

Le signal mesuré par l'instrument IASI est une intensité de radiance (ou radiance) $L_{\tilde{\nu}}$ ¹⁵ (voir figure 2.2 pour un exemple). Elle correspond à l'émission thermique de la surface (typiquement représentée par un corps gris d'émissivité $\epsilon(\tilde{\nu})$) et de l'atmosphère, atténuée (ou intensifiée) par les gaz en présence le long du trajet optique. Elle est modélisée par l'équation générale du transfert radiatif (1.1). Les spectres sont donc exprimés dans les unités correspondantes ($W/(m^2 \text{ sr } m^{-1})$). Si l'on considère pour la radiance mesurée une distribution spectrale d'un corps gris, décrite par une fonction de Planck pondérée par l'émissivité $\epsilon(\tilde{\nu})$, chaque radiance est liée de manière univoque à une température. On peut donc convertir (quelle que soit la source) chaque intensité de radiance en une température de corps noir équivalente, appelée *température de brillance* suivant :

$$T_B = \frac{hc\tilde{\nu}}{k} \frac{1}{\ln\left(\frac{2\epsilon(\tilde{\nu})hc^2}{L_{\tilde{\nu}}\tilde{\nu}^3} + 1\right)} \quad (2.1)$$

Où h est la constante de Planck, c est la vitesse de la lumière, k est la constante de Boltzmann, $\tilde{\nu}$ est le nombre d'onde, $\epsilon(\tilde{\nu})$ est l'émissivité de la surface terrestre, et $L_{\tilde{\nu}}$ est la radiance mesurée.

- **Traitement de la mesure et calibrations**

Les mesures brutes de l'instrument sont des interférogrammes (données de niveau 0). Ils sont convertis à bord de la plateforme en spectres (données de niveau 1A) par une transformée de Fourier inverse. Trois calibrations sont ensuite réalisées : une calibration spectrale, une calibration radiométrique, qui transforme le signal mesuré en radiance, et une calibration géométrique, qui associe, à chaque empreinte au sol de l'instrument, une position géographique. Les spectres géolocalisés et calibrés spectralement/radiométriquement correspondent aux données de niveau 1B. Finalement, les spectres sont apodisés de telle manière à ce que la fonction instrumentale corresponde à une gaussienne de 0.5 cm^{-1} de largeur à mi-hauteur, constante sur tout l'intervalle spectral (données de niveau 1C). Ce sont les données de niveau 1C, qui sont distribués opérationnellement (voir ci-dessous), que nous analysons dans ce travail. Notons que chaque spectre est échantillonné en canaux de 0.25 cm^{-1} et qu'un total de 8461 canaux est donc couvert par l'instrument.

- **Bruit radiométrique et résolution spectrale**

Les spectres IASI sont d'une haute qualité radiométrique. En effet, le bruit (exprimé en différence de température de brillance) est inférieur à 0.2 K pour les nombres d'onde inférieurs à 2200 cm^{-1} , excepté pour la région allant de 1800 à 2000 cm^{-1} où il atteint environ 0.3 K (voir figure 2.4). Remarquons également que le bruit est bien inférieur à 0.1 K pour la région 1150 - 1500 cm^{-1} . Enfin, il commence à augmenter à partir de 2500 cm^{-1} , correspondant à la fin du domaine de l'infrarouge thermique et le début du proche infrarouge. Notons que les valeurs données ci-dessus sont le résultat de la conversion du bruit en radiance pour une température de référence de 280 K.

La résolution spectrale de l'instrument est déterminée par la largeur totale à mi-hauteur de sa fonction d'appareil. Celle-ci varie de 0.35 cm^{-1} à 0.5 cm^{-1} sur la région spectrale couverte par IASI pour les données de niveau 1B. Comme nous venons de le détailler, les spectres sont apodisés par commodité par une fonction gaussienne de largeur totale à mi-hauteur de 0.5 cm^{-1} . Cette largeur peut être considérée comme la résolution spectrale apodisée.

¹⁵ Nous omettons ici les dépendances envers les paramètres spectraux et géophysiques : $L_{\tilde{\nu}} = L(\tilde{\nu}; \theta, z)$.

- **Distribution des données**

L'acquisition d'une observation complète de IASI de part et d'autre de sa trace prend environ 8 secondes, en tenant compte des calibrations réalisées en vol. Cette séquence de mesure correspond donc à 120 interférogrammes (4x30) convertis en 120 spectres à bord du satellite. Ces spectres sont ensuite transférés sur Terre environ trois heures après acquisition. En tout, près de 1 300 000 spectres sont ainsi délivrés chaque jour par la mission IASI.

La stabilité de l'instrument est surveillée régulièrement par le Centre d'Expertise Technique du CNES et par EUMETSAT, et les produits IASI sont distribués de façon opérationnelle par le Système de Distribution des Données d'EUMETSAT (EUMETCast). Cette distribution concerne une large audience, localisée sur une zone géographique incluant la plupart de l'Europe et certaines régions d'Afrique. Depuis juin 2007, EUMETCast distribue les produits de niveau 1C (spectres calibrés). Depuis septembre 2007, les données de niveau 2, incluant les profils de température, de vapeur d'eau, les propriétés de surface et des nuages, sont également distribuées [28, 29]. Enfin, depuis mars 2008, les colonnes partielles de certains gaz en traces (ex : ozone) sont disponibles. Notons que ce dernier type de produit n'a pas été utilisé au cours de ce travail.

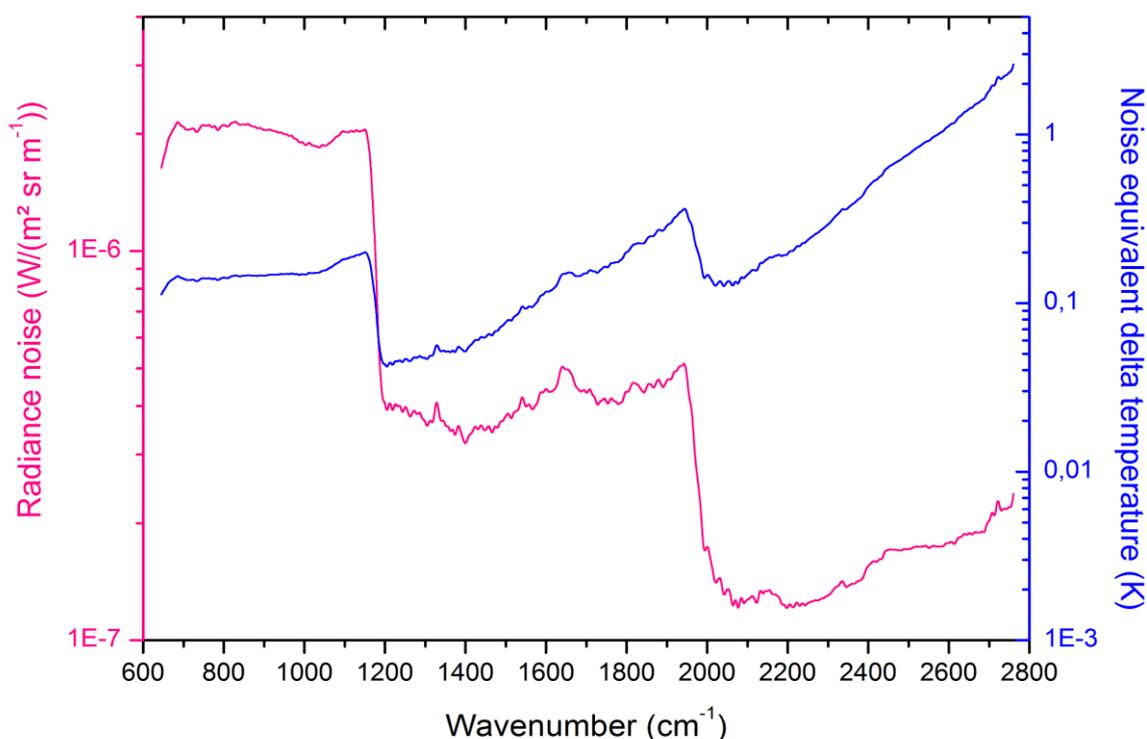


Figure 2.4 : Bruit radiométrique de l'instrument IASI. En rose, bruit exprimé en radiance et en bleu, bruit exprimé en différence de température de brillance.

1.2 Réalisations passées et présentes

Depuis son lancement il y a environ cinq ans, l'instrument IASI a fourni de nombreuses données précieuses qui ont permis d'importants développements en météorologie opérationnelle et dans l'analyse de la composition chimique de l'atmosphère. Dans ce dernier domaine qui nous intéresse particulièrement dans ce travail, les données recueillies par IASI ont permis la détection d'espèces volatiles réactives jamais observées auparavant en visée nadir, et la cartographie en temps presque réel de composés chimiques et d'aérosols. Elles ont également contribué à la compréhension des phénomènes de transport atmosphérique et au développement d'applications

opérationnelles (ex : identification et suivi des panaches volcaniques). Enfin, la calibration et la stabilité excellentes de l'instrument, combinées à une longue période d'observation attendue (15 ans), permettent d'envisager une contribution importante des mesures IASI aux études climatiques.

Dans cette sous-section, nous présentons un résumé des travaux réalisés à partir des données IASI. Nous nous concentrons plus particulièrement sur ceux réalisés au sein des groupes de recherche de l'ULB et du LATMOS (*Laboratoire Atmosphères, Milieux, Observations Spatiales*, Université de Paris VI).

1.2.1 Algorithmes et méthodes de détection

La détermination des quantités et des distributions de gaz en traces à partir des spectres IASI a commencé dès le début de la distribution des niveaux 1C. Elle a nécessité le développement d'algorithmes sophistiqués et de méthodes de détection intelligentes, dont les utilisations dépendent du cas étudié (distribution globale, locale, profils verticaux,...). Une brève description de ces outils de traitement est donnée ci-dessous.

- **Atmosphit**

Le programme Atmosphit, développé à l'ULB, est un algorithme contenant un modèle complet de transfert radiatif raie à raie et capable de réaliser l'inversion de spectres IR mesurés selon différentes géométries, dont le nadir [13]. Le modèle de transfert radiatif utilisé est similaire à celui décrit dans la sous-section 2.2 du chapitre 1. L'algorithme propose différentes méthodes inverses, dont l'Estimation Optimale (décrite en sous-section 2.3 du chapitre 1) qui a été utilisée pour acquérir les résultats de ce travail (voir chapitre 4). Il est important de remarquer qu'Atmosphit n'ajuste pas directement les colonnes partielles des constituants atmosphériques, mais des facteurs multiplicatifs (FM) sans unités. L'équation (1.6) (chapitre 1) devient alors :

$$\tilde{\tau}_i = \exp \left[- \sum_{j=\text{ajusté}} M_{i,j} PC_{i,j} \sum_l \sigma_{j,l}(\tilde{\nu}; \bar{T}_i, \bar{P}_i) - \sum_{j=\text{fixé}} PC_{i,j} \sum_l \sigma_{j,l}(\tilde{\nu}; \bar{T}_i, \bar{P}_i) \right] \quad (1.6b)$$

Où $M_{i,j}$ sont les facteurs multiplicatifs des espèces à ajuster. Les colonnes partielles « ajustées » sont obtenues en multipliant les colonnes a priori par les facteurs multiplicatifs restitués.

- **FORLI**

FORLI, pour *Fast Optimal Retrieval on Layers for IASI*, est un programme traitant en temps presque réel les nombreuses mesures journalières de IASI [10]. Développé à l'ULB, il a pour objectif de fournir les distributions globales des concentrations de gaz atmosphériques. Jusqu'à présent, l'algorithme a été implémenté dans la chaîne de traitement de l'ULB pour l'ozone, le monoxyde de carbone et l'acide nitrique. Son développement suit celui du programme Atmosphit : il contient un modèle de transfert radiatif (sous-section 2.2 du chapitre 1) et applique la méthode inverse de l'Estimation Optimale (sous-section 2.3 du chapitre 1). Cependant, contrairement à Atmosphit, qui calcule le spectre raie à raie dans chaque couche, FORLI repose sur l'utilisation de tables d'absorbances précalculées pour accélérer le calcul du transfert radiatif (pour plus de détails, voir [10]).

- **Méthode des différences de température de brillance**

La mesure de différences de température de brillance (DTB) permet de détecter la présence de raies d'absorption ou d'émission d'espèces réactives dans les spectres IASI. Elle s'applique en particulier à l'identification et au suivi de certains événements soudains, tels que des feux de végétation [30] ou des éruptions volcaniques [31, 32]. Le principe de cette méthode est relativement simple. Comme nous l'avons expliqué à la sous-section précédente, les spectres de radiance peuvent

être convertis en température de brillance par l'équation (2.1). Ainsi, chaque échantillon spectral de IASI (rappelons que l'échantillonnage est de 0.25 cm^{-1}) est donc associé à une température de brillance. Dans le cas particulier d'un canal clair (atmosphère transparente), la température de brillance correspond à la température de la surface terrestre¹⁶. Pour réaliser le calcul des différences, un minimum de deux canaux est nécessaire : un premier, généralement un canal clair, constitue la « référence », dont la température est T_0 . Le deuxième est choisi de manière à contenir une caractéristique spectrale (raie, partie de raie,...) de l'espèce que l'on souhaite détecter, et la température de brillance mesurée est alors T_1 . Si la différence $T_0 - T_1$ des températures de brillance associées à chacun de ces canaux est supérieure au bruit de l'instrument, on peut conclure que la signature de cette espèce est présente dans le spectre, soit en absorption ($T_0 - T_1 > 0$), soit en émission ($T_0 - T_1 < 0$). Le choix des canaux à prendre en compte est donc crucial pour avoir une identification fiable de l'espèce.

La méthode décrite ci-dessus est utilisée pour détecter la présence de la bande ν_3 du SO_2 dans les spectres IASI. Dans ce cas précis, la moyenne des températures de brillance des canaux $\nu_{base}^1 = 1407.25 \text{ cm}^{-1}$ et $\nu_{base}^2 = 1408.75 \text{ cm}^{-1}$ constitue la référence, et la moyenne des canaux $\nu_3^1 = 1371.50 \text{ cm}^{-1}$ et $\nu_3^2 = 1371.75 \text{ cm}^{-1}$ donne une estimation de l'absorption (ou de l'émission) de la bande ν_3 (figure 2.5). Le choix de ces canaux a été établi empiriquement et de façon à ce que la DTB calculée soit de l'ordre du bruit de mesure en l'absence de SO_2 . Cette méthode sera appliquée dans le chapitre 3 pour identifier la période de l'année où l'instrument IASI est le plus sensible au SO_2 émis dans la région de Norilsk, et dans le chapitre 4 pour sélectionner les spectres à traiter.

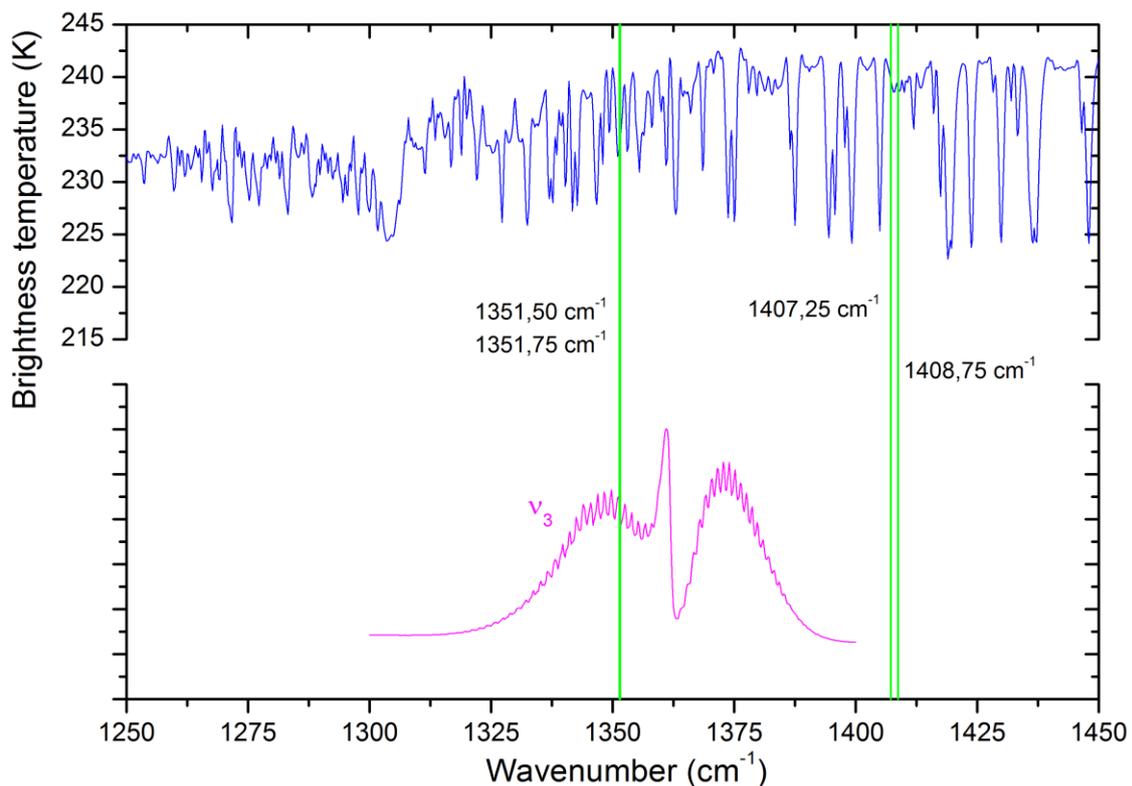


Figure 2.5 : Choix des canaux spectraux pour la mesure des DTB dans le cas du SO_2 dans la bande ν_3 . En bleu : spectre observé. En rose : bande ν_3 du SO_2 .

Il est important de noter que les valeurs des DTB, qui caractérisent une amplitude de signal, sont reliées en partie aux quantités de gaz présentes dans l'atmosphère mais que d'autres

¹⁶ Ceci est vrai pour autant que l'on considère une émissivité de 1.

paramètres interviennent, comme notamment le contraste thermique comme nous l'avons expliqué précédemment (voir sous-section 2.4 du chapitre 1 en particulier). Par conséquent, la méthode reste qualitative et une restitution des concentrations n'est possible que si la relation entre les DTB et les concentrations est connue. Cette dernière peut être déterminée sur base d'un nombre suffisant d'inversions et/ou de simulations de transfert radiatif, chacune d'elles associant une concentration à une DTB [24, 31, 32].

Enfin, une extension de la méthode des DTB pour la détection des espèces traces de l'atmosphère a été mise au point récemment [33], améliorant considérablement le seuil de détection. Celle-ci est discutée dans le chapitre 5, dans le cadre des perspectives ouvertes par le travail réalisé.

1.2.2 Etudes de la composition atmosphérique

L'un des objectifs de l'instrument IASI, comme expliqué au début de ce chapitre, est de fournir des données pour la surveillance de la composition chimique de l'atmosphère. Depuis son lancement, des avancées majeures dans la mesure des composés traces et des aérosols ont été réalisées. En tout, 24 gaz atmosphériques ont été détectés dans ses spectres [34]. Dans cet ensemble, on distingue dix espèces qui peuvent être observées dans chacun de ses spectres : CO₂, N₂O, CFC-11, CFC-12, OCS, H₂O, CH₄, O₃, CO et HNO₃. Toutes présentent des signatures spectrales claires. Parmi ces espèces, CO, O₃ et HNO₃ ont fait l'objet d'études plus extensives. La mise en évidence de leurs émissions troposphériques et l'établissement de leur(s) distribution(s) (globale, régionale, troposphérique et/ou stratosphérique,...) sont des exemples de travaux réalisés ([35, 36, 37], pour un résumé voir [26, 27]).

Outre ces 10 espèces omniprésentes dans les mesures, 14 espèces réactives ont également été observées localement : SO₂, NH₃, CH₃OH, HCOOH, C₂H₄, PAN (C₂H₃O₅N), CH₃COOH, H₂S, HONO, HCN, furane (C₄H₄O), propylène (C₃H₆), acétylène (C₂H₂) et le formaldéhyde (H₂CO). Notons que les sept dernières espèces citées n'avaient jamais été observées auparavant avec un instrument visant au nadir ; elles ont été mises en évidence pour la première fois dans les panaches de feux australiens de février 2009 [34]. Pour que ces espèces puissent être détectées, une source d'émission importante est généralement requise. Cette source peut être un événement extrême, tel qu'une éruption volcanique [31, 32, 38] ou de larges feux de végétation [30]. Une autre source possible sont les émissions biogénique et/ou anthropiques importantes [24].

Le SO₂ nous intéresse plus particulièrement car il est le point central de ce mémoire. Il est régulièrement et relativement aisément observé par IASI dans les panaches volcaniques (ex : Jebel at Tair en 2007 [31], Kasatochi en 2008 [32]). Depuis novembre 2008, un système de détection d'éruptions fonctionne en temps presque réel à l'ULB, et alerte les utilisateurs dans le cas de l'observation d'un panache volcanique. La détection de ce type de panache repose uniquement sur la mise en évidence des signatures spectrales du SO₂ dans les spectres IASI par la méthode des DTB, décrite à la sous-section précédente. Ce type de système a pour principal objectif de garantir la sécurité du trafic aérien. Plus récemment, le transport intercontinental du SO₂ troposphérique d'origine anthropique a également été mis en évidence dans un panache de haute altitude [39]. Cependant, l'observation du SO₂ de la couche limite atmosphérique par l'instrument IASI (et dans le TIR de manière générale) n'a, jusqu'à présent, jamais été rapportée.

Notons enfin que IASI est capable de détecter différents types d'aérosols, et peut en particulier les classer selon leur composition [40]. Jusqu'à présent, les aérosols observés incluent les particules volcaniques, la poussière (sable) et les aérosols de combustion, provenant d'épisodes de feux de biomasses.

2 La région polluée de Norilsk

Norilsk est la ville industrielle la plus large au-delà du cercle polaire arctique (66°32'N). Elle est située dans le kraï de Krasnoïarsk en Russie (région de Sibérie) et sur l'un des plus grands gisements de nickel de la planète. L'un de ses secteurs industriels les plus actifs est donc l'extraction de métaux lourds (nickel, cuivre, platine, palladium,...) à partir des sulfures contenus dans ce gisement, et est dirigé principalement par la compagnie MMC Norilsk Nickel.

2.1 Niveau de pollution

Par ses activités de minage et d'extraction, Norilsk est également un lieu de haute pollution [41]. Selon le classement du *Blacksmith Institute*¹⁷ pour l'année 2007, la ville fait partie des dix premières zones les plus polluées du monde. Chaque année, Norilsk rejette d'énormes quantités de polluants gazeux (SO₂, NO_x, COV,...), de particules et de métaux lourds dans l'air, et joue ainsi un rôle majeur dans la pollution de la zone arctique. Plus particulièrement, ses larges émissions de SO₂ (~ 2000 kt par an pendant les années 1990, voir figure 2.6a) contribuent en grande majorité aux problèmes d'acidification de l'Arctique [8]. Des concentrations de SO₂ au-delà de 100 µg/m³ sont fréquentes (figure 2.6b). Ceci est environ cinq fois supérieur aux concentrations d'autres régions polluées proches et, pour référence, presque en permanence au-dessus des standards de qualité de l'air en Europe (voir chapitre 1). Ces hautes émissions constituent d'ailleurs la principale source (industrielle) de SO₂ au sein du cercle polaire arctique, comme peut en témoigner les figures 2.6a et 2.6b. Malgré une politique de réduction des émissions de SO₂ prise par la compagnie MMC Norilsk Nickel fin des années 1990, il est difficile sur base de ces séries temporelles, s'arrêtant en 2003, de mettre en évidence une diminution des quantités rejetées par la ville de Norilsk, au contraire des villes voisines de Nikel et de Monchegorsk. Une variabilité interannuelle importante est en revanche révélée à Norilsk (figure 2.6b).

2.2 Climat

En raison de sa position géographique (69°20'N et 88°13'E), Norilsk connaît un climat très rude, en particulier en hiver. La courbe rouge de la figure 2.7 montre la tendance des températures de surface (du sol) diurnes au cours de la période 2009-2011 étudiée dans ce travail. Les points représentent des moyennes de températures de surface journalières, calculées sur une zone entourant la ville (67.00-71.00°N et 87.00-91.00°E). Ces points indiquent une variation saisonnière nette, associée à la variabilité du flux solaire atteignant la surface terrestre. Une sinusoïde a été ajustée à travers ces points afin de caractériser la variabilité (figure 2.7). L'équation obtenue pour cette courbe est $y = 263 + 22.9 \times \sin\left(\pi \frac{x-1.1 \times 10^4}{181.2}\right)$, avec un coefficient de détermination R² = 0.84, suggérant une température moyenne de 263 K sur la période étudiée. Les températures de surface minimales moyennes sont d'environ 240 K, mais peuvent descendre jusqu'à 230 K certains jours. Elles se produisent (figure 2.7) sur une période allant de fin novembre à début mars, caractérisée par très peu voire pas de rayonnement solaire atteignant la surface (la nuit polaire se déroule de décembre à mi-janvier). Les températures de surface maximales moyennes sont, elles, de l'ordre de 286 K, mais peuvent grimper jusqu'à 300 K en juillet. Ces maxima sont caractéristiques de la période du jour polaire à Norilsk.

Comme nous l'avons déjà mentionné à différentes reprises dans le chapitre 1, la capacité de mesurer la composition en SO₂ de la CLA de Norilsk, par un instrument tel que IASI (infrarouge thermique), dépendra des valeurs de contrastes thermiques de la région, plus encore que de celles de la température de surface. Les valeurs de TC ont été calculées sur la période de temps qui nous intéresse à partir des données IASI de niveau 2 de la manière suivante :

¹⁷ Le *Blacksmith Institute* est une organisation internationale fondée en 1991 et dédiée à la recherche de solutions aux problèmes de pollution, en particulier dans les pays à bas et moyens revenus (<http://www.blacksmithinstitute.org>).

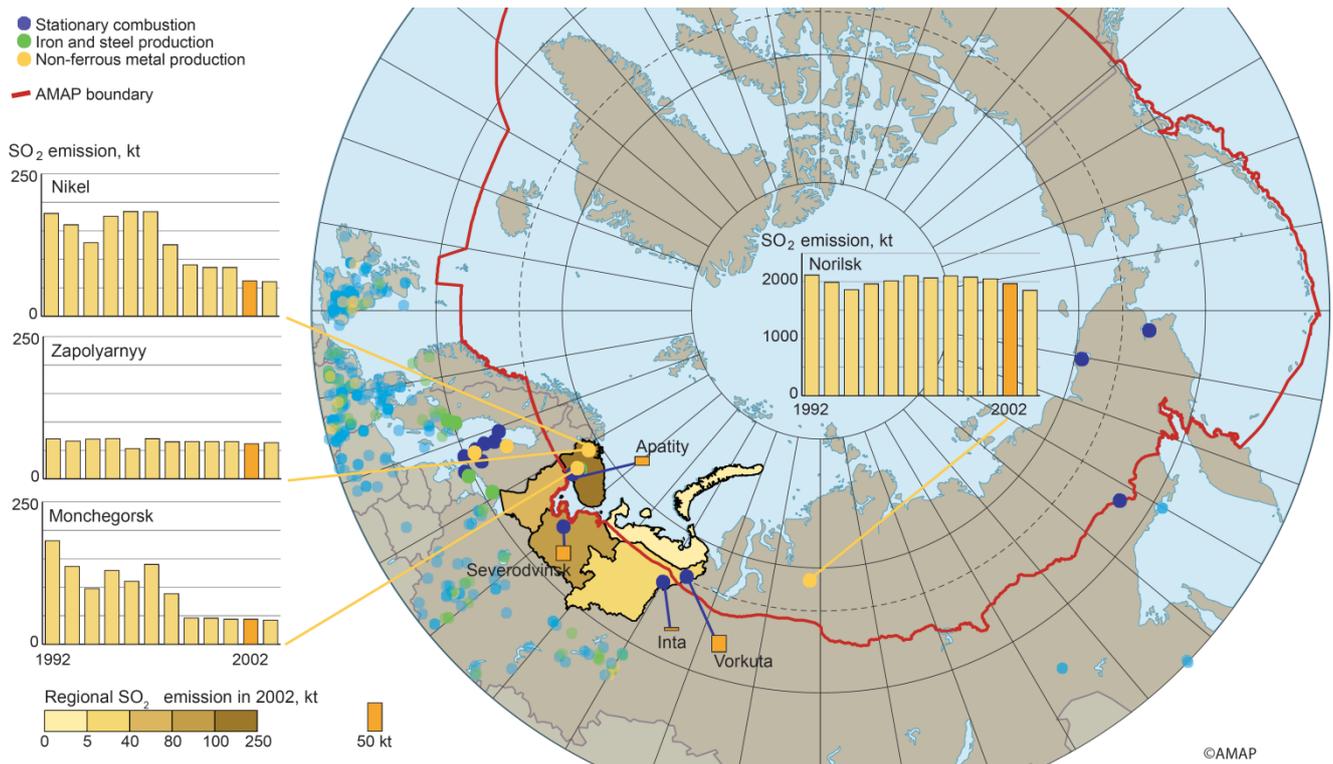


Figure 2.6a : Emissions de SO₂ (kt) de l'industrie métallurgique et des centrales à charbon principales en Russie. Les sources indiquées sont majeures dans la région située au-delà de 60°N. Les quatre histogrammes représentent les tendances d'émissions pour différentes régions d'extraction de métaux. Les colonnes oranges indiquent les émissions pour l'année 2002. Les émissions totales pour cette même année sont également indiquées pour cinq régions du nord de la Russie. Remarquons les émissions de Norilsk presque dix fois supérieures aux autres villes. Source : Arctic Monitoring and Assessment Programme (AMAP), image du rapport [8].

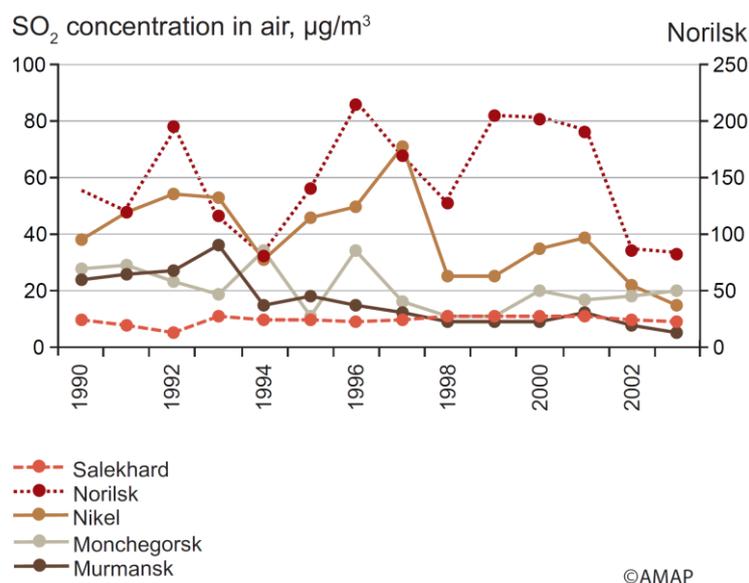


Figure 2.6b : Tendances des concentrations en SO₂ (µg/m³) dans l'air dans divers villes du nord de la Russie entre 1990 et 2003. L'échelle de droite est associée à Norilsk. Source : Arctic Monitoring and Assessment Programme (AMAP), image du rapport [8].

$$TC = T_S - T_P \quad (2.2)$$

Où T_S est la température de surface mesurée par IASI et T_P est la température du premier niveau de pression défini¹⁸.

Ces valeurs sont présentées en bleu sur la figure 2.7. De la même manière que pour les températures de surface, les contrastes thermiques ont été calculés sur la région 67.00-71.00°N, 87.00-91.00°E entourant la ville, et les points représentent les moyennes journalières. Ils évoluent selon un cycle saisonnier, semblable à celui des températures de surface. La sinusoïde ajustée a pour équation : $y = -2.4 + 5.2 \times \sin\left(\pi \frac{x+1.7 \times 10^3}{182}\right)$. Il est intéressant de noter que cette représentation est moins bonne que dans le cas des températures de surface ($R^2 = 0.51$), et ceci peut s'expliquer par le fait que les valeurs de TC ne sont pas seulement dépendantes de la quantité de rayonnement solaire atteignant la surface. Elles sont également dépendantes des températures de l'air, directement associées aux mouvements atmosphériques, et qui ne présentent pas d'évolution saisonnière aussi stable. Néanmoins, la sinusoïde permet de caractériser raisonnablement l'évolution des contrastes thermiques au cours d'une année. La valeur moyenne sur la période 2009-2011 est donc de -2.4° , mais les minima moyens sont de l'ordre de -8° et peuvent descendre jusqu'à des valeurs de plus de -15° en hiver (novembre à mars). De larges inversions de température se développent donc dans la région au cours de cette période de l'année. En été par contre, les maxima moyens sont de l'ordre de 3° et dépassent parfois 10° , notamment au cours de l'été 2011. Plus particulièrement, nous pouvons remarquer une tendance générale à des contrastes thermiques supérieurs de plusieurs degrés sur l'année 2011 par rapport aux deux autres années (cette observation nous sera utile pour interpréter les résultats).

Bien que nous décrivons ceci plus en détail dans la suite, nous pouvons déjà faire remarquer que les conditions climatiques régnant dans la région de Norilsk, et plus particulièrement le développement de larges inversions de température hivernales, sont responsables de l'observation de spectres particuliers. Nous pouvons en effet observer sur la figure 2.8 la présence de nombreuses structures spectrales en émission (par opposition par exemple au spectre de la figure 2.3), caractéristiques de contrastes thermiques négatifs existant entre la surface terrestre et l'altitude où se trouve le gaz observé (voir chapitre 1, sous-section 2.4). Remarquons particulièrement la présence de la bande ν_1 du SO_2 en émission entre 1100 et 1200 cm^{-1} .

¹⁸ Les niveaux 2 de IASI fournis par EUMETSAT sont divisés en 90 niveaux supérieurs à celui de la surface. Le niveau de pression choisi ici est le premier niveau de pression au-dessus du niveau de surface.

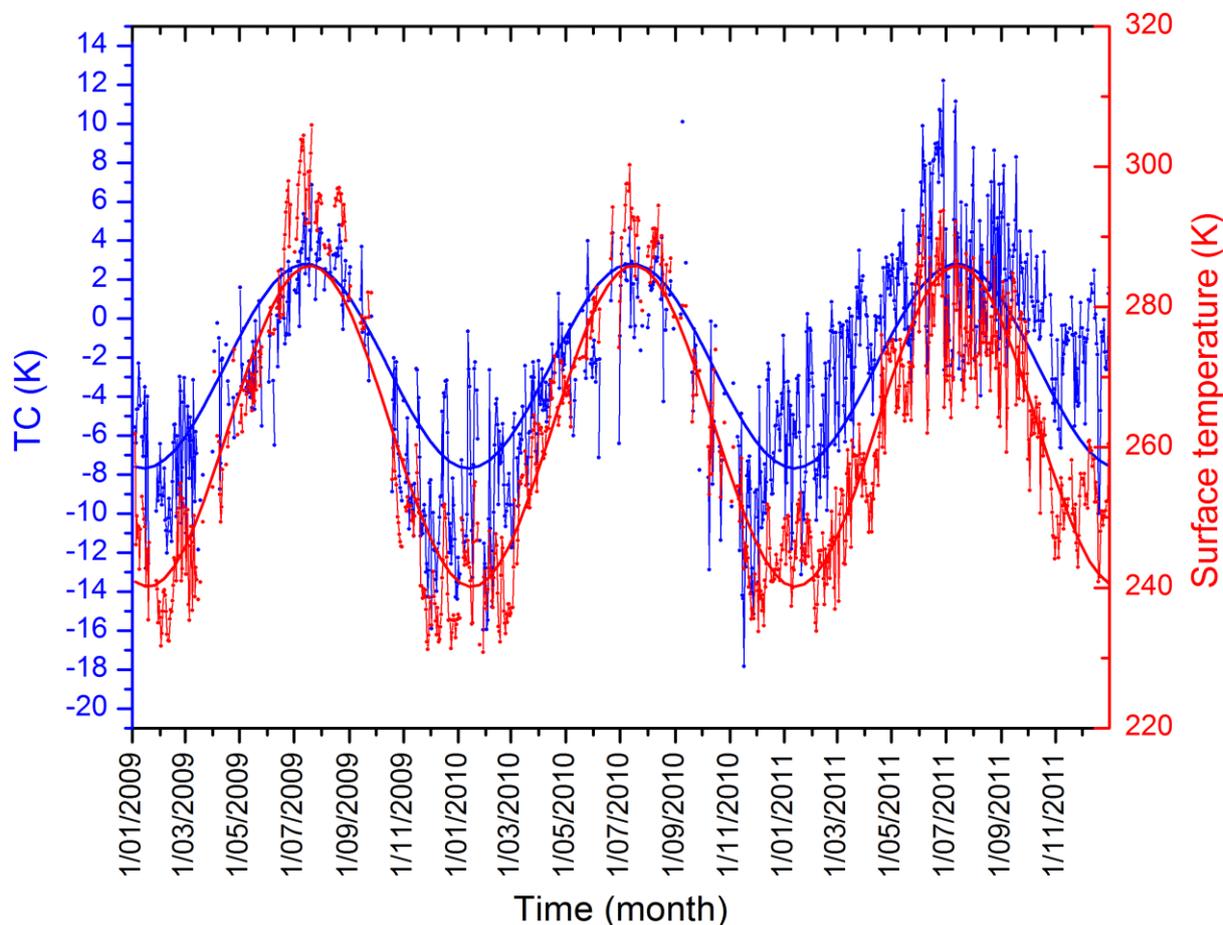


Figure 2.7 : Evolutions temporelles des températures de surface (rouge) et des contrastes thermiques (bleu) de 2009 à 2011 à Norilsk. Les points représentent des moyennes journalières sur la zone 67.00-71.00°N et 87.00-91.00°E. Les contrastes thermiques sont calculés selon l'équation (2.2). Les variabilités saisonnières des deux grandeurs ont été représentées par une courbe sinusoïdale (détails dans le texte).

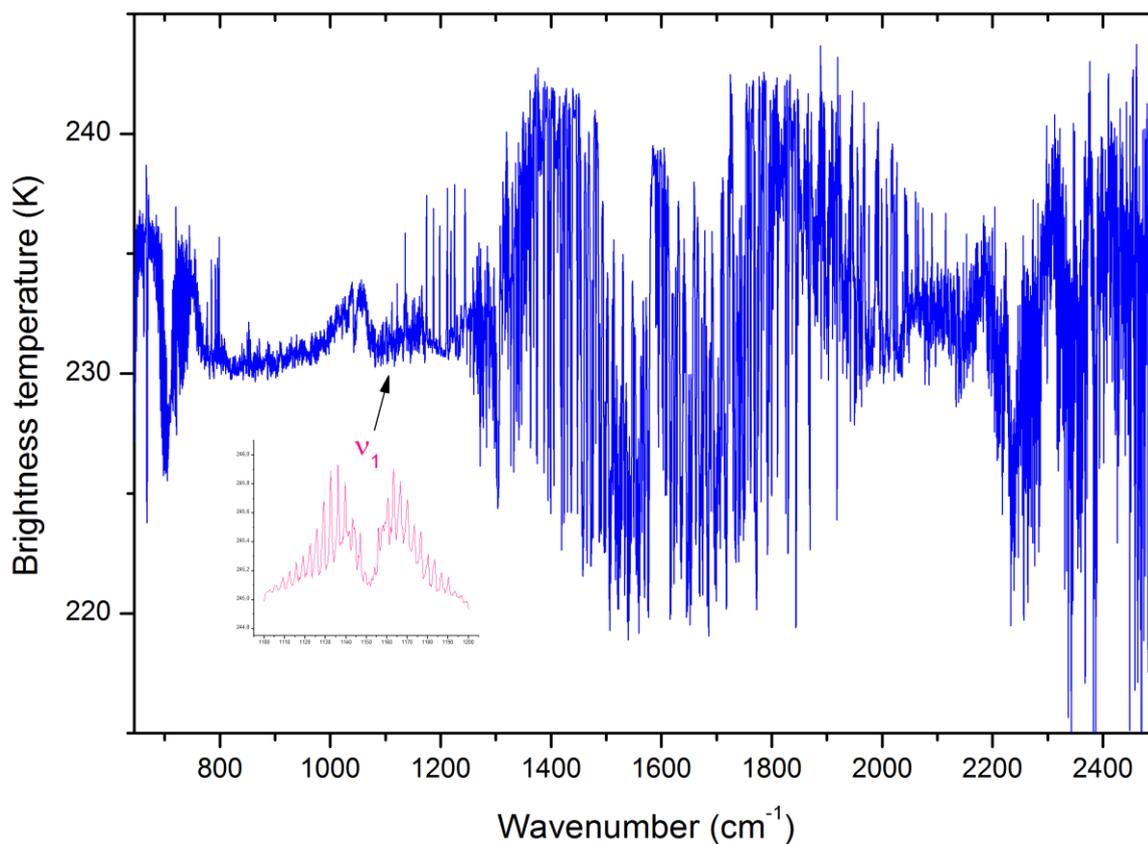


Figure 2.8 : Spectre spécifique à la région de Norilsk exprimé en température de brillance. Coordonnées : 70.08°N et 87.39°E. Date : 05/02/2009. Notons la présence de la bande ν_1 en émission.

Chapitre 3 : Sensibilité de IASI au SO₂ à Norilsk

Ce chapitre étudie la sensibilité de l'instrument IASI au SO₂ de la couche limite polluée via la modélisation directe et inverse du transfert radiatif. Il est séparé en deux parties. La première consiste en des simulations de transfert radiatif, qui ont pour but principal de déterminer l'influence des contrastes thermiques sur l'observation d'un signal de radiance du SO₂ provenant de la couche limite. Dans la deuxième partie, nous comparons les restitutions des profils verticaux du SO₂ de trois inversions différentes, réalisées sur les domaines spectraux couvrant les bandes vibrationnelles ν_1 ($\sim 1100-1200 \text{ cm}^{-1}$) et ν_3 ($\sim 1300-1400 \text{ cm}^{-1}$) séparément et simultanément. A la fin de ce chapitre, les conditions dans lesquelles la mesure du SO₂ à Norilsk est possible (période de l'année de meilleure sensibilité, bande spectrale à inverser,...) sont évaluées, et les paramètres d'inversion adéquats sont sélectionnés. Ces derniers sont utilisés pour les restitutions à plus grande échelle (temporellement et géographiquement) analysées au chapitre 4.

1 Simulations de transfert radiatif

Les simulations de transfert radiatif réalisées ont pour but d'évaluer théoriquement la possibilité de détecter un signal de radiance (caractéristique du SO₂) provenant de la couche limite atmosphérique polluée et, plus précisément, l'influence du contraste thermique sur cette détection. La manière de procéder est la suivante. Pour différentes valeurs de contraste thermique, deux spectres atmosphériques sont simulés. Un premier caractérise une situation « non-polluée », pour laquelle un profil vertical standard de SO₂, caractérisé par de faibles concentrations dans la couche limite (voir ci-dessous), est utilisé. Le deuxième correspond, lui, à une situation polluée : la concentration en SO₂ est augmentée d'un certain facteur et de manière uniforme dans la couche limite. Ces deux spectres simulés sont ensuite convertis en température de brillance selon l'équation (2.1). Pour chaque valeur de contraste thermique envisagée, la différence $\Delta TB(\tilde{\nu})$ entre le spectre « pollué » $TB(\tilde{\nu})_{pollué}$ et le spectre « non-pollué » $TB(\tilde{\nu})_{non-pollué}$ est calculée :

$$\Delta TB(\tilde{\nu}) = TB(\tilde{\nu})_{pollué} - TB(\tilde{\nu})_{non-pollué} \quad (3.1)$$

On obtient donc des valeurs de différence de température de brillance ($\Delta TB(\tilde{\nu})$) échantillonnées tous les 0.25 cm^{-1} (échantillonnage spectral de IASI) et caractéristiques de la pollution de la couche limite. Pour un échantillon spectral $\tilde{\nu}_x$, si $\Delta TB(\tilde{\nu}_x)$ est supérieure au bruit de l'instrument (pour cet échantillon), un signal de radiance provenant du SO₂ de la couche limite est donc détectable par IASI en $\tilde{\nu}_x$ (et pour la valeur de contraste thermique correspondante).

Dans les sous-sections suivantes, nous décrivons en détail les simulations. Nous commençons par décrire les différents paramètres de simulations, puis nous présentons notre définition du contraste thermique, et enfin nous discutons des résultats obtenus.

1.1 Paramètres de simulation

Le calcul de transfert radiatif a été réalisé par le programme Atmosphit (chapitre 2, sous-section 1.2.1). Une atmosphère de 60 km d'altitude, discrétisée en couches de 1 km d'épaisseur, a été définie. La première couche délimite la CLA (choix arbitraire). Les simulations ont été calculées sur la région spectrale $1000-1450 \text{ cm}^{-1}$ pour inclure les bandes ν_1 et ν_3 du SO₂, et en considérant un instrument spatial de type IASI, dont les caractéristiques ont été données au chapitre 2, pointant au nadir ($\theta = 0^\circ$). Une émissivité de 1 a été fixée pour la surface terrestre. Les données spectroscopiques

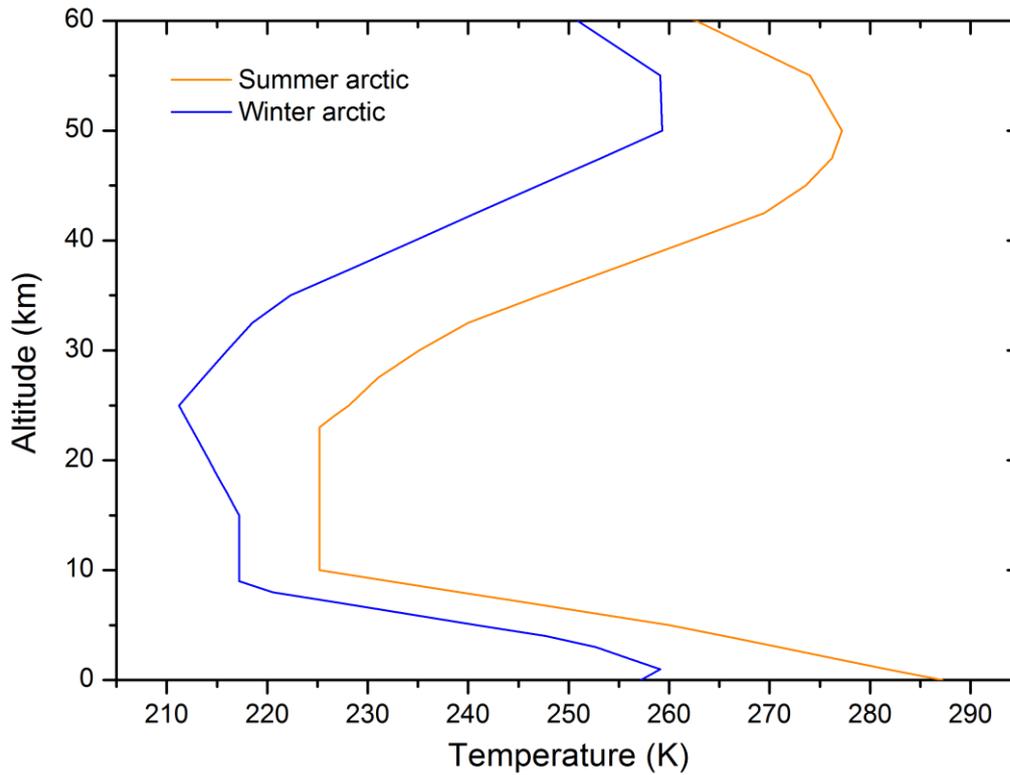


Figure 3.1 : Profils de température (K) des modèles standards subarctiques. En bleu, le modèle hiver et en orange, le modèle été. Remarquons la présence d’une inversion de température pour le modèle hiver, caractéristique du climat de la région étudiée.

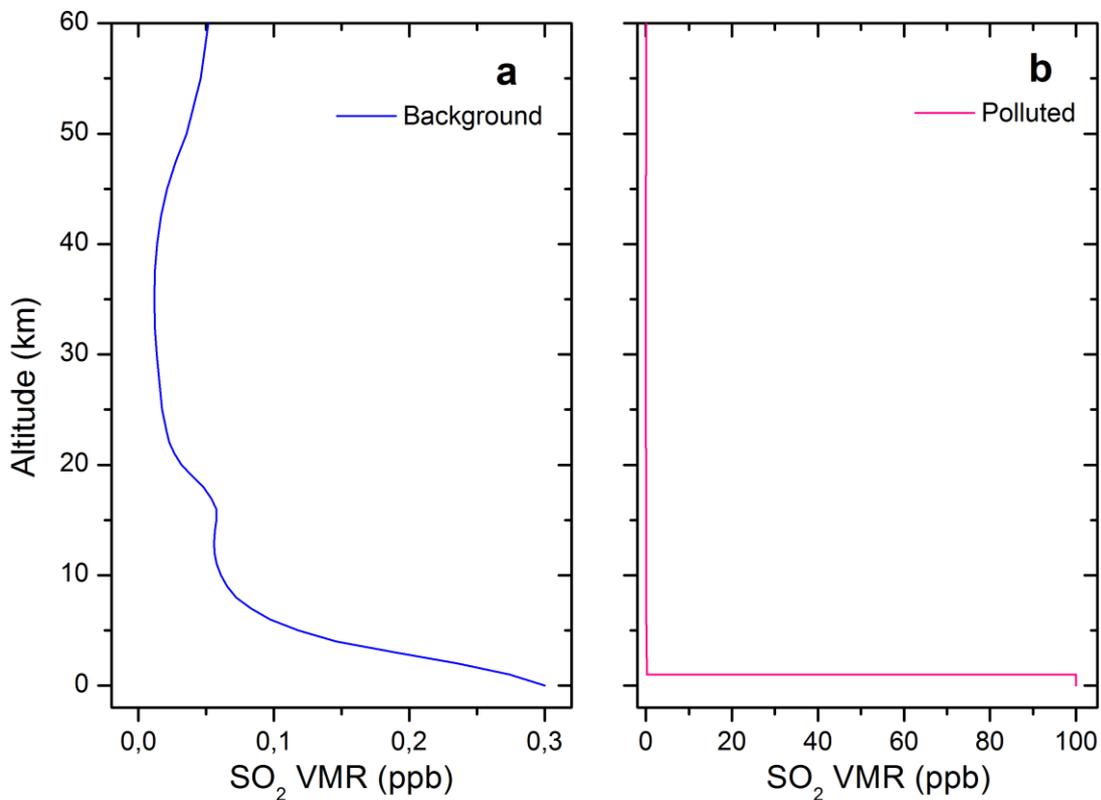


Figure 3.2 : Profils (a) non-pollué et (b) pollué du SO₂ en rapport de mélange (ppb) utilisés pour le calcul de $\Delta TB(\tilde{\nu})$ (équation (3.1)).

(paramètres de raies) sont tirées de la base de données HITRAN 2008 [11].

Les profils de température et de pression utilisés proviennent de modèles d'atmosphères standards [42]. Ces modèles proposent différentes climatologies selon la zone géographique et la saison. On distingue ainsi six modèles : tropical, moyennes latitudes (été et hiver), subarctiques (été et hiver) et US Standard 1976 (modèle global) (voir Annexe 1). Pour le SO_2 , nous trouvons (résultats non détaillés mais résumés en Annexe 2) que la détection n'est pas possible pour les atmosphères tropicales et des latitudes moyennes, étant donné l'opacité de l'atmosphère dans les basses couches dès que les taux d'humidité deviennent importants (voir aussi le cas subarctique en été décrit ci-après). Nous nous limitons donc ici aux modèles subarctiques été et hiver, afin d'observer un effet de saison éventuel sur la sensibilité de IASI au SO_2 de la CLA. Les profils de température correspondants sont présentés sur la figure 3.1.

Le profil vertical de SO_2 non-pollué (en rapport de mélange) provient également des modèles standards subarctiques été/hiver¹⁹ et est représenté à la figure 3.2a. Notons que ce profil est identique pour les deux modèles. Comme expliqué ci-dessus (début de section), le profil pollué est construit en augmentant de manière uniforme la quantité de SO_2 dans la couche limite. Son rapport de mélange (VMR) a ainsi été porté à 100 ppb dans le premier kilomètre (CLA), le reste du profil étant identique à celui non pollué (figure 3.2b). Le choix de ce VMR pollué repose sur des valeurs publiées dans la littérature, obtenues par des mesures locales au sol dans la région de Norilsk [8, 41].

Enfin, les profils verticaux de 38 autres gaz²⁰ sont également tirés des deux modèles atmosphériques standards étudiés. Pour la région spectrale qui nous intéresse, les principales interférences avec le SO_2 sont dues à la vapeur d'eau et au méthane.

1.2 Définition du contraste thermique

Comme nous l'avons déjà mentionné au chapitre 1, sous-section 2.4, le contraste thermique est la différence entre la température de surface et la température de l'air situé à une altitude donnée. Puisque nous nous intéressons à la sensibilité de IASI à la couche limite, nous avons défini, pour les simulations, le contraste thermique comme la différence entre la température de surface (T_S) et la température moyenne de la couche limite (\bar{T}_{CLA}), c'est-à-dire la température à 500 m d'altitude (figure 3.3). L'équation (2.2) (chapitre précédent) devient alors

$$TC = T_S - \bar{T}_{CLA} = T_S - T_{CLA}(500 \text{ m}) \quad (3.2)$$

Deux cas se distinguent :

- i. le contraste thermique est positif ($T_S > \bar{T}_{CLA}$, figure 3.3a).
- ii. le contraste thermique est négatif ($T_S < \bar{T}_{CLA}$, figure 3.3b).

Pour chacun des deux profils de température considérés, des simulations sont réalisées pour des valeurs de contrastes thermiques allant de -15° à 15° par pas de 1° . La température moyenne de la CLA est maintenue constante, seule la température de surface est modulée pour faire varier ces valeurs. Un résumé est donné dans le tableau 3.1 ci-dessous.

¹⁹ Ces profils verticaux standards représentent les concentrations moyennes en SO_2 observées en zone arctique. Ils ne tiennent donc pas compte d'une source de pollution particulière. On parlera de concentrations « de fond ».

²⁰ Les 39 premières molécules définies dans la base de données HITRAN 2008 peuvent être incluses dans Atmosphit (Annexe 1). Pour certaines cependant, la concentration standard est nulle.

Tableau 3.1 : Contrastes thermiques pour les deux modèles atmosphériques standards étudiés.

Profils de température	\bar{T}_{CLA}	Variations T_S	Pas de la variation
Subarctique été	284.4 K	$269.4 < T_S < 299.4$ K	1°
Subarctique hiver	258.5 K	$243.5 < T_S < 273.5$ K	1°

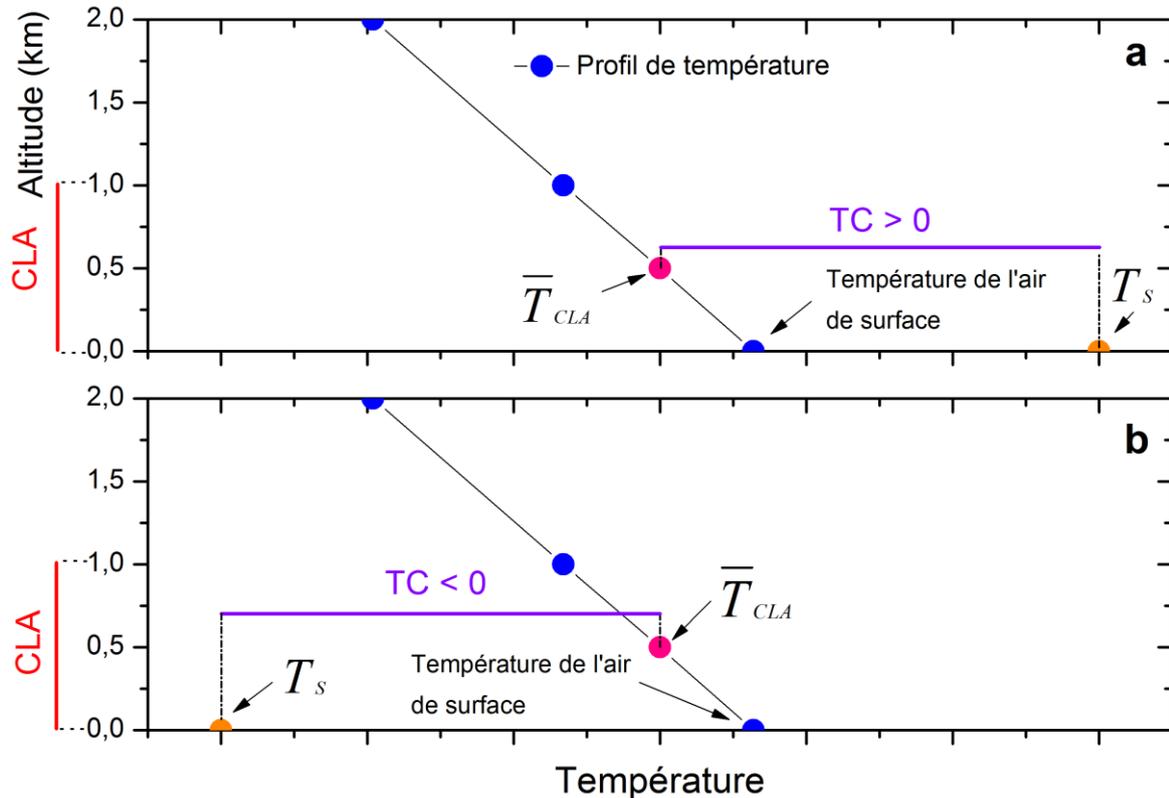


Figure 3.3 : Définition du contraste thermique pour un profil de température hypothétique, défini par niveaux de 1 km (points bleus). T_S (point orange) représente la température de surface et \bar{T}_{CLA} (point rose) la température moyenne de la CLA, à 500 m. (a) Cas d'un contraste thermique positif ($T_S > \bar{T}_{CLA}$) et (b) cas d'un contraste thermique négatif ($T_S < \bar{T}_{CLA}$).

1.3 Résultats

Le bruit de IASI n'étant pas constant sur la région spectrale étudiée, les différences de température de brillance ont été normalisées ($\Delta TB(\tilde{\nu})_{norm}$) par celui-ci (figure 2.4, chapitre 2), pour faciliter notamment la comparaison des deux bandes spectrales du SO_2 . Une $\Delta TB(\tilde{\nu})_{norm}$ absolue supérieure à 1 est alors nécessaire à la détection d'un signal provenant de la CLA par IASI. Les résultats sont repris sur les figures 3.4 (hiver) et 3.5 (été). Celles-ci représentent les différences de température de brillance normalisées (échelle de couleur) portées en fonction du contraste thermique et de l'échantillonnage spectral. Les structures observées entre 1100 et 1200 cm^{-1} sont celles de la bande ν_1 , et entre 1300 et 1400 cm^{-1} , celles de la bande ν_3 . Pour chacune des deux figures, les valeurs de $\Delta TB(\tilde{\nu})_{norm}$ sont négatives dans le cas de contrastes thermiques positifs. Ceci s'explique par le fait que, les raies du SO_2 apparaissant en absorption pour $TC > 0$ (chapitre 1, sous-section 2.4), les températures de brillance $TB(\tilde{\nu})_{pollué}$ associées à ces raies sont inférieures aux températures de brillance $TB(\tilde{\nu})_{non-pollué}$ (intensité d'absorption croît avec la quantité de SO_2). En revanche, dans le cas de contrastes thermiques négatifs, les $\Delta TB(\tilde{\nu})_{norm}$ sont positives, car les raies

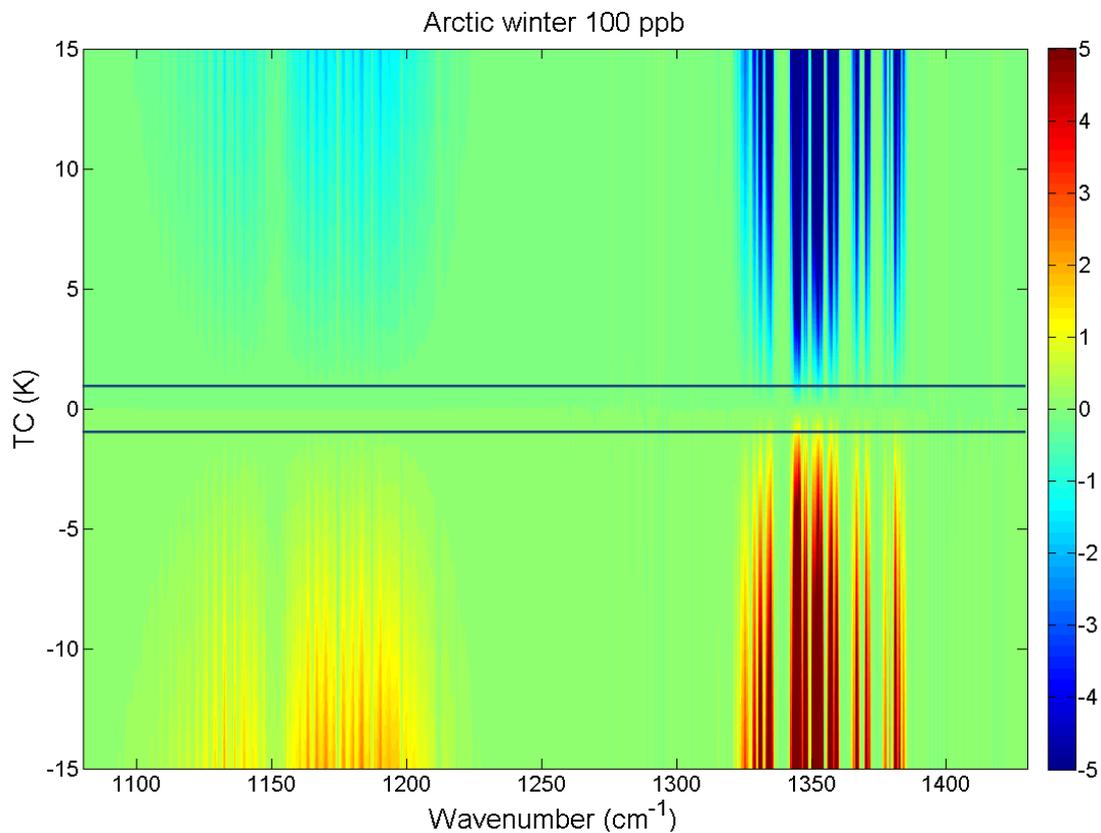


Figure 3.4 : Influence du contraste thermique sur la détection d'un signal de température de brillance provenant de la couche limite pour le modèle atmosphérique standard subarctique hiver. L'échelle de couleur représente les différences de température de brillance normalisées ($\Delta TB(\tilde{\nu})_{norm}$), calculées entre le spectre pollué et le spectre non-pollué. Les deux traits bleus foncés correspondent à des valeurs de TC égales à $\pm 1^\circ$. Pour les détails, voir texte.

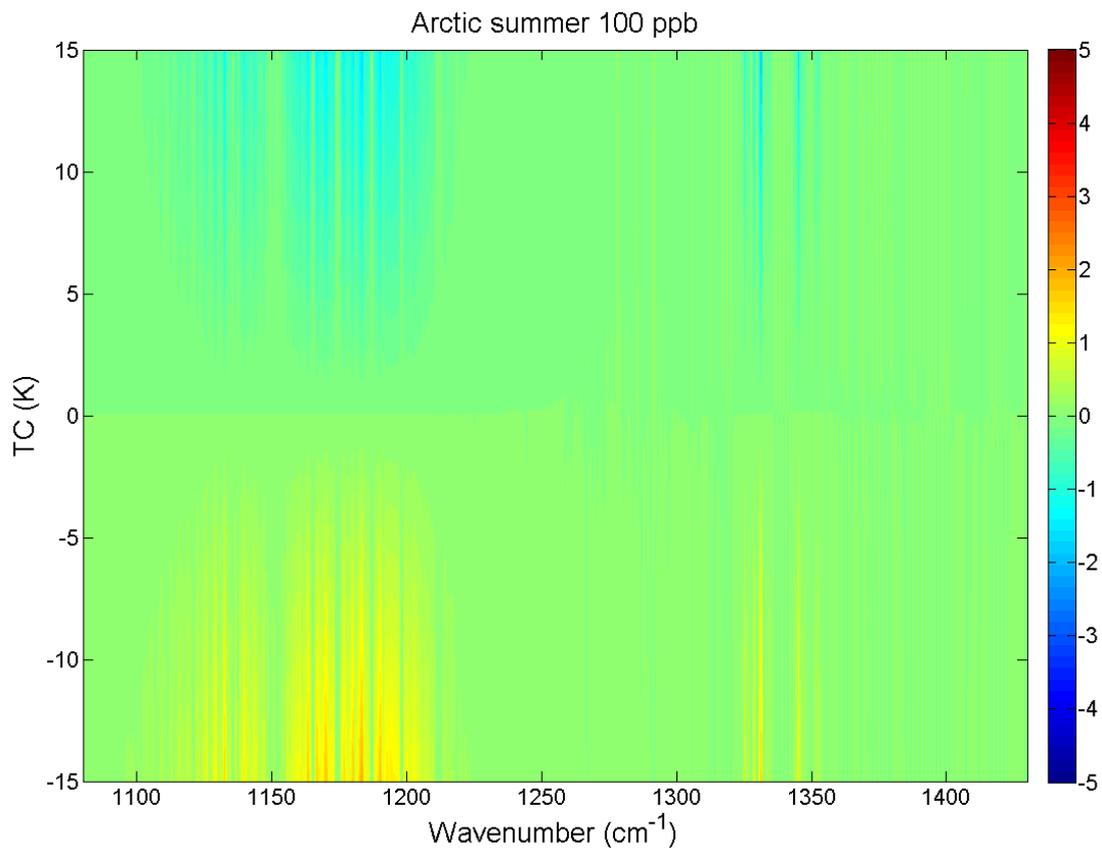


Figure 3.5 : Même chose que pour la figure 3.4 mais pour le modèle atmosphérique standard subarctique été.

du SO_2 apparaissent en émission ($TB(\tilde{\nu})_{\text{pollu  }}$ sont alors sup  rieures aux $TB(\tilde{\nu})_{\text{non-pollu  }}$). Dans le cas o   le contraste thermique est   gal    0, la $\Delta TB(\tilde{\nu})_{\text{norm}}$ est nulle et aucun signal n'est d  tect   au sondeur.

En hiver (figure 3.4), on distingue une nette diff  rence de sensibilit   de IASI aux deux bandes spectrales du SO_2 . Les raies les plus intenses de la bande ν_3 ressortent du bruit de mesure pour des valeurs absolues de contrastes thermiques sup  rieures    1  . La bande devient presque enti  rement d  tectable pour des TC absolus de 5  . Les $\Delta TB(\tilde{\nu})_{\text{norm}}$ atteignent des valeurs absolues de 20 pour certains nombres d'onde et pour un contraste thermique absolu de 15  . En revanche, la bande ν_1   tant moins intense, des contrastes thermiques plus   lev  s sont n  cessaires    sa d  tection. Pour seulement quelques   chantillons spectraux, la bande est d  tectable    partir de contrastes thermiques absolus de 10   (en particulier pour les TC n  gatifs). L'observation de la bande reste partielle pour des TC absolus de 15  .

En   t   (figure 3.5), la sensibilit   de IASI au SO_2 de la CLA est radicalement diff  rente. La bande ν_3 est inobservable, quelle que soit la valeur du contraste thermique. Ceci s'explique par la pr  sence d'une plus grande quantit   de vapeur d'eau dans la couche limite en   t   (la concentration en vapeur d'eau, pour le mod  le subarctique hiver utilis  , est presque dix fois inf  rieure    celle du mod  le   t   [42]), rendant les basses couches de l'atmosph  re opaques dans la r  gion spectrale au-dessus de 1300 cm^{-1} , o   la bande ν_3 du SO_2 est localis  e. Dans ce cas, la radiation d  tect  e au sondeur est celle   mise par une couche atmosph  rique sup  rieure (o   la concentration en vapeur d'eau est plus basse), et att  nu  e (ou intensifi  e) par les couches qui la succ  dent (voir sous-section 2.2 du chapitre 1 sur le transfert radiatif). Par cons  quent, le spectre enregistr   au sondeur ne contient aucune signature provenant de la couche limite pour cette r  gion spectrale. Dans notre cas, la diff  rence entre les spectres pollu   et non-pollu   (caract  ris  s par un m  me profil de vapeur d'eau) ne pr  sente donc pas de signatures provenant de la CLA pour cette r  gion spectrale.

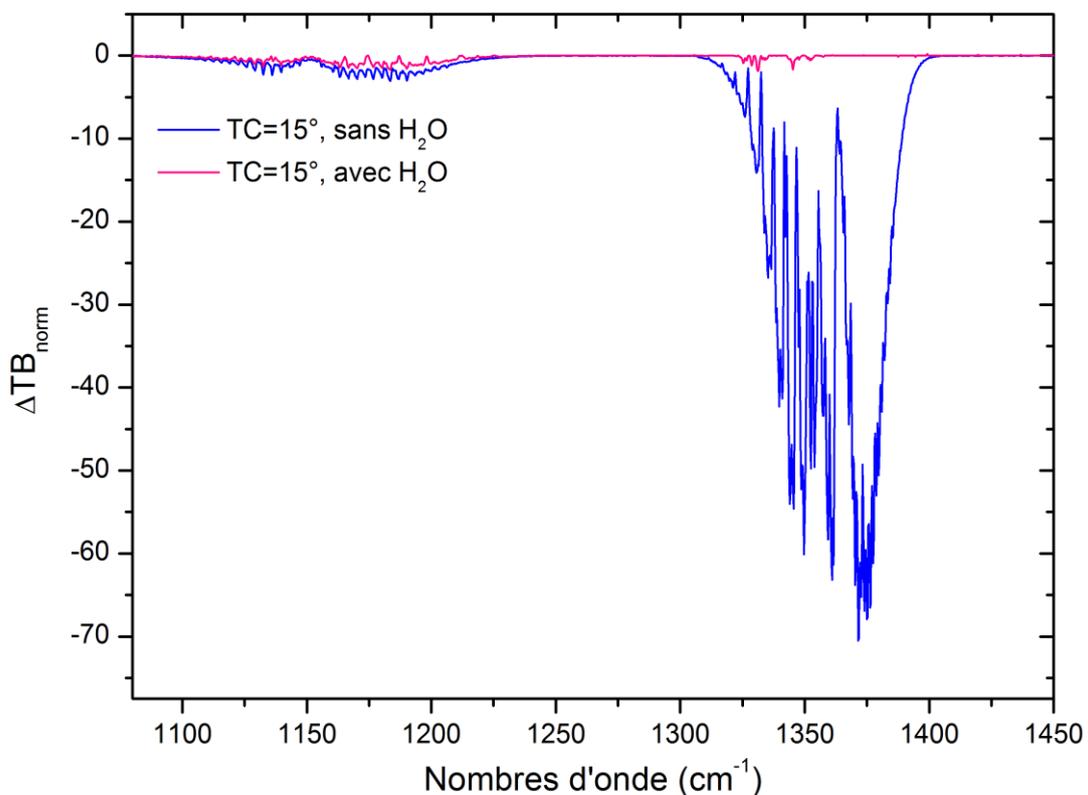


Figure 3.6 : Influence de la vapeur d'eau sur la d  tection d'un signal provenant de la couche limite, illustr  e dans le cas du mod  le atmosph  rique standard subarctique   t   et pour un TC = 15  . En bleu, la simulation a   t   r  alis  e pour une atmosph  re s  che. En rose, la simulation est r  alis  e en utilisant le profil vertical de la vapeur d'eau du mod  le standard.

L'influence de la vapeur d'eau est encore illustrée à la figure 3.6, qui compare les valeurs de $\Delta TB(\tilde{\nu})_{norm}$ calculées pour une atmosphère hypothétique sèche (bleu) et pour une atmosphère subarctique été (rose) : dans le cas de l'atmosphère humide, la valeur de $\Delta TB(\tilde{\nu})_{norm}$ reste inférieure à 1 alors qu'elle atteint des valeurs importantes pour une atmosphère sèche.

Au contraire de la bande ν_3 , la bande ν_1 se situe dans une région spectrale ($\sim 1100-1200\text{cm}^{-1}$) où la vapeur d'eau ne présente que quelques raies d'absorption. L'observation des structures de cette bande à la sortie de la CLA est donc beaucoup moins influencée par la concentration en vapeur d'eau. Cependant, leur détection reste difficile étant donné la faiblesse des sections efficaces d'absorption dans la bande ν_1 : elle n'est possible que pour certains nombres d'onde et pour des valeurs absolues de contraste thermique de 15° et plus.

Il est évident que la détection d'un signal provenant de la couche limite par IASI dépend non seulement du contraste thermique, mais également de la concentration en SO_2 de la CLA. Au vu des résultats précédents, des simulations de transfert radiatif ont été réalisées de la même manière pour différents niveaux de pollution de SO_2 dans la CLA, et uniquement pour le modèle subarctique hiver (la détection du SO_2 en été étant fortement entravée par la vapeur d'eau). Leurs résultats sont résumés dans le tableau 3.2 ci-dessous. Nous pouvons remarquer que plus le rapport de mélange du SO_2 dans la CLA est élevé, plus la détection des deux bandes spectrales est aisée. Ainsi, la mesure de VMR inférieurs à 20 ppb n'est possible que pour des contrastes thermiques (en valeur absolue) supérieurs à 5° . La bande ν_1 devient plus facilement détectable ($|TC|$ seuil de 5°) à partir de VMR égaux ou supérieurs à 200 ppb. Enfin, la mesure de la bande ν_3 devient « indépendante » du contraste thermique (nous entendons ici qu'elle nécessite uniquement des $TC \neq 0^\circ$) à partir de 120 ppb de SO_2 dans la couche limite.

Tableau 3.2: Influence du VMR du SO_2 dans la CLA sur la détection d'un signal provenant de cette couche. Pour chaque VMR considéré, le TC seuil (en valeur absolue) pour cette détection est indiqué pour les bandes ν_3 et ν_1 . Notons que le seuil est donné lorsqu'au moins le signal d'un échantillon spectral est détecté (sort du bruit).

Modèle atmosphérique	VMR SO_2 (ppb) dans CLA	$ TC $ seuil pour ν_3	$ TC $ seuil pour ν_1
Subarctique hiver	20	$> 5^\circ$	$\gg 15^\circ$
	40	5°	$> 15^\circ$
	60	3°	$> 15^\circ$
	80	2°	15°
	120	1°	$> 10^\circ$
	140	1°	10°
	160	1°	8°
	180	1°	$> 5^\circ$
	200	1°	5°
	250	1°	4°
	300	1°	4°

Enfin, des simulations de transfert radiatif ont été réalisées dans le même but pour d'autres atmosphères standards et pour d'autres molécules. Les résultats sont présentés en Annexe 2.

2 Comparaison de l'inversion des bandes ν_1 et ν_3

Dans la section précédente, nous avons étudié théoriquement (i. e. par des simulations directes de transfert radiatif) l'influence du contraste thermique et de la concentration en SO_2 dans la CLA sur

la détection des bandes ν_1 et ν_3 du SO_2 de la couche limite. Nous avons entre autre mis en évidence une différence de sensibilité de IASI à ces deux bandes, la ν_1 étant plus difficilement détectable en hiver. Dans cette section, nous continuons à étudier cette différence sur des situations et spectres réels. Plus particulièrement, nous comparons l'inversion des deux bandes spectrales pour un spectre hiver (la bande ν_3 étant inobservable en été). Trois inversions ont ainsi été réalisées sur un même spectre IASI, enregistré le 06/02/2009 à 69.51°N et 87.67°E (région de Norilsk). Les trois inversions concernent:

- i. la bande ν_1 seule
- ii. la bande ν_3 seule
- iii. les deux bandes simultanément.

Nous présentons dans la première sous-section les paramètres d'inversion utilisés, et dans la deuxième sous-section, nous discutons les résultats obtenus.

2.1 Paramètres d'inversion

Les trois inversions ont été réalisées par le programme Atmosphit (chapitre 2, sous-section 1.2.1). Dans chaque cas, les profils verticaux de température, de pression et d'humidité (vapeur d'eau) utilisés sont ceux fournis par le système de distribution opérationnelle EUMETCast (données de niveau 2). Ces paramètres sont maintenus constants au cours de la procédure d'inversion sauf la température de surface et le profil de vapeur d'eau (détails ci-dessous), qui sont modifiés itérativement pour obtenir le meilleur ajustement possible du spectre. Les émissivités utilisées sont dérivées des émissivités spectrales proposées par Zhou et al. [43]. Celles-ci sont disponibles sur tout le domaine spectral de IASI et correspondent à des moyennes mensuelles sur

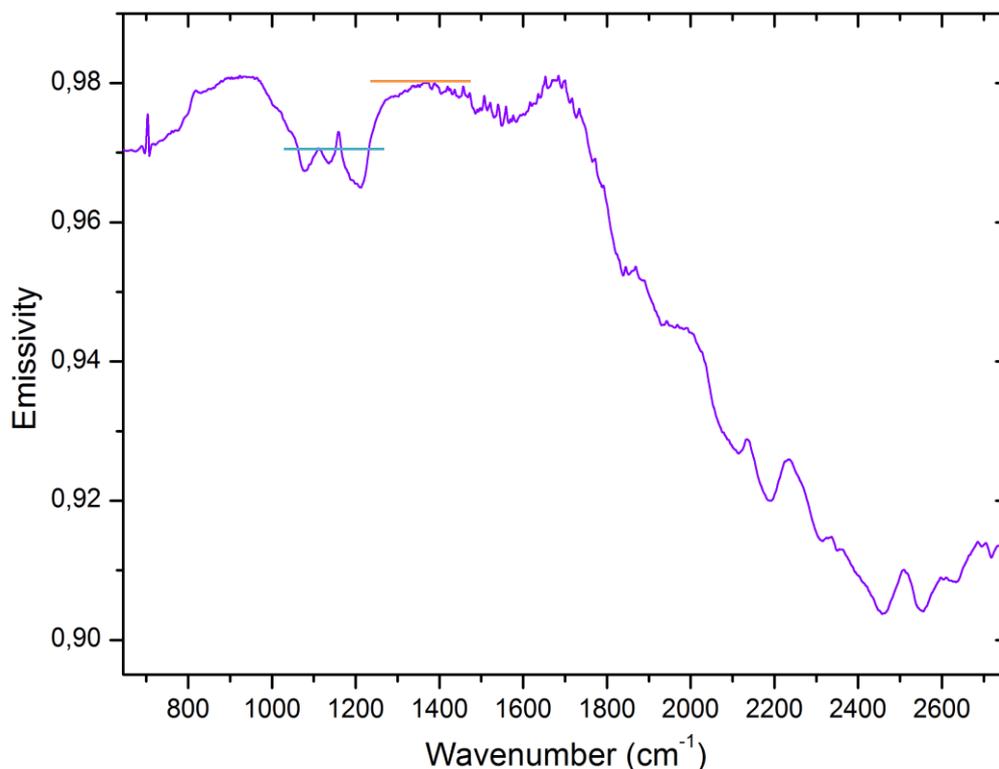


Figure 3.7 : Emissivités spectrales pour l'ensemble du domaine spectral de IASI et pour le mois de février à Norilsk (69°N et 88°E). Entre 1100 et 1200 cm^{-1} , l'émissivité est en moyenne de 0.97 (trait bleu) et entre 1300 et 1400 cm^{-1} , elle est en moyenne de 0.98 (trait orange).

une grille 0.5°x0.5° pour l'ensemble du globe²¹. La figure 3.7 illustre l'émissivité spectrale pour le mois de février et pour la région qui nous intéresse. Les valeurs des autres paramètres utilisés pour chaque inversion sont précisées ci-dessous.

La bande ν_1 a été inversée de 1100 à 1200 cm^{-1} , et la bande ν_3 de 1285 à 1400 cm^{-1} , mais en retirant la région allant de 1290 à 1308 cm^{-1} ²². L'inversion simultanée des deux bandes est réalisée sur les deux régions spectrales précédentes. L'émissivité est fixée 0.97 pour l'ajustement de la bande ν_1 et à 0.98 pour celui de la bande ν_3 et pour l'ajustement simultané (figure 3.7). Les paramètres ajustés sont résumés dans le tableau 3.3 ci-dessous.

Tableau 3.3 : Paramètres ajustés pour les trois inversions. Pour chacun de ceux-ci, la discrétisation de l'atmosphère, l'a priori utilisé, la variabilité associée (éléments diagonaux identiques de la matrice de covariance S_a (chapitre 1, sous-section 2.3), exprimés en %) sont indiqués. La dernière colonne précise pour quelle inversion ces paramètres sont appliqués.

Paramètres	Discrétisation	A priori	Variabilité	Bande(s)
H₂O	0-10 km : 5 couches de 2 km d'épaisseur	Niveau 2 fourni par EUMETSAT	20% pour toutes les couches	ν_1
	10-20 km : 2 couches de 5 km d'épaisseur			ν_3 ν_1 et ν_3
O₃	0-20 km : 1 couche de 20 km d'épaisseur	Profil du modèle atmosphérique subarctique hiver	10% pour toutes les couches	ν_1
	20-50 km : 6 couches de 5 km d'épaisseur			ν_1 et ν_3
CH₄	1 couche de 0 à 10 km	Profil du modèle atmosphérique subarctique hiver	10%	ν_3 ν_1 et ν_3
SO₂	0-5 km : 5 couches d'1 km d'épaisseur	0-9.4 km : 40 ppb	40% pour toutes les couches	ν_1
	5-10km : 1 couche de 2 km et 1 couche de 3 km d'épaisseur	>9.4 km : profil du modèle atmosphérique subarctique hiver		ν_3 ν_1 et ν_3
CFC-12	1 couche pour toute l'atmosphère	550 ppt jusqu'à ~ 20 km [44]	1%	ν_1 ν_1 et ν_3
T_S	/	Niveau 2 fourni par EUMETSAT = 230 K	2%	ν_1 ν_3 ν_1 et ν_3

Notons que les éléments non-diagonaux de la matrice de covariance S_a , dont les éléments diagonaux (en racine carrée) correspondent à la variabilité reprise dans la tableau 3.3, sont calculés en appliquant une décroissance exponentielle aux éléments diagonaux [12]. L'équation utilisée est la suivante :

$$S_{ij} = \sigma_a^2 \exp(-|z_i - z_j|/H) \quad (3.3)$$

²¹ Ces émissivités ont été restituées à partir des données IASI sur la période Juillet 2007-Juin 2008. On considère ici qu'elles sont invariantes d'une année à l'autre.

²² Cette région inclut la branche Q du CH₄, laquelle est mal modélisée par Atmosphit qui ne tient pas compte du *line mixing* dans le modèle direct.

Où σ_a^2 est la valeur des éléments diagonaux de la matrice S_a , z_i et z_j sont les altitudes corrélées et H est la hauteur d'échelle. La hauteur d'échelle utilisée est de 2 km pour l'inversion de la bande ν_1 et de 7 km dans le cas de la bande ν_3 et de l'ajustement simultané. Enfin, les profils des autres molécules restantes sont tirés du modèle subarctique hiver et sont maintenus constants au cours de la procédure.

2.2 Résultats

Les ajustements des spectres dans les deux bandes spectrales et leurs résidus (spectre observé – spectre ajusté) sont donnés sur les figures 3.8a et 3.8b. Sur ces figures est également représentée (en noir) la différence entre le spectre observé et un spectre calculé pour la même climatologie mais ne contenant pas de SO_2 . Celle-ci nous permet de constater que les deux bandes spectrales sont présentes dans le spectre IASI et apparaissent en émission (différence positive). Ceci est cohérent avec la présence d'une inversion de température dans le profil fourni par EUMETSAT (TC=-13°). Cependant, la bande ν_1 est très faible et sort très peu du bruit. Ceci rejoint également les résultats présentés dans la section précédente, lesquels suggèrent que la bande ν_1 commence à être faiblement détectée en hiver à partir de contrastes thermiques absolus de 10°, pour 100 ppb de SO_2 dans la CLA, et de 8° pour 160 ppb (tableau 3.2).

Les profils verticaux restitués du SO_2 correspondant aux trois inversions sont indiqués sur la figure 3.9. Nous pouvons remarquer une très nette différence entre le profil restitué par l'ajustement de la bande ν_1 et les deux autres. Ce premier profil se distingue tout d'abord par le VMR du SO_2 de la CLA (première couche) : il n'est en effet seulement que de 93 ppb alors qu'il atteint des valeurs supérieures à 150 ppb pour les deux autres ajustements (174 ppb pour l'ajustement de la bande ν_3 seule et 160 ppb pour l'ajustement simultané). Ensuite, alors que les VMR des deux autres profils décroissent très rapidement avec l'altitude, celui associé à la restitution de la bande ν_1 croît dans le premier kilomètre et diminue ensuite lentement pour atteindre 35 ppb dans la couche 7-10km (VMR < 4ppb pour les deux autres). Cette forme de profil est improbable dans le cas considéré, étant donné le temps de vie du SO_2 . En effet, avec un temps de vie de l'ordre de trois jours en hiver et une source anthropique confiné dans la CLA, de grandes quantités de SO_2 ne peuvent pas atteindre la haute troposphère, la durée nécessaire à ce transport étant de l'ordre du mois (chapitre 1, sous-section 1.2). Enfin, nous remarquons sur la figure 3.9 que les erreurs²³ associées aux colonnes partielles restituées²⁴ par l'ajustement de la bande ν_1 sont supérieures à celles associées aux deux autres ajustements, en raison du faible signal dans ν_1 . Plus précisément, dans le cas de l'inversion utilisant ν_1 , les erreurs varient entre 30 et 40% sur l'ensemble du profil, avec une valeur de 32% associée au VMR de la CLA. Pour les deux ajustements impliquant ν_3 , elles sont comprises entre 10 et 20% sur l'ensemble du profil, avec des valeurs de 16% (ajustement ν_3 seul) et 17% (ajustement simultané) associées aux VMR de la CLA.

Finalement, les noyaux moyens, définis par l'équation (1.11), pour chacun des trois ajustements et pour les cinq premières couches définies, sont représentés sur la figure 3.10. Nous tenons à remarquer que l'interprétation qui suit ne vaut que qualitativement, étant donné l'utilisation de paramètres d'inversion légèrement différents. Dans les trois cas, les premiers noyaux moyens (des premières couches) pointent vers le bas de l'atmosphère, indiquant un maximum de sensibilité près de la surface. Une information sur les basses couches de l'atmosphère est donc disponible dans le spectre. Une différence existe cependant entre les ajustements des bandes ν_3 et ν_1 seules. En effet, dans le cas de l'inversion utilisant la bande ν_1 (figure 3.10b), les noyaux moyens pour les cinq premières colonnes partielles ont une distribution verticale identique. Ceci suggère que le spectre ne contient au mieux qu'une information sur la colonne de SO_2 dans la basse troposphère,

²³ Les erreurs envisagées ici sont les erreurs statistiques (1σ), associées aux éléments diagonaux de la matrice de covariance \hat{S} .

²⁴ Notons que le terme colonne utilisé ici fait référence au VMR moyen d'une couche donnée, calculé comme le rapport entre la colonne partielle restituée (molécules/cm²) pour cette couche et la colonne partielle d'air correspondante.

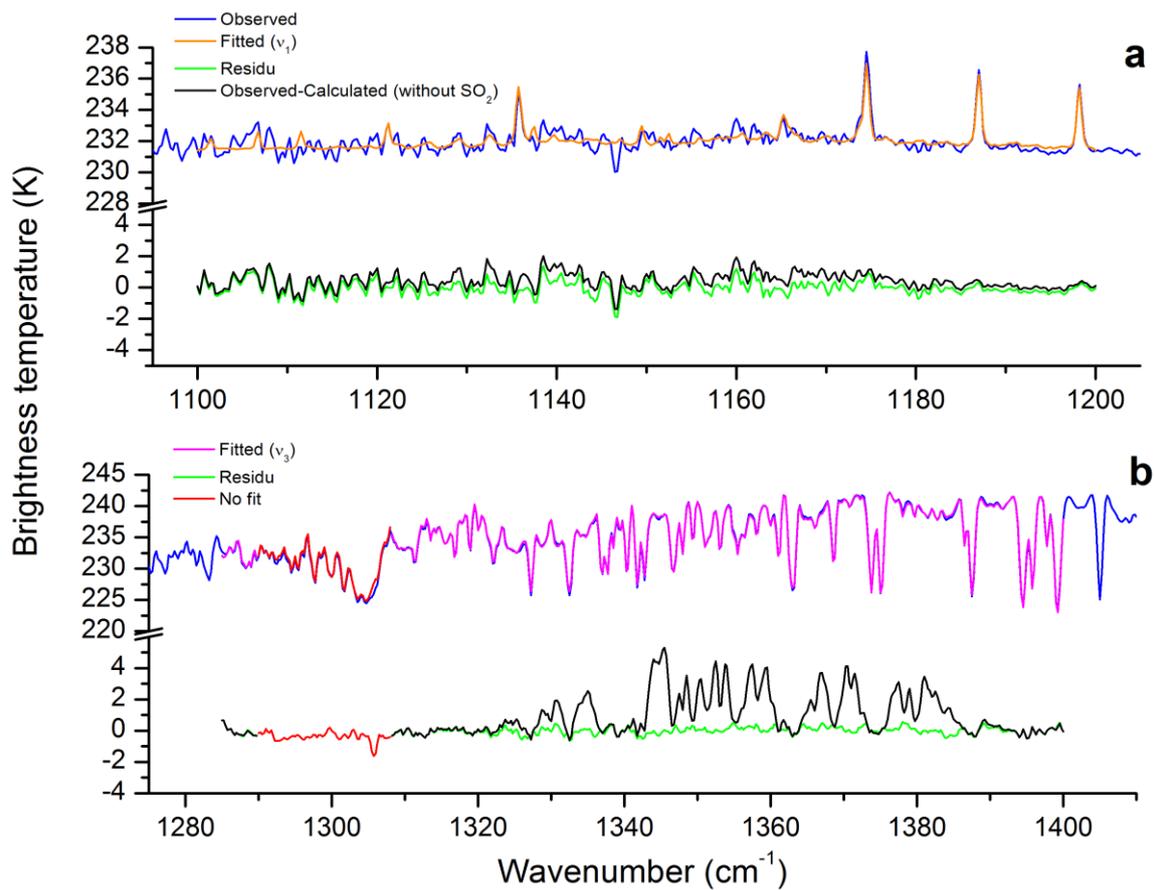


Figure 3.8 : Ajustements d'un spectre mesuré le 06/02/2009 à 69.51°N et 87.67°E dans les bandes spectrales ν_1 (a) et ν_3 (b). En bleu : spectre observé, en orange : spectre ajusté dans la bande ν_1 , en rose : spectre ajusté pour ν_3 , en vert : résidu, en noir : différence entre le spectre observé et un spectre calculé pour la même climatologie mais sans SO_2 , et en rouge : région non ajustée.

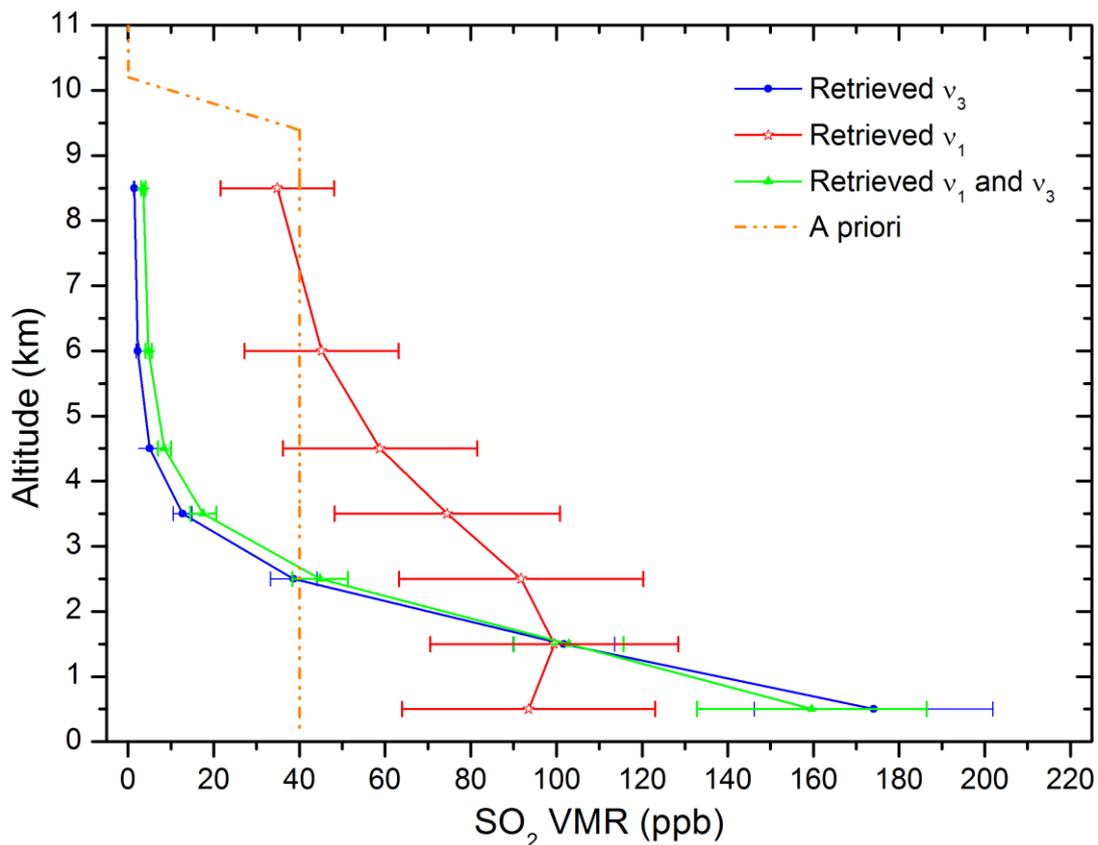


Figure 3.9 : Profils verticaux restitués du SO_2 en rapport de mélange (ppb). Chaque point du profil correspond aux colonnes partielles ajustées pour les couches définies, divisées par les colonnes partielles d'air. Les erreurs statistiques (1σ) sont indiquées pour chaque point. L'a priori utilisé est représenté en traits pointillés orangés.

sans discrétisation verticale. Dans le cas de l'inversion utilisant la bande ν_3 (figure 3.10a), les noyaux moyens pour les trois premières colonnes sont similaires, mais par contre différents de ceux obtenus pour les colonnes partielles supérieures, et en particulier pour la colonne 4-5 km. Ce résultat tend à montrer que le spectre de radiance dans ν_3 contient (dans des situations de contraste thermique suffisamment favorables) une information différenciée sur les concentrations dans les basses couches (typiquement la CLA) et dans la troposphère libre au-delà de 3 km. La meilleure sensibilité au profil vertical du SO_2 dans ν_3 permet d'expliquer la différence dans les profils restitués (figure 3.9), et en particulier la dilution des concentrations sur la hauteur troposphérique lorsque l'inversion se base uniquement sur l'information disponible dans ν_1 (profil rouge dans la figure 3.9). Enfin, les noyaux moyens de l'ajustement simultané sont presque identiques à ceux de l'ajustement de la bande ν_3 . L'ajout de la bande ν_1 dans l'ajustement n'apporte donc pas une information supplémentaire significative dans la restitution du profil de SO_2 . Elle ne sera pas utilisée dans la suite ; la totalité des inversions utilisera l'information disponible dans la bande ν_3 .

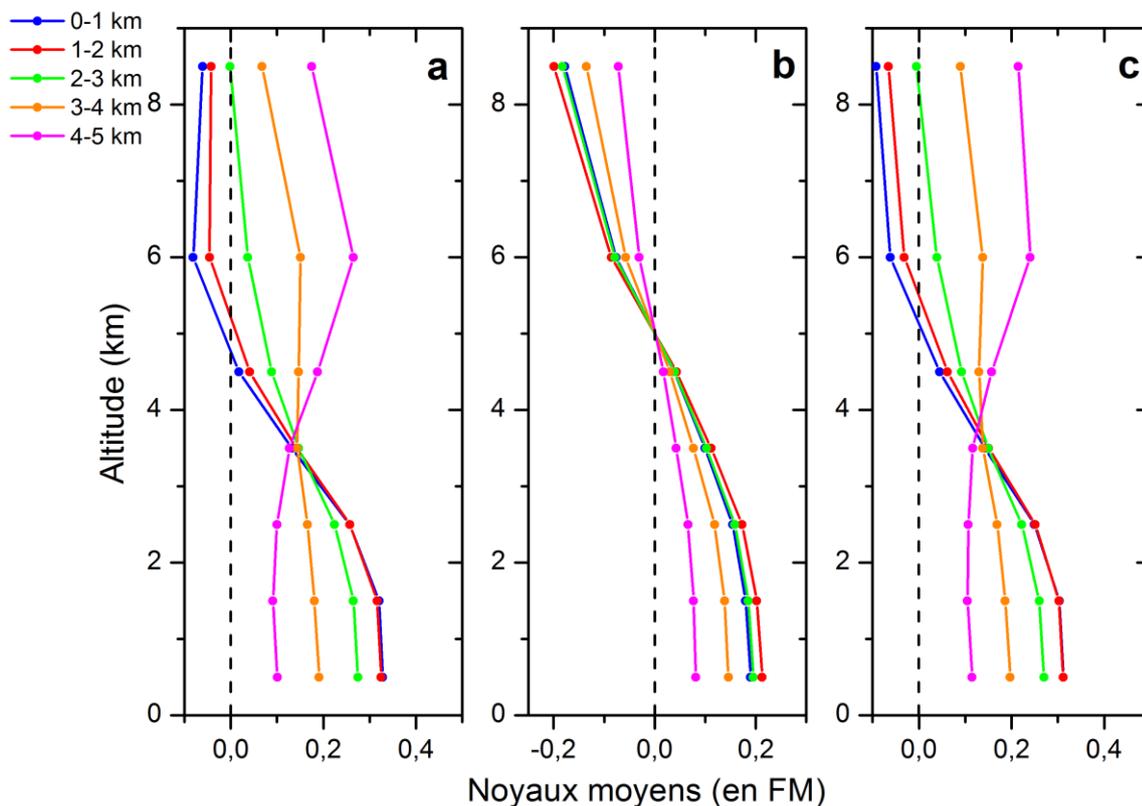


Figure 3.10 : Noyaux moyens (en facteurs multiplicatifs) pour les trois ajustements : (a) bande ν_3 , (b) bande ν_1 et (c) bandes ν_3 et ν_1 . Ils sont représentés pour les 5 premières couches.

3 Conclusions

Les résultats obtenus et décrits dans ce chapitre démontrent que la mesure du SO_2 dans la CLA de Norilsk par IASI (et, par extension, par tout instrument similaire opérant au nadir dans l'IR thermique) est possible, contrairement à ce qui était considéré jusqu'à présent dans la communauté scientifique. Ce résultat est important en ce sens qu'il renforce le potentiel du sondage depuis l'espace pour l'étude et le suivi de la pollution dans les basses couches et, plus spécifiquement, pour le cas des régions situées à hautes latitudes qui nous concernent.

Nos résultats soulignent cependant que les mesures de la pollution en SO_2 ne sont possibles que lorsque les conditions géophysiques suivantes sont réunies :

- Un faible taux d'humidité, qui rend l'atmosphère partiellement transparente dans les basses couches, en particulier dans la région spectrale de la bande ν_3 du SO_2
- Un contraste thermique significatif, positif ou négatif.

Ils soulignent par ailleurs la sensibilité nettement supérieure dans la région de la bande ν_3 du SO_2 , la bande ν_1 n'étant détectable (faiblement) que dans des situations plus rares de contrastes thermiques supérieurs à 10° en valeur absolue.

Cependant, il est important de noter que l'utilisation de la bande ν_3 seule dans l'inversion des spectres IASI restreint l'étude de la région à l'hiver, l'humidité rendant la CLA opaque en été dans la région spectrale correspondante. La sensibilité à la pollution dans la CLA à Norilsk en hiver est par ailleurs renforcée par le fait que les contrastes thermiques y sont plus favorables qu'en été.

L'ensemble de ces résultats sont confirmés sur la figure 3.11, représentant les maximas journaliers (en valeur absolue) des différences de température de brillance (méthode détaillée au chapitre 2, sous-section 1.2) pour la région de Norilsk. Les valeurs reprises sur la figure sont les maximas sur la zone $67-71^\circ\text{N} - 87-91^\circ\text{E}$ et pour les années successives de 2009 à 2011. La figure révèle en effet que les DTB ne sont supérieures au bruit de l'instrument que durant les mois d'hiver à Norilsk, de novembre à mars, lorsque l'humidité est faible et les contrastes thermiques négatifs (inversions de température) importants. Remarquons à nouveau une différence pour l'année 2011, en particulier pour les mois de novembre et décembre, où seuls quelques jours présentent des maximas de DTB très nets. Ceci s'explique par des valeurs de contrastes thermiques plus faibles (chapitre 2, figure 2.7), dégradant la sensibilité de IASI au SO_2 de Norilsk pour cette période.

Etant donné les résultats acquis, le reste de notre étude, qui consiste en la restitution des concentrations de SO_2 , se restreint au mois d'hiver à Norilsk.

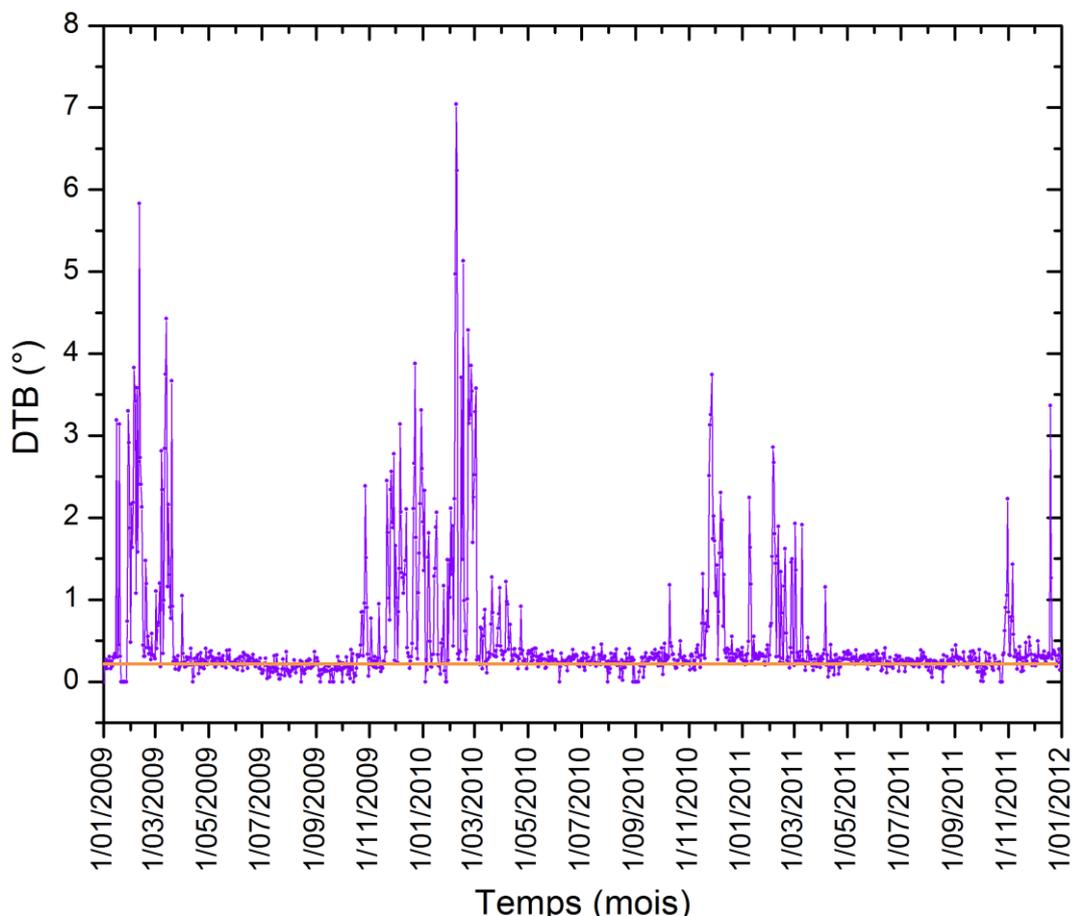


Figure 3.11 : Différences de température de brillance ($^\circ$) journalières maximales pour la période 2009-2011 et pour la région entourant Norilsk entre $67-71^\circ\text{N}$ et $87-91^\circ\text{E}$. Les différences sont données en valeurs absolues. Le trait orange représente le bruit moyen de 0.2 K de IASI.

Chapitre 4 : Mesure de la teneur en SO₂ de la CLA de Norilsk

Dans le chapitre précédent, nous avons étudié la sensibilité de l'instrument spatial IASI au SO₂ de la couche limite de Norilsk. Nous avons ainsi déterminé que la mesure de ce gaz (et donc la restitution de ses concentrations) dans cette région se limite au mois d'hiver (janvier, février, mars, novembre et décembre), caractérisés par des contrastes thermiques élevés et une atmosphère relativement sèche. Elle doit se faire à partir de l'inversion de la bande spectrale ν_3 , qui offre une sensibilité accrue aux basses couches. Ceci est réalisé au cours de ce chapitre pour une période de trois ans, de 2009 à 2011. Nous présentons tout d'abord les paramètres d'inversion dans la première section. Ensuite, nous discutons des résultats dans la seconde section. Enfin, dans la dernière section, nous comparons les résultats des inversions des spectres IASI avec ceux obtenus à partir des mesures de l'instrument OMI (*Ozone Monitoring Instrument*).

1 Paramètres d'inversion

Les inversions sont réalisées par le programme Atmosphit et sur une zone centrée sur Norilsk : 68-70°N et 87-89°E. Tous les spectres de cette zone n'ont pas été ajustés, seuls ceux satisfaisant les deux critères suivants l'ont été :

- i. la couverture nuageuse dans le pixel IASI doit être inférieure à 25%
- ii. la différence de température de brillance (calculée à partir de la méthode décrite dans le chapitre 2, sous-section 1.2.1) doit être supérieure à 0.25 K²⁵.

Comme pour l'inversion décrite en exemple dans le chapitre 3, le domaine spectral considéré s'étend de 1285 à 1400 cm⁻¹, sans tenir compte de l'intervalle 1290-1308 cm⁻¹ contenant la branche Q du CH₄ (voir figure 3.8). L'émissivité a été fixée à 0.98 (figure 3.7), celle-ci étant très peu variable sur les cinq mois étudiés [43].

Les profils de température, de pression et d'humidité utilisés sont idéalement ceux fournis par le système de distribution EUMETCast, et correspondent donc à l'endroit et à l'heure de la mesure. Seul le profil d'humidité et la température de surface ont été ajustés (détails ci-dessous), les deux autres ont été maintenus constants au cours de la procédure. Malheureusement, il est important de remarquer que les données de niveau 2 (profils température,...) de certains spectres ne sont pas disponibles. Dans ce cas, l'inversion est réalisée en utilisant des profils moyens, construits de la façon suivante :

- **Profil de température et d'humidité** : pour chaque jour, un profil moyen de température et un profil moyen d'humidité ont été calculés sur toute la zone, en considérant l'ensemble des données de niveau 2 qui y sont disponibles. Dans le cas où un profil moyen ne peut être calculé de cette façon (ex : données de niveau 2 indisponibles pour toute la zone), la moyenne des profils du jour précédent et du jour suivant a été utilisée.
- **Pression de surface** : une pression de surface moyenne a été calculée pour chaque jour sur la zone inversée.
- **Altitude du sol** : une altitude moyenne a été calculée pour la zone inversée.
- **Température de surface** : si la température de surface n'est pas disponible pour un spectre, les températures de brillance de six échantillons spectraux (857.50, 866.25,

²⁵ Cette valeur a été choisie de manière à sélectionner les spectres contenant une signature du SO₂ sortant du bruit de l'instrument.

868.50, 879.00, 892.75 et 966.00 cm^{-1}) appartenant à une fenêtre atmosphérique²⁶ ont été moyennées pour l'évaluer. Rappelons cependant que la température de surface est ajustée.

L'ajustement de tous les spectres à traiter ne convergeant pas toujours pour les mêmes paramètres d'inversion, trois étapes ont été nécessaires afin d'inverser le plus grand nombre de spectres pour lesquels la présence de SO_2 est démontrée dans les DTB : chaque étape traite les spectres divergents de l'étape précédente avec une variabilité sur les profils d' $\text{H}_2\text{O}/\text{SO}_2/\text{CH}_4$ différente. Les paramètres associés à chacune sont résumés dans le tableau 4.1 ci-dessous.

Tableau 4.1 : Paramètres d'inversion pour les trois étapes et pour la période 2009-2011 à Norilsk. Pour chaque étape, la discrétisation de l'atmosphère, l'a priori utilisé, la variabilité associée (éléments diagonaux de la matrice de covariance \mathbf{S}_α) sont indiqués.

Paramètres	Discrétisation	A priori	Variabilité
H_2O	0-10 km : 5 couches de 2 km d'épaisseur 10-20 km : 2 couches de 5 km d'épaisseur	Niveaux 2 fournis par EUMETSAT (si pas disponible, profil moyen)	1 ^{re} étape : 30% 2 ^{ème} étape : 20% 3 ^{ème} étape : 20%
CH_4	1 couche de 0 à 10 km	Profil du modèle atmosphérique subarctique hiver	1 ^{re} étape : 10% 2 ^{ème} étape : 20% 3 ^{ème} étape : 20%
SO_2	0-5 km : 5 couches d'1 km d'épaisseur 5-10km : 1 couche de 2 km (5-7 km) et 1 couche de 3 km d'épaisseur (7-10 km)	Profil du modèle atmosphérique subarctique hiver	1 ^{re} étape : 50% 2 ^{ème} étape : 40% 3 ^{ème} étape : 25%
T_s	/	Niveaux 2 fournis par EUMETSAT (si pas disponible, évaluation à partir du spectre)	1 ^{re} étape : 2% 2 ^{ème} étape : 2% 3 ^{ème} étape : 2%

Les éléments non-diagonaux de la matrice de covariance \mathbf{S}_α ont été calculés en appliquant une décroissance exponentielle aux éléments diagonaux (équation (3.3)). La hauteur d'échelle utilisée est de 7 km quelle que soit la molécule et la variabilité. Enfin, les profils des autres molécules interférentes sont tirés du modèle subarctique hiver et sont maintenus constants au cours de la procédure.

2 Résultats

Sur la période 2009-2011, 3147 spectres, non ou peu nuageux et montrant une DTB supérieure à 0.25 K, ont été inversés. Parmi ceux-ci, 2374 ajustements ont convergé (75% du total). Le détail du nombre total d'ajustements ayant convergés pour chacune des trois années est donné dans le tableau 4.2 (trois premières colonnes). Nous pouvons observer que la quantité de spectres inversés pour l'année 2011 est bien inférieure à celles des années 2009 et 2010. Ceci rejoint ce que nous avons déjà observé dans le chapitre 2 (figure 2.7) et dans le chapitre 3 (figure 3.11), à savoir un nombre plus restreint de situations où les contrastes thermiques sont favorables. Il en résulte une

²⁶ Une fenêtre atmosphérique est une région spectrale claire (voir chapitre 2, sous-section 1.2.1).

perte de la sensibilité de IASI au SO₂ de la couche limite : les valeurs de DTB calculées diminuent et un plus petit nombre de spectres remplit le critère ii mentionné ci-dessus.

Tableau 4.2 : Nombres de spectres traités et d’ajustements convergents pour chacune des trois années étudiées. Les deux dernières colonnes indiquent le nombre d’ajustements convergents et présentant un $RMS < 2 \cdot 10^{-6}$ ($W/(m^2 \text{ sr } m^{-1})$). Le RMS est calculé comme $\sqrt{\sum_i (L_i^{obs} - L_i^{ajus})^2 / N}$, où L_i^{obs} et L_i^{ajus} sont respectivement la radiance observée et la radiance ajustée pour l’échantillon spectral i , et N est le nombre total d’échantillon spectral sur lequel porte l’inversion.

Année	Nbre spectres inversés	Nbre ajustements convergents	Pourcentage de spectres convergents par rapport au total inversé	Nbre ajust. dont $RMS < 2 \times 10^{-6}$	Pourcentage ($RMS < 2 \times 10^{-6}$) par rapport au total inversé
2009	1331	1049	79%	987	74%
2010	1413	993	70%	919	65%
2011	403	332	82%	276	68%

Les erreurs statistiques (1σ) associées aux ajustements sont comprises entre 25 et 50%. Leur représentativité est sujette à question, étant donné qu’elles varient fortement avec les paramètres d’inversion.

A partir des colonnes partielles de SO₂ restituées pour chaque spectre, les séries temporelles et les distributions spatiales sont déduites pour la zone étudiée. Les sous-sections suivantes décrivent ces résultats.

2.1 Séries temporelles

Des séries temporelles journalières, mensuelles et hivernales des colonnes de SO₂²⁷, construites sur base des données convergentes, sont représentées sur les figures 4.1 et 4.2. Les colonnes sont présentées pour la première couche (0-1 km, voir tableau 4.1). Elles sont moyennées sur la zone (68-70°N, 87-89°E) et sur une période de temps choisie (jour, mois et hiver). Il est par ailleurs important de noter qu’ici, seuls les ajustements dont le RMS est inférieur à 2×10^{-6} $W/(m^2 \text{ sr } m^{-1})$ ont été considérés. Le RMS du bruit pour la région spectrale inversée étant de 5×10^{-7} $W/(m^2 \text{ sr } m^{-1})$, ce critère permet d’écarter les ajustements moins bons, susceptibles de restituer des colonnes de SO₂ erronées. Les nombres et pourcentages d’ajustements satisfaisant ce critère sont donnés pour chacune des années étudiées dans le tableau 4.2 (deux dernières colonnes). De plus, seules les mesures, pour lesquelles le TC (en valeur absolue) est supérieur à 5° et permet la mesure de concentrations jusqu’à des valeurs de 20 ppb, ont été prises en compte (tableau 3.2, chapitre 3, sous-section 1.3). Ce critère sur les contrastes thermiques a été établi afin d’éviter de biaiser les moyennes vers le bas (les colonnes de SO₂, restituées à partir des spectres ne satisfaisant pas ce critère, pouvant être nulles ou presque malgré la présence réelle du gaz²⁸). Notons que très peu de spectres inversés ont été écartés par ce critère. En particulier, nous avons vérifié que les spectres rejetés ne correspondaient pas à une DTB importante, qui serait révélatrice d’une pollution majeure.

Sur les figures 4.1 et 4.2 (points gris), nous pouvons observer une très grande variabilité des

²⁷ Notons à nouveau que le terme colonne, utilisé ici et dans la suite, fait référence au VMR moyen d’une couche donnée, calculé comme le rapport entre la colonne partielle restituée (en molécules/cm²) pour cette couche et la colonne partielle d’air correspondante.

²⁸ Rappelons qu’il est difficile de distinguer l’absence d’une signature du SO₂ due à des contrastes thermiques faibles de celle due à de faibles concentrations. Un biais vers le haut pourrait être induit par ce type de critère. Nous revenons sur ce problème dans la sous-section 2.2.

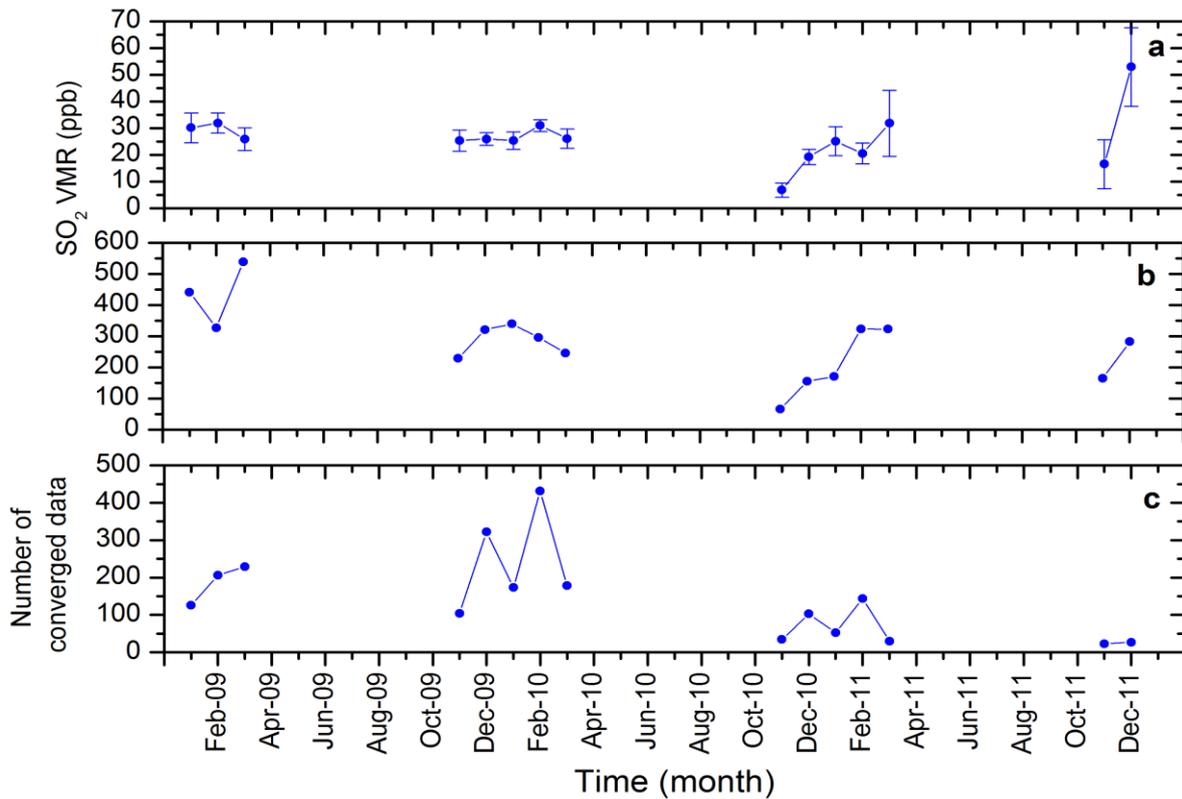


Figure 4.1 : Colonnes partielles (0-1 km) de SO₂ (en rapport de mélange, ppb) moyennes (a) et maximales (b) mensuelles, et nombres d’ajustements convergents sur un mois (c). Les barres d’erreurs indiquées dans le cas des moyennes mensuelles représentent les déviations standards sur la moyenne.

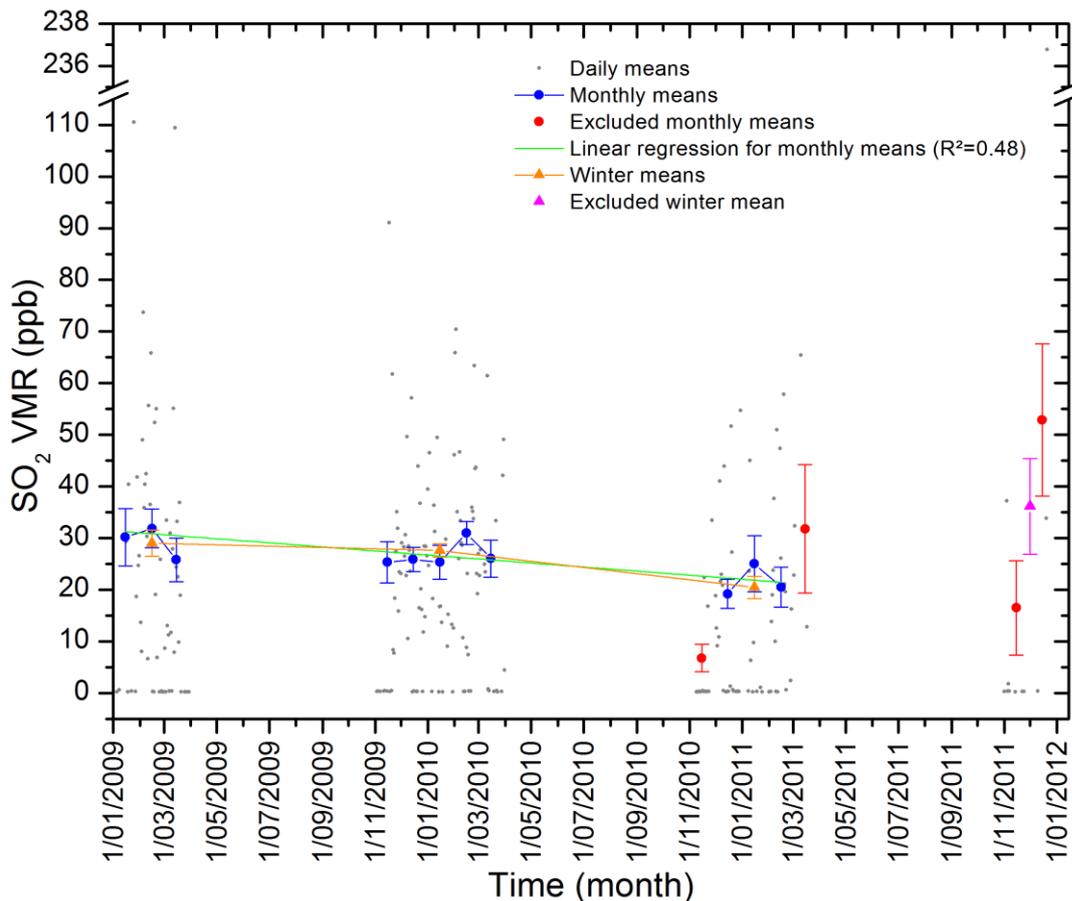


Figure 4.2 : Séries temporelles journalière (points gris), mensuelle (bleu) et hivernale (orange) du rapport de mélange de SO₂ (ppb) pour la couche 0-1 km. Les barres d’erreurs sont les déviations standards des moyennes. Les points rouges sont les moyennes mensuelles exclues de la régression linéaire réalisée et le triangle rose est la moyenne hivernale pour 2011 également exclue (détails dans le texte).

moyennes journalières, tant au niveau des colonnes restituées que de la disponibilité des données : les moyennes varient de 0 à 237 ppb, et le nombre de données accessibles varie de 0 à une cinquantaine (par jour et sur toute la zone, voir Annexe 3, section 1). Pour ces raisons, il est difficile de mettre en évidence une tendance dans l'évolution des concentrations à partir des données journalières. Nous la discutons ci-dessous sur base des moyennes mensuelles.

Les moyennes mensuelles et hivernales²⁹ des colonnes partielles (0-1 km) de SO₂, exprimées en VMR, sont présentées sur les figures 4.1 et 4.2. Celles-ci ont été calculées sur base des critères mentionnés ci-dessus. Les déviations standards associées à chacune d'elles sont également indiquées sous forme de barres d'erreurs ; elles correspondent à 1σ de déviation standard pour le mois et pour toute la zone.

Avant de discuter plus en détails les séries, remarquons que nous avons comparé les résultats obtenus pour les spectres dont les données de niveau 2 (profils de température,... section 1) étaient disponibles, et ceux obtenus à partir des spectres auxquels nous avons associé des profils de température, de pression et d'humidité moyens (Annexe 3). Nous avons ainsi vérifié que les colonnes restituées sont du même ordre de grandeur dans les deux cas, l'interprétation des résultats pouvant donc se faire sur l'ensemble des ajustements.

Les valeurs moyennes pour les colonnes sont de l'ordre de 20-30 ppb, tant pour les mensuelles que pour les hivernales. Les maximas (mensuels sur la zone considérée) sont, eux, très variables et sont compris entre 65 et 540 ppb (figure 4.1). Les déviations standards associées aux moyennes mensuelles varient entre 2 et 12 ppb (figure 4.1), tandis que celles associées aux moyennes hivernales sont comprises entre 1 et 3 ppb. Dans le cas des moyennes mensuelles, quatre points se distinguent des autres : novembre 2010 et novembre 2011, qui présentent des colonnes de SO₂ inférieures aux autres mois étudiés, mars 2011 et décembre 2011, dont les colonnes de SO₂ sont supérieures aux autres mois. Il se trouve que très peu de données sont disponibles pour ces quatre mois : moins de 35 colonnes restituées pour chacun et pour l'ensemble de la zone inversée (figure 4.1). N'étant pas certains de la représentativité de ces moyennes, nous avons choisi de les éliminer de l'analyse que nous décrivons ci-dessous. Pour la même raison, la moyenne hivernale de fin 2011, qui porte exclusivement sur ces données exclues, a également été rejetée (figure 4.2). Notons enfin que la plupart des données exclues appartiennent à l'année 2011, pour laquelle nous avons déjà observé une plus faible quantité de données répondant au critère de sélection sur la DTB (voir début de section, tableau 4.2).

Afin de mettre en évidence une éventuelle tendance dans l'évolution des colonnes de surface, une régression linéaire, pondérée par les déviations standards, a été réalisée sur les moyennes mensuelles (sans prendre en compte les données exclues) et est représentée en vert sur la figure 4.2. L'équation de la droite obtenue est $y = -0.013x + 3.2 \times 10^4$ et le coefficient de détermination R² est égal à 0.48. Malgré la faible valeur de R², nos données suggèrent une faible diminution des quantités de SO₂ à Norilsk au cours de la période allant de 2009 à 2011. Afin de déterminer si nos résultats s'inscrivent dans une tendance à plus long terme, nous avons comparé nos résultats avec ceux obtenus dans une étude antérieure fournissant des mesures dès 1991 [8]. Sur la figure 4.3 ci-dessous, nous portons les quantités de SO₂ de surface de cette étude et les comparons aux nôtres pour les dernières années. Nous pouvons ainsi remarquer que, pour la période 2009-2011 (résultats de notre travail), ces quantités sont nettement inférieures à celles des années 1990. Un facteur 2 voire plus de différence existe en effet entre elles (ex : une concentration de 220 µg/m³ est atteinte en 1996, alors qu'elle n'est que de 71 µg/m³ en 2009). Dans le chapitre 2 (sous-section 2.1), nous avons déjà mentionné qu'une politique de réduction des émissions de SO₂ par les industries de Norilsk avait été prise par la compagnie MMC Norilsk Nickel fin des années 1990. Nous avons

²⁹ Par moyenne hivernale, nous entendons une moyenne réalisée sur des mois d'hiver se succédant. On en distingue quatre sur la période étudiée : 1) janvier à mars 2009, 2) novembre 2009 à mars 2010, 3) novembre 2010 à mars 2011 et 4) novembre 2011 à décembre 2011.

également remarqué que cette réduction était difficile à mettre en évidence à partir des données existantes (qui sont également celles reprises sur la figure 4.3), étant donné la forte variabilité interannuelle des concentrations. En combinant les résultats de [8] pour les premières années 2000 avec nos données pour 2009, 2010 et 2011, la réduction semble réelle. En effet, nous calculons à partir de [8] une moyenne sur 10 ans, représentative des années 1990 (1991-2001), de $161 \mu\text{g}/\text{m}^3$ et, en combinant [8] à nos résultats, une moyenne sur 9 ans (2002-2011) de $75 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Ce résultat pourrait apporter une preuve d'une réduction effective des émissions de SO_2 par la ville. Ceci devrait cependant être confirmé par la mesure des concentrations de SO_2 pour la période 2004-2008 manquante. Enfin, il est également important de remarquer les limitations de l'analyse ci-dessus, étant donné que dans ce travail :

- i. les moyennes des concentrations sont réalisées pour une zone géographique relativement étendue autour de la ville. Ceci provoque vraisemblablement un effet de dilution par rapport aux quantités de SO_2 mesurées dans la ville même, et donc une sous-estimation de la moyenne
- ii. les moyennes annuelles réalisées portent uniquement sur les mois d'hiver, et ne tiennent donc pas compte d'éventuelles variations saisonnières.

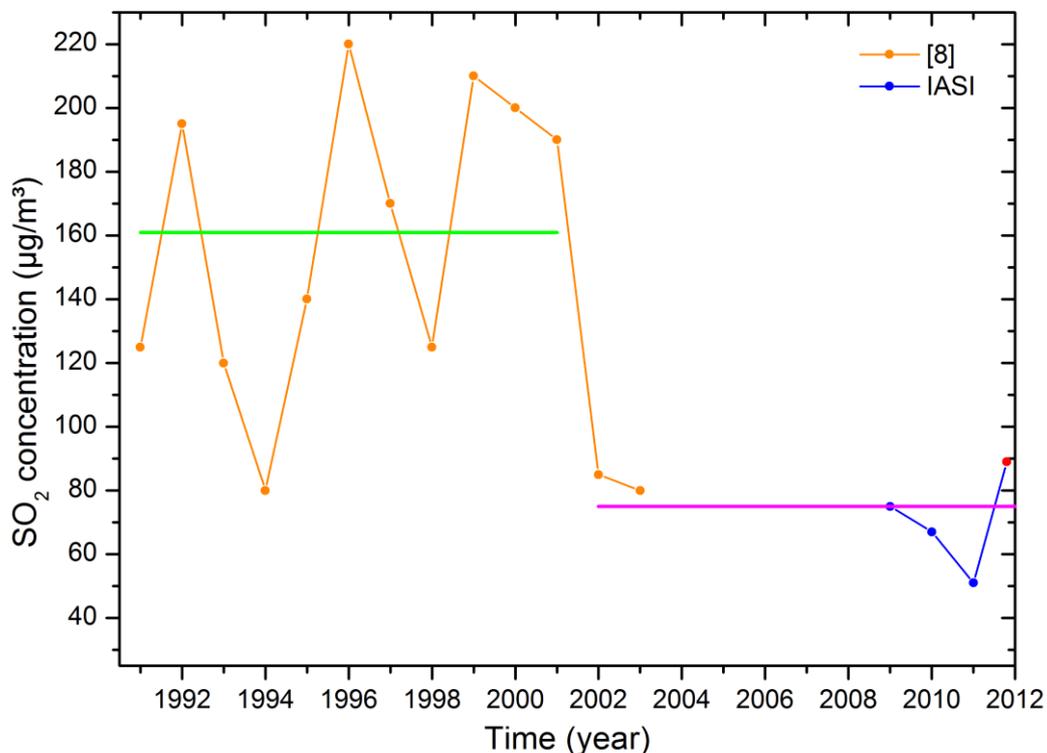


Figure 4.3 : Concentrations moyennes de SO_2 de surface à Norilsk obtenues dans l'étude [8] (orange) et dans ce travail (bleu, moyennes hivernales). Le trait vert représente la moyenne sur la période 1991-2001 égale à $161 \mu\text{g}/\text{m}^3$, et le trait rose représente la moyenne sur la période 1992-2011 égale à $75 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Le point rouge est la moyenne hivernale de fin 2011 exclue de l'analyse (voir texte).

2.2 Distribution spatiale du SO_2 autour de Norilsk

Une représentation de l'étendue du panache de pollution riche en SO_2 dans la région de Norilsk est donnée sur la figure 4.4. Cette carte a été réalisée en moyennant les colonnes partielles (0-1 km) de SO_2 restituées sur les trois ans. Il est donc important de garder à l'esprit que l'étendue observée ici n'est pas celle que l'on observerait au jour le jour et qu'elle tient notamment compte de tous les processus de transport. Afin d'éviter de biaiser les moyennes vers le haut (à cause du critère

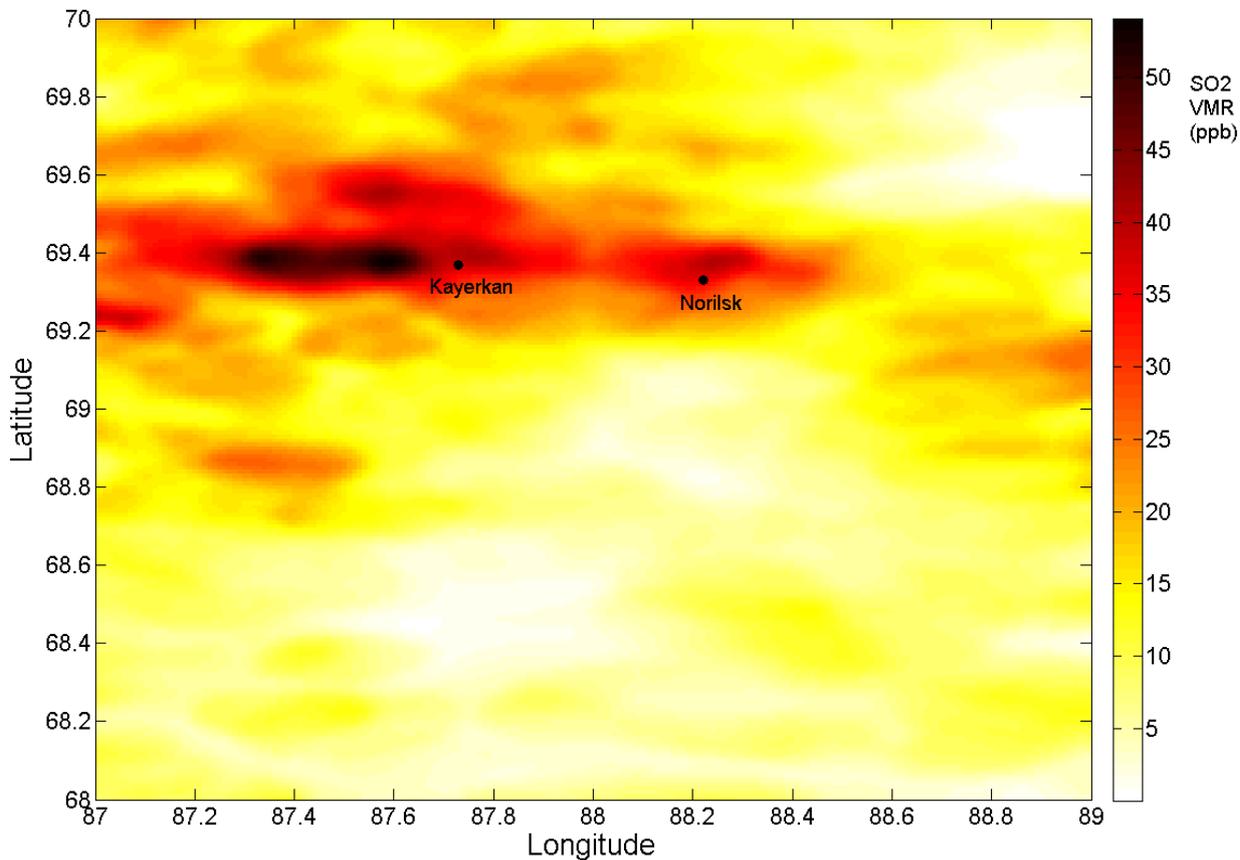


Figure 4.4 : Colonnes partielles (0-1 km) de SO₂ moyennées sur la période 2009-2011.

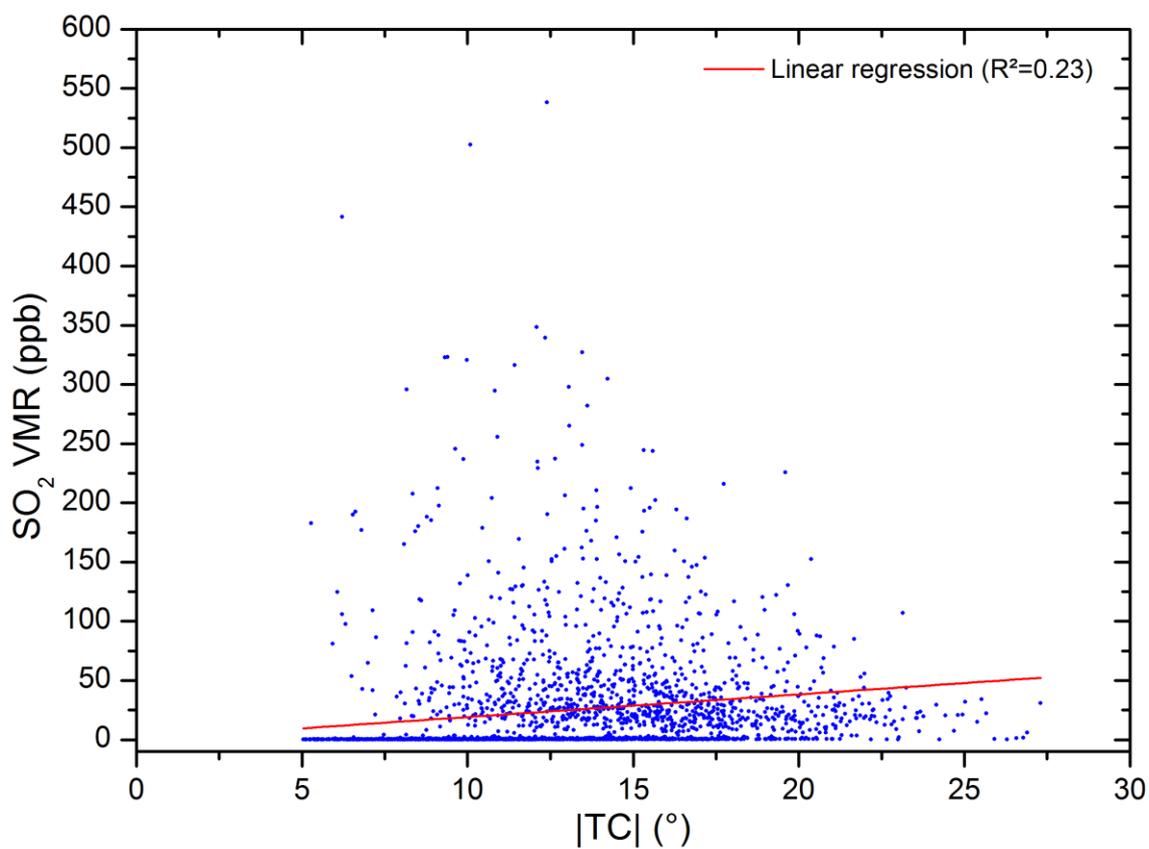


Figure 4.5 : Relation entre les colonnes partielles (0-1 km) de SO₂ et les contrastes thermiques. Une régression linéaire a été réalisée (droite rouge) et nous apprend qu'aucune relation simple relie ces deux grandeurs.

de sélection de spectres $DTB > 0.25$ K et à celui de traitement $|TC| > 5^\circ$, voir sous-section précédente), les spectres caractérisés par une $DTB < 0.25$ K et un $|TC| > 10^\circ$ ont également été pris en compte pour établir cette carte (nous avons estimé que de tels spectres ne contiennent pas de SO_2). Une colonne partielle de surface de 0.3 ppb (modèle subarctique hiver) leur a été attribuée.

La figure 4.4 montre des concentrations maximales en grande majorité autour des villes de Norilsk et de Kayerkan, où la compagnie MMC Norilsk Nickel a implanté des hauts-fourneaux dédiés notamment à l'extraction de cuivre. Le SO_2 est au contraire presque absent des zones montagneuses (Plateau du Plutorana), suggérant un transport et une chimie du SO_2 essentiellement dans la CLA. Ces résultats apportent une preuve supplémentaire de la sensibilité de IASI à la pollution de surface.

2.3 Relation entre les concentrations de SO_2 et le contraste thermique

La sensibilité de IASI au SO_2 de la couche limite étant fortement influencée par le contraste thermique, l'existence d'une relation entre les quantités de SO_2 restituées et les valeurs de TC (qui leurs sont associées) a été envisagée au cours de ce travail. Les colonnes (0-1 km) de SO_2 restituées ont été portées en fonction des valeurs de contrastes thermiques associées (figure 4.5), et une régression linéaire a été réalisée sur ces points. Le faible coefficient de détermination (R^2 est égal à 0.23) ne révèle pas de corrélation significative entre ces deux grandeurs.

3 Intercomparaison IASI - OMI

Dans le chapitre 1 (sous-section 3.1), nous avons mentionné que les sondeurs embarqués opérant dans le domaine de l'UV, du visible et du proche IR, sont connus pour leur capacité à sonder l'atmosphère jusqu'à la surface, et que certaines études ont été menées sur la mesure du SO_2 anthropique. Dans cette section, nous comparons les concentrations de SO_2 , restituées dans ce travail en utilisant IASI, à celles obtenues par l'instrument OMI afin notamment de distinguer les capacités associées à chaque type de sondeur.

3.1 L'instrument spatial OMI en bref et données utilisées

OMI (pour *Ozone Monitoring Instrument*) est un spectromètre hyperspectral proche UV-visible dont la géométrie d'observation est le nadir. Il a été lancé le 15 juillet 2004 à bord de la plateforme EOS (Earth Observing System's) Aura (NASA), et a commencé à collecter des données à partir du 9 août 2004. Son orbite polaire est synchronisée sur le Soleil et il croise l'équateur à 13h45 (heure locale). Il opère depuis une altitude de 705 km et son champ de vue correspond à un pixel de 13 x 24 km au nadir. La région spectrale couverte par l'instrument s'étend de 264 nm à 504 nm et sa résolution spectrale varie de 0.42 à 0.63 nm. Ses principaux objectifs et réalisations sont la cartographie globale des colonnes d' O_3 , la surveillance de la qualité de l'air par la mesure de polluants tels que le SO_2 et le NO_2 , et l'étude des aérosols (voir http://disc.sci.gsfc.nasa.gov/Aura/additional/documentation/README.OMI_DUG.pdf pour une description complète des données OMI).

Les données OMI utilisées ici sont celles mises à disposition par le AURA Validation Data Center (base de données <http://avdc.gsfc.nasa.gov/index.php?site=48128718&id=21>). Celles-ci consistent en des colonnes partielles de SO_2 pour la CLA exprimées en Unités Dobson (DU)³⁰, réparties sur une zone circulaire de 50 km de rayon centrée sur Norilsk, et s'étendant de 2005 à 2011. Ces colonnes ont été moyennées mensuellement et sont représentées sur la figure 4.6. Les déviations standards sur ces moyennes ont également été représentées. Les mesures des sondeurs UV étant limitées par la disponibilité du rayonnement solaire (voir chapitre 1), et étant donné que la région étudiée se trouve au-delà du cercle polaire arctique, les moyennes réalisées sont restreintes aux mois d'été (où un flux solaire significatif atteint la surface). De plus, pour des raisons de

³⁰ 1 DU = 2.69×10^{16} molécules/cm².

réflectivité, seuls les mois caractérisés par l'absence de neige au sol ont été envisagés (les données étant peu fiables au-dessus de scènes neigeuses, N. Krotkov communication personnelle).

Afin de comparer nos résultats à ceux de l'instrument OMI, les moyennes mensuelles de IASI (sous-section 2.1) ont été recalculées sur la zone définie pour les données OMI (zone de 50 km de rayon autour de Norilsk) et ont été converties en Unités Dobson. Elles sont présentées aussi sur la figure 4.6.

3.2 Comparaison IASI-OMI

Comme nous pouvons l'observer sur la figure 4.6, les mesures OMI et les mesures IASI sont temporellement complémentaires dans le cas de la région étudiée. En effet, l'instrument OMI fournit exclusivement des observations en été, alors que l'instrument IASI permet de mesurer les colonnes de SO₂ en hiver. Les moyennes mensuelles d'OMI s'étendent de 0.1 DU (août, septembre 2005 et août 2007) à 2.3 DU (août 2008), la majorité se trouvant aux alentours de 1 DU. Les moyennes mensuelles de IASI sont, elles, comprises entre 1.5 et 3.6 DU. On observe ainsi que les colonnes partielles de SO₂ restituées par OMI en été sont systématiquement plus basses que celles restituées par IASI en hiver. Ceci est cohérent avec les variations saisonnières du temps de vie du SO₂, qui n'est que d'un jour en été alors qu'il atteint 3 jours en hiver (chapitre 1, sous-section 1.2). Par conséquent, le SO₂ s'accumule moins dans la couche limite en été qu'en hiver, et les quantités de SO₂ sont donc plus faibles à cette période. Malgré ceci, il ne peut être exclu que les différences systématiques entre les colonnes inversées sur les mesures des deux instruments soient des artefacts liés, par exemple, à leurs sensibilités respectives à la CLA. Pour tester cette hypothèse, une comparaison avec un critère de co-localisation temporel plus strict devrait être réalisée. Nous abordons cette perspective au

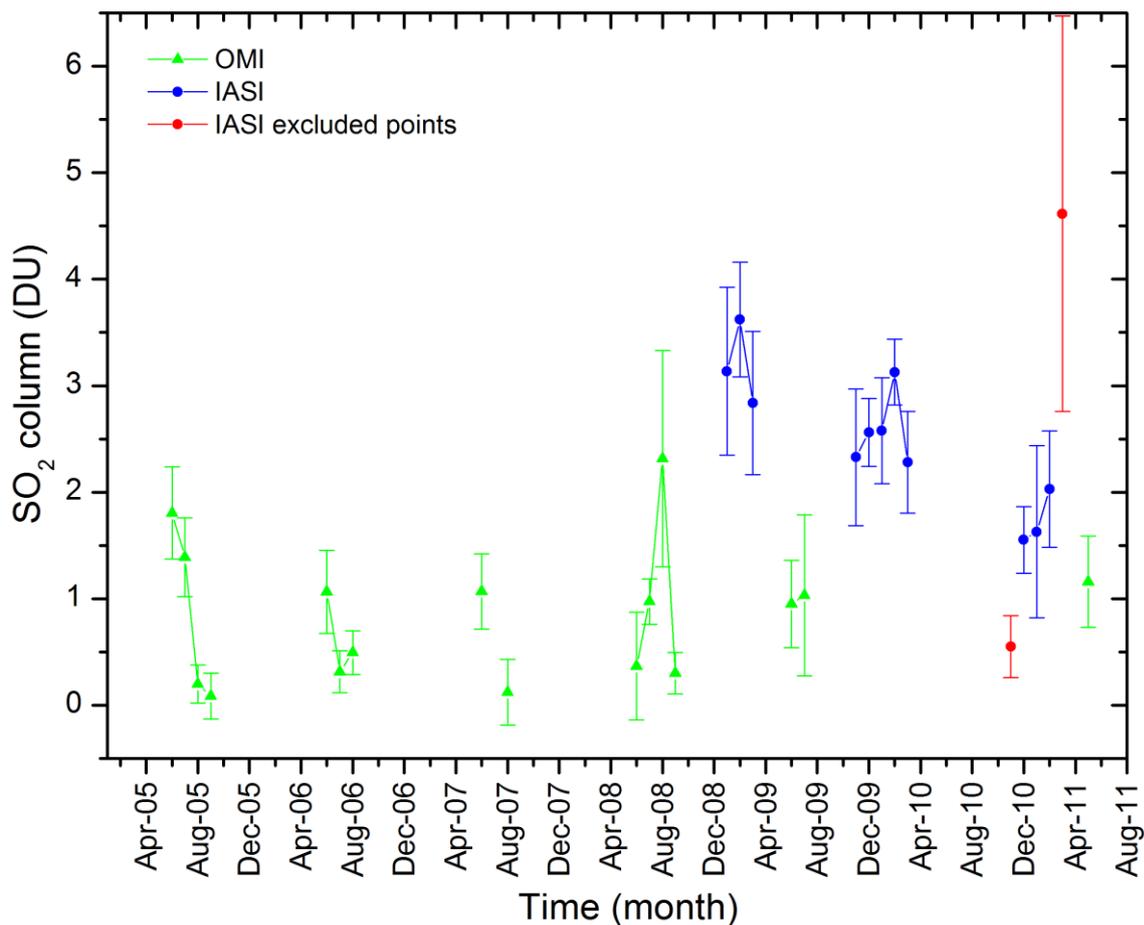


Figure 4.6 : Comparaison des colonnes partielles (CLA) de SO₂ obtenues à partir des mesures OMI et IASI en Unités Dobson (DU). En bleu, colonnes mensuelles moyennes de IASI. En vert, colonnes mensuelles moyennes d'OMI. En rouge, moyennes IASI exclues (voir section 2). Les déviations standards des moyennes sont représentées par les barres d'erreurs.

chapitre 5, en apportant des mesures IASI du SO₂ dans la CLA de Norilsk en été, grâce à une méthode plus performante.

Enfin, aucune tendance nette dans l'évolution temporelle des quantités de SO₂ ne peut être mise en évidence à partir des résultats d'OMI. La diminution observée pour la période 2009-2011 à partir des mesures IASI ne peut donc être confirmée par cet instrument. Cependant, la relative constance des quantités de SO₂, observée pour les étés de la période 2005-2011, pour autant qu'elle soit généralisable aux hivers, apporte une preuve supplémentaire d'une réduction effective des émissions de SO₂ par la ville de Norilsk depuis le début des années 2000.

Chapitre 5 : Perspectives

L'un des objectifs principaux de ce mémoire était de préciser la capacité des sondeurs, opérant dans l'infrarouge thermique, à mesurer la composition de la couche limite atmosphérique, en particulier dans les régions polluées de l'Arctique. Etant donné les résultats prometteurs décrits dans les chapitres précédents, les perspectives ouvertes par ce travail sont nombreuses. Nous donnons les principales dans ce chapitre. Dans une première section, nous présentons une extension de la méthode des DTB, décrite précédemment (chapitre 2, sous-section 1.2.1), pour la détection des espèces traces de l'atmosphère qui a été développée récemment [33]. Elle présente l'avantage d'abaisser sensiblement le seuil de détection du SO₂ dans la CLA, et nous le discutons. Dans une deuxième section, nous proposons des études complémentaires qui pourraient être envisagées sur base de l'ensemble des résultats décrits.

1 Perspectives de la méthode OEMSE

La méthode de détection des DTB, dont nous avons discuté dans le chapitre 2, a en réalité plusieurs désavantages. Premièrement, elle n'utilise pas l'ensemble de l'information présente sur le domaine spectral de IASI, mais seulement celle contenue dans un nombre très restreint d'échantillons spectraux (rappelons que seuls deux échantillons spectraux sont utilisés pour la détection du SO₂). Par conséquent, la sensibilité de cette méthode est relativement faible et son utilisation est limitée à des concentrations relativement élevées. Un deuxième inconvénient à cette méthode sont les fausses détections, dues aux variations de paramètres non-ciblés, tels que des espèces interférentes, le profil de température,...

La méthode OEMSE (pour *Optimal Estimation Method on Spectral Ensemble*) [33] utilise au contraire l'information contenue dans une multitude d'échantillons spectraux. Elle repose sur un cadre mathématique solide (voir ci-dessous), et est caractérisée par un seuil de détection considérablement amélioré par rapport à la méthode des DTB. Nous résumons cette méthode ci-dessous et présentons, dans la sous-section 1.2, les implications de celle-ci pour l'étude de la composition de la CLA.

1.1 Méthode OEMSE

Pour le cas qui nous occupe, le signal ciblé (signature du SO₂) à une fréquence ou nombre d'onde donné(e) est généralement masqué par les changements spectraux d'arrière-plan, dus à des variations des concentrations des espèces interférentes, de la température atmosphérique, de surface, ... Lors de l'inversion standard d'un spectre (ici par la méthode de l'Estimation Optimale, chapitre 1), l'ensemble de ces paramètres est ajusté avec la cible, et leurs contributions sont donc prises en compte. Le but de la méthode OEMSE est de séparer la contribution de la cible de celle des autres paramètres sans avoir à ajuster directement ceux-ci. Cette méthode est donc plus rapide qu'une inversion standard. De plus, elle se déroule en une seule étape, et se base sur une représentation plus complète de la matrice de covariance des erreurs de mesures S_{η} . La formulation mathématique de cette méthode est donnée ci-dessous.

Comme nous l'avons déjà décrit dans le chapitre 1, les mesures spectrales $\mathbf{y} \in \mathbb{R}^m$ sont liées aux paramètres atmosphériques par le modèle du transfert radiatif \mathbf{F} :

$$\mathbf{y} = \mathbf{F}(\mathbf{x}; \mathbf{b}) + \boldsymbol{\eta}_{rnd} + \boldsymbol{\eta}_{sys} \quad (5.1)$$

Où $\mathbf{x} = [x_c, off]^T$ est le vecteur état, composé de la colonne totale de l'espèce ciblée x_c et d'un décalage des températures de brillance off indépendant du nombre d'onde, \mathbf{b} représente la

meilleure connaissance des autres paramètres influençant la mesure, $\boldsymbol{\eta}_{rnd}$ est l'erreur aléatoire sur la mesure, et $\boldsymbol{\eta}_{sys}$ est l'erreur systématique sur la mesure, associée aux incertitudes sur les paramètres \mathbf{b} (remarquons que, dans le chapitre 1, nous avons considéré uniquement $\boldsymbol{\eta}_{rnd}$).

Dans la méthode OEMSE, le modèle \mathbf{F} est linéarisé par rapport à un état de référence (\mathbf{x}_0 , $\mathbf{F}(\mathbf{x}_0; \mathbf{b})$), et lorsqu'il est presque linéaire, l'estimation la plus optimale $\hat{\mathbf{x}} = [\hat{x}_c, \widehat{off}]^T$ du vecteur état \mathbf{x} peut s'écrire comme :

$$\hat{\mathbf{x}} = \mathbf{x}_0 + \left(\mathbf{K}^T \mathbf{S}_{\eta}^{tot-1} \mathbf{K} \right)^{-1} \mathbf{K}^T \mathbf{S}_{\eta}^{tot-1} (\mathbf{y} - \mathbf{F}(\mathbf{x}_0; \mathbf{b})) \quad (5.2)$$

Où $\mathbf{x}_0 = [x_{c0}, 0]^T$ est l'état de linéarisation avec x_{c0} , la colonne de référence de l'espèce, $\mathbf{K} \in \mathbb{R}^{m \times 2}$ est la matrice des Jacobiens du modèle \mathbf{F} et dont la $i^{\text{ème}}$ ligne peut s'écrire $\left[\frac{\partial y_i}{\partial x_c}, 1 \right]$, et $\mathbf{S}_{\eta}^{tot} \in \mathbb{R}^{m \times m}$ est la matrice de covariance totale des erreurs de mesures, tenant compte des erreurs $\boldsymbol{\eta}_{rnd}$ et $\boldsymbol{\eta}_{sys}$ (la matrice \mathbf{S}_{η} définie dans le chapitre 1 ne tient compte que de $\boldsymbol{\eta}_{rnd}$). La matrice des gains $\mathbf{G} \in \mathbb{R}^{2 \times m}$ peut s'écrire comme

$$\mathbf{G} = \left(\mathbf{K}^T \mathbf{S}_{\eta}^{tot-1} \mathbf{K} \right)^{-1} \mathbf{K}^T \mathbf{S}_{\eta}^{tot-1} \quad (5.3)$$

Sa première ligne comprend les poids appliqués à un spectre donné pour déterminer la présence de l'espèce ciblée. Notons également que la grandeur restituée \hat{x}_c n'est pas une colonne mais plutôt un indice dans l'espace des radiances qui permet de déterminer si l'espèce est présente en plus ou moins grande quantité.

La différence entre l'inversion standard et la méthode OEMSE (voir équation (1.8) en comparaison à l'équation (5.2)) est donc l'utilisation de la matrice de covariance totale des erreurs de mesures \mathbf{S}_{η}^{tot} . Dans le premier cas, cette matrice ne prend en effet en compte que l'erreur aléatoire de la mesure (le bruit) et est généralement quasi-diagonale. Une solution optimale ne peut alors être obtenue qu'en ajustant les paramètres interférents (et donc en augmentant la taille de \mathbf{x}). Dans le cas de la méthode OEMSE, l'inversion est également pondérée par les erreurs systématiques, associées aux incertitudes du modèle de transfert radiatif, dues notamment aux suppositions faites sur les paramètres \mathbf{b} (dont paramètres interférents). La matrice de covariance des mesures n'est plus diagonale et représente à la fois le bruit de l'instrument et la variabilité spectrale totale associée aux paramètres interférents. Ainsi, à titre d'exemple, elle comprend toute la variabilité spectrale associée aux variations de l'humidité de l'atmosphère. Une solution optimale peut être obtenue dans ce cas sans ajuster les paramètres interférents.

Par conséquent, pour que cette méthode de détection soit efficace, la matrice de covariance totale des erreurs de mesures \mathbf{S}_{η}^{tot} utilisée doit être la plus proche possible de la réalité. Dans ce travail, sa construction a été réalisée à partir d'un ensemble de spectres caractéristiques de la région étudiée (ils représentent la variabilité spectrale de cette zone), et pour lesquels le signal de l'espèce ciblée est inférieur au bruit (détails dans la sous-section suivante). La relation utilisée pour le calcul de cette matrice est

$$\mathbf{S}_{\eta}^{tot} \approx \frac{1}{N-1} \sum_{j=1}^N (\mathbf{y}_j - \bar{\mathbf{y}})(\mathbf{y}_j - \bar{\mathbf{y}})^T \quad (5.4)$$

Où N est le nombre de spectres considérés et $\bar{\mathbf{y}}$ est le spectre moyen de l'ensemble :

$$\bar{\mathbf{y}} = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N \mathbf{y}_j \quad (5.5)$$

Le spectre moyen \bar{y} est alors utilisé à la place de $F(x_0; b)$ dans l'équation (5.2), car il représente la meilleure estimation a priori des spectres de la région étudiée. Dans ce travail, l'état de linéarisation utilisé est

$$(x_0, F(x_0; b)) = (0, \bar{y}) \quad (5.6)$$

1.2 Résultats préliminaires et perspectives

Grâce à l'utilisation d'une large gamme spectrale, la méthode OEMSE accroît théoriquement la sensibilité à l'espèce cible. Son utilisation permettrait donc de détecter la présence du SO₂ dans des conditions de contraste thermique moins favorables que celles discutées dans le chapitre 3. De plus, de plus faibles quantités de gaz pourraient être observées. En incluant un plus grand nombre de canaux clairs (sous-entendu ici qui ne rendent pas l'atmosphère opaque à la couche limite), l'observation de la bande ν_3 du SO₂ devrait également être possible dans des conditions plus humides, comme par exemple en été. Enfin, d'un point de vue pratique, la méthode ne nécessitant pas de procédure d'itération, elle est rapide et ne pose pas de problème de divergence dans les ajustements. Un plus grand nombre de données pourrait ainsi être recueilli, ce qui résoudrait en partie les problèmes de moyennes non représentatives, rencontrés en partie pour l'année 2011 (chapitre 4, section 2). Le principal désavantage de la méthode OEMSE provient de ce que la grandeur restituée \hat{x}_c n'est qu'un indice, caractérisant l'amplitude du signal spectral due à l'espèce cible. L'obtention des concentrations nécessite donc l'établissement de tables de conversion, reliant les valeurs des \hat{x}_c restituées aux vraies colonnes de SO₂, par la réalisation d'un grand nombre de simulations de transfert radiatif (les quantités de SO₂ sont modulées et les valeurs de \hat{x}_c sont calculées) ou d'inversions. Il est important de remarquer que les valeurs de \hat{x}_c dépendent également du contraste thermique, voire même de la concentration en vapeur d'eau. Dans le cas où la conversion fait appel au transfert radiatif, les tables doivent donc également tenir compte de ces deux paramètres.

Sur base des propositions faites ci-dessus, de premiers résultats ont été obtenus. Des matrices S_{η}^{tot} distinctes ont été construites sur base de l'équation (5.4) séparément pour l'été et pour l'hiver à Norilsk. Le tableau 5.1 ci-dessous donne le nombre de spectres et identifie les zones et périodes qui ont servi à son établissement. Les zones sont par ailleurs indiquées par des rectangles roses sur la carte reprise sur la figure 5.2.

Tableau 5.1 : Construction des matrices S_{η}^{tot} pour l'été et pour l'hiver à Norilsk. Le nombre de spectres utilisé, la zone et la période, sur lesquelles ont été sélectionnés les spectres, sont indiqués.

Saison	Nbre de spectres	Zones	Périodes
Hiver	70161	74-75°N, 80-90°E 65-66°N, 80-90°E	01/09, 02/09, 03/09, 11/09 et 12/09
Été	44425	74-75°N, 80-90°E 65-66°N, 80-90°E	06/09, 07/09 et 08/09

Les matrices des Jacobiens K , associées à chaque saison, sont conçues sur base de simulations de transfert radiatif³¹. A partir de l'équation (5.2), les indices \hat{x}_c sont calculés. Ces indices sont finalement portés en fonction des colonnes de SO₂ restituées par la méthode d'Estimation Optimale standard (résultats décrits au chapitre 4). Remarquons que les données, présentant des valeurs de \hat{x}_c

³¹ Un spectre ne contenant pas de SO₂ et un spectre contenant 10 ppb de SO₂ dans la couche 0-1 km (atmosphère de 60 km discrétisée en couches d'un km d'épaisseur) ont été simulés. Pour l'hiver : TC=-10° et profils tirés du modèle subarctique hiver. Pour l'été : TC=10° et profils tirés du modèle subarctique été. Les matrices K sont obtenues en soustrayant les deux spectres.

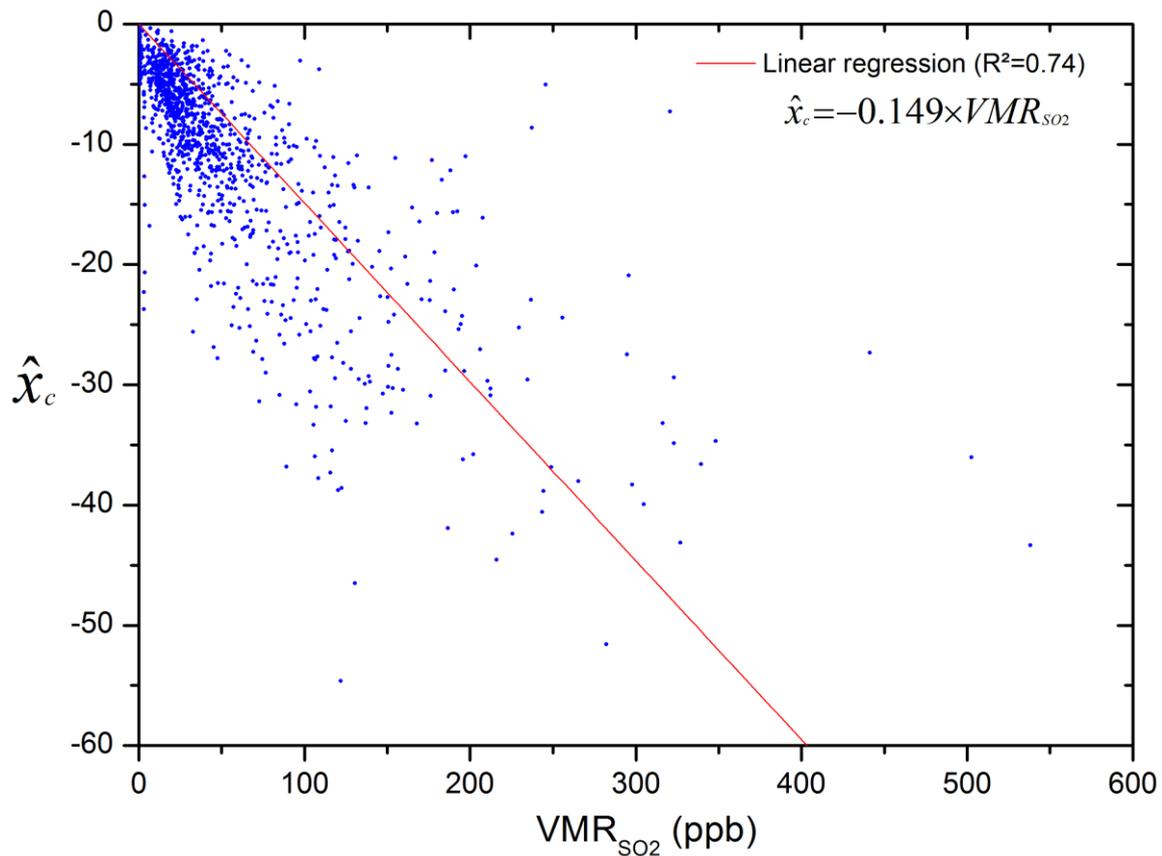


Figure 5.1 : Relation entre $\hat{\chi}_c$ et le VMR de SO_2 . La droite rouge correspond à la régression linéaire entre les points.

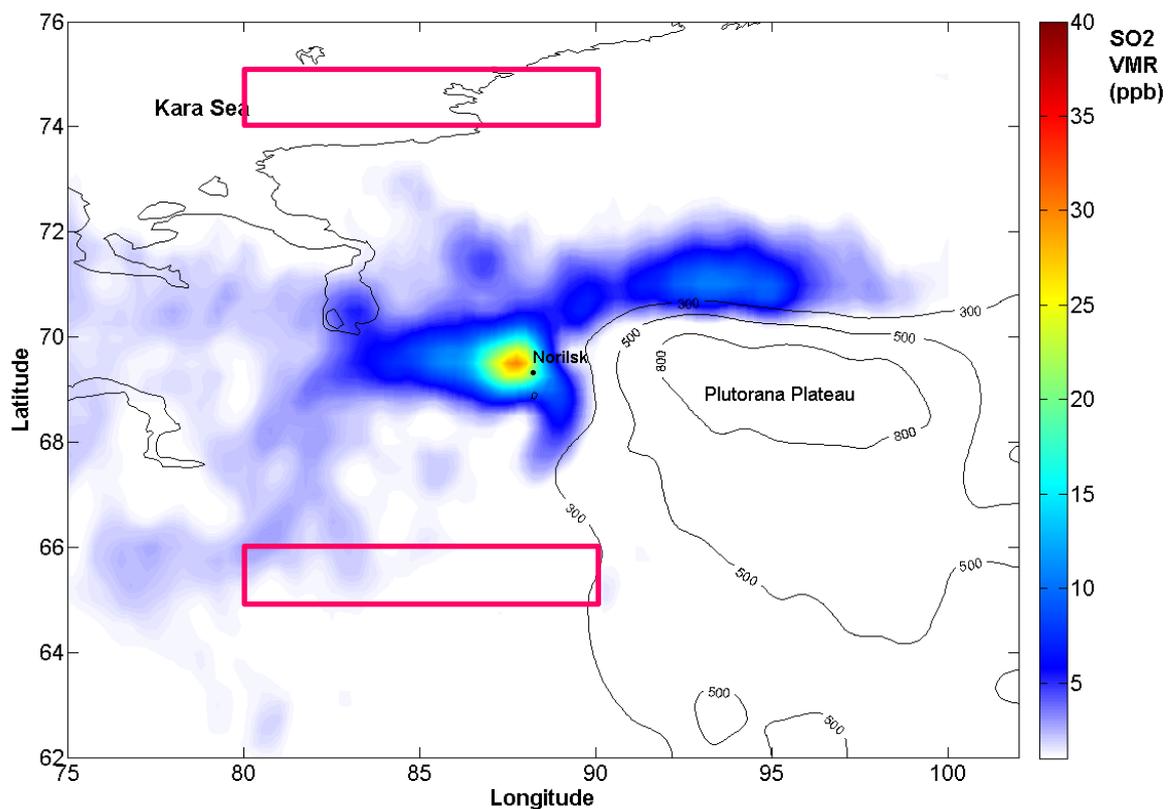


Figure 5.2 : Colonnes moyennes de SO_2 (en rapport de mélange, ppb) pour le mois de février 2009, obtenues à l'aide de l'équation (5.7). Les valeurs de $\hat{\chi}_c$ ont tout d'abord été calculées et moyennées, avant d'être converties en VMR. Notons que le nuage de gaz longe le relief. Les rectangles roses représentent les zones où les spectres ont été sélectionnés pour construire la matrice S_{η}^{tot} . La figure est à mettre en parallèle avec la figure 4.4, obtenue en moyennant trois années d'inversion par la méthode d'Estimation Optimale standard.

excessivement grandes par rapport aux colonnes de SO₂, ont été rejetées³². Les résultats sont repris sur la figure 5.1. Une régression linéaire a été réalisée sur les données conservées, et une relation préliminaire entre les \hat{x}_c et les colonnes de SO₂ a ainsi été obtenue avec un degré de corrélation significatif ($R^2 = 0.74$) :

$$\hat{x}_c = -0.149 \times VMR_{SO_2} \quad (5.7)$$

Où VMR_{SO_2} est le rapport de mélange du SO₂ associé à la couche 0-1 km.

Sur base de cette relation, les colonnes moyennes de SO₂ pour le mois de février 2009 ont été évaluées à titre d'exemple, en considérant cette fois tous les spectres IASI, et sont représentées sur la figure 5.2, laquelle peut être comparée à la figure 4.4 obtenue en moyennant les colonnes restituées sur trois années. Cette comparaison souligne clairement les avantages apportés par la méthode OEMSE. Premièrement, la distribution géographique du SO₂ n'a pas nécessité d'inverser l'ensemble des spectres de la zone (60-75°N, 75-100°E) pour l'entièreté du mois de février, ce qui aurait pris un temps considérable (rappelons que la représentation donnée sur la figure 4.4 dans le chapitre 4 est limitée à la zone 68-70°N, 87-89°E). Deuxièmement, et c'est là le résultat déterminant, cette représentation n'a pas nécessité de moyennner trois ans de mesures (cas pour la figure 4.4), démontrant la sensibilité accrue obtenue. Grâce à ces deux avantages, la méthode pourrait être utilisée pour effectuer un suivi du gaz quotidien et en temps presque réel (en étendue et en quantités), et ainsi être appliquée dans les études de qualité de l'air de la ville.

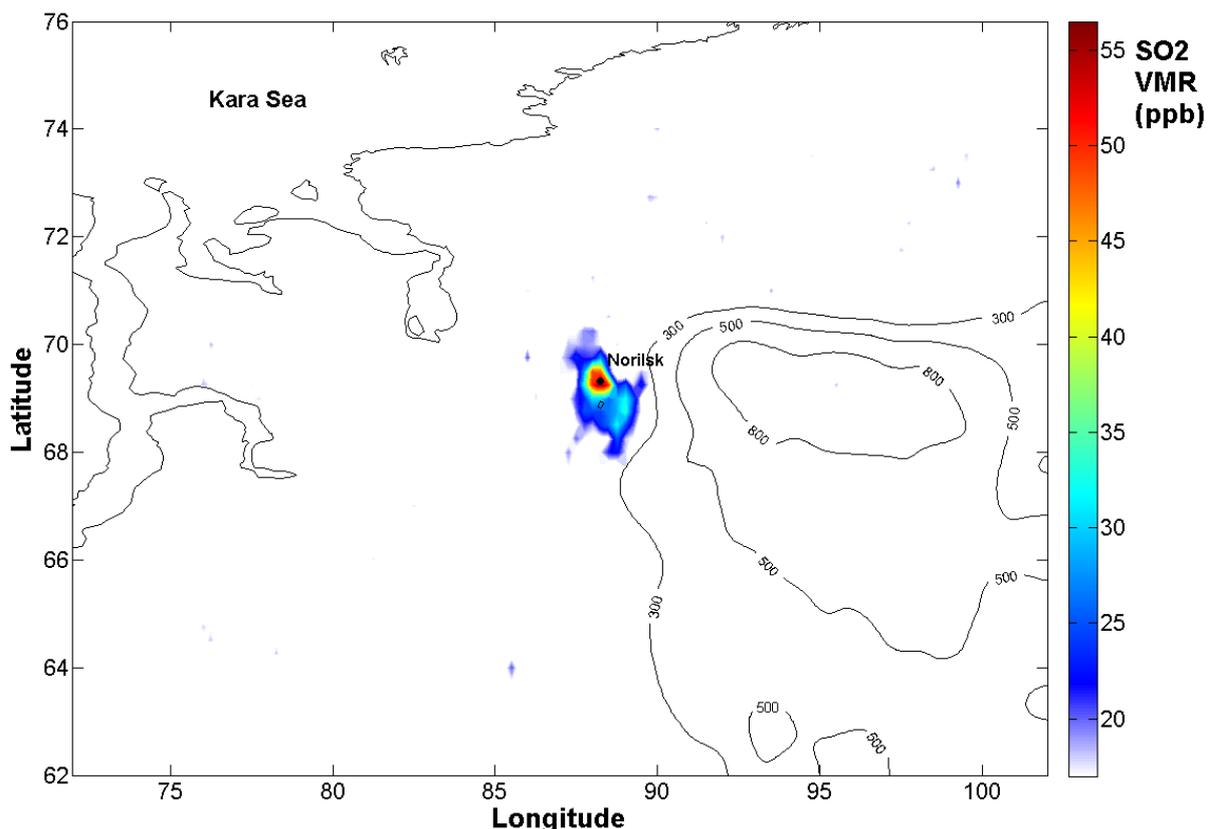


Figure 5.3 : Colonnes moyennes de SO₂ (en rapport de mélange, ppb) pour la période de mai 2010 à août 2010, obtenues à l'aide de l'équation (5.7). Les valeurs de \hat{x}_c ont tout d'abord été calculées et moyennées, avant d'être converties en VMR.

³² Si $\hat{x}_c < -5$ pour une colonne < 3 ppb, la donnée est rejetée. Notons que les raisons pour lesquelles ces points sont caractérisés par de très larges valeurs de \hat{x}_c mais par de très petites colonnes de SO₂ sont encore inconnues. Par conséquent, le critère appliqué est purement arbitraire.

De la même manière, en utilisant l'équation (5.7) mais avec la matrice S_{η}^{tot} pour l'été, les colonnes moyennes de SO_2 ont également été calculées pour la période de mai 2010 à août 2010. Elles sont représentées sur la figure 5.3. Nous pouvons y remarquer des concentrations significatives au-dessus de la ville mais une plus petite étendue du gaz qu'en hiver, suggérant une réactivité plus importante (cohérente avec les variations de temps de vie du SO_2 décrites précédemment). La possibilité de mesurer le SO_2 dans la CLA en été avec la méthode OEMSE est un nouveau résultat important de ce travail. Cette capacité nous permettrait de calculer les colonnes moyennes pour certains mois d'été, et donc de compléter les séries temporelles mensuelles (et annuelles) que nous avons décrites dans le chapitre 4. Nous serions alors également en mesure de comparer précisément les mesures de IASI avec celles d'OMI, et d'étudier plus en profondeur les variations saisonnières des concentrations de SO_2 . Il est important de noter que, pour calculer les colonnes moyennes estivales de SO_2 , nous devrions utiliser une équation différente de l'équation (5.7). En effet, la relation entre \hat{x}_c et VMR_{SO_2} étant dépendante de la climatologie (contrastes thermiques, humidité,...), elle devrait être différente selon la saison. Les valeurs de VMR_{SO_2} indiquées sur la figure 5.3 sont donc à prendre avec précaution. Finalement, nous mettons donc en évidence la capacité de la méthode OEMSE à détecter le SO_2 de la couche limite dans des conditions de contrastes thermiques plus faibles et d'humidité plus élevée que celles indiquées dans les chapitres précédents.

2 Autres perspectives

Outre les perspectives offertes par la méthode OEMSE, d'autres aspects du travail réalisé pourraient être étudiés plus en profondeur, certaines questions restant actuellement sans réponses. Dans cette section, nous proposons différents approfondissements possibles.

- Dans le chapitre 4, nous avons mentionné la nécessité de compléter les séries temporelles construites. La période 2004-2008 devrait notamment être incluse, afin de pouvoir confirmer la réduction des émissions de SO_2 par la ville par rapport aux années 1990. Les produits de niveau 1C de IASI étant disponibles depuis juin 2007, nous serions en mesure d'inclure les années 2007, 2008 et même 2012 dans nos séries temporelles. Ceci pourrait être réalisé soit par une procédure d'inversion identique à celle utilisée dans ce travail (chapitre 4), soit en utilisant la méthode OEMSE, qui permettrait de prendre également en compte les mois d'été.
- Dans ce travail, les colonnes partielles moyennes de SO_2 ont été calculées sur une région étendue autour de Norilsk (68-70°N, 87-89°E). Une dilution des quantités propres à la ville elle-même est par conséquent probable. La présence d'un tel effet doit être investigué, notamment en réduisant la zone prise en compte, et/ou en comparant nos résultats avec des mesures solaires réalisées dans la ville pour la même période étudiée (2009-2011).
- Un autre aspect à approfondir est la mise en évidence et la quantification (éventuelle) du biais qui pourrait être induit par les critères de sélection des spectres à inverser ($DTB > 0.25$ K) et à traiter ($|TC| > 5^\circ$). Ceci pourrait être réalisé par l'inversion de spectres simulés à l'aide du transfert radiatif (les quantités de SO_2 restituées peuvent être comparées à celles fixées lors de la simulation). En modulant les conditions de contrastes thermiques et les concentrations de SO_2 , nous serions alors capables de quantifier ce biais éventuel. Nous aurions également une base solide pour construire un critère de sélection plus objectif. Notons enfin que la méthode OEMSE, grâce à sa limite de détection très basse, pourrait intervenir dans ce critère de sélection.
- Dans le chapitre 3, nous avons mis en évidence la forte influence de la vapeur d'eau sur l'observation d'un signal provenant de la couche limite dans la bande ν_3 du SO_2 , sans cependant la quantifier. Une analyse détaillée nous permettrait de compléter l'étude de la sensibilité de IASI au SO_2 de la CLA, décrite dans le chapitre 3. Ceci pourrait être réalisé par des simulations de transfert radiatif similaires à celles du chapitre 3 : la valeur de

contraste thermique serait maintenue fixe tandis que la concentration en vapeur de d'eau de la CLA serait modulée. En faisant de même pour différents contrastes thermiques et pour différentes concentrations de SO₂, des tables de sensibilité pourraient être établies. Enfin, grâce à cet examen, l'influence de la vapeur d'eau pourrait également être incluse dans l'établissement du critère de sélection des spectres à inverser, discuté dans le point précédent.

- Finalement, ce travail s'est concentré sur la mesure de la concentration d'un polluant de la couche limite et sur une région particulière du globe. Etant donné les résultats particulièrement prometteurs obtenus, l'étude réalisée pourrait être étendue à d'autres espèces (CO, O₃,..., voir notamment Annexe 2) et à d'autres régions de la planète (mégapoles,...). Enfin, plus généralement encore et moyennant un travail plus conséquent, les conditions d'observation de la pollution (molécules, zones, contrastes thermiques,...) par les instruments de type infrarouge thermique pourraient être établies.

Conclusions générales

L'étude de la composition chimique de la couche limite atmosphérique est primordiale pour quantifier les émissions de polluants et pour comprendre l'impact que ces espèces ont sur l'environnement et la santé humaine. Jusqu'à présent considérés inadéquats pour le sondage de cette couche, les sondeurs TIR révèlent dans ce travail leur capacité à en mesurer la composition dans des situations de contrastes thermiques élevés. La première exploitation des observations prises dans des conditions de contrastes thermiques hautement négatifs par l'instrument spatial IASI a été réalisée au cours de ce travail pour y parvenir. Les inversions de températures persistantes, caractéristiques des régions situées au-delà du cercle polaire arctique, ont été mises à profit, et plus particulièrement celles se développant à Norilsk. Ceci a permis de procéder aux premières identifications et quantifications, par sondeur TIR, d'une importante source anthropique de SO₂, due à l'industrie de l'extraction de métaux lourds implantée dans la région.

Une analyse plus approfondie de la sensibilité de l'instrument IASI au SO₂ de la CLA a révélé que la bande vibrationnelle ν_3 de ce gaz est détectable à partir de contrastes thermiques (en valeur absolue) supérieurs à 1°, pour des cas de forte pollution (100 ppb) et de faible humidité. La forte influence de la vapeur d'eau dans l'observation de cette bande a également été mise en évidence, sans être cependant investiguée en détail. Nos analyses montrent en revanche que la bande vibrationnelle ν_1 , plus faible mais située dans une région spectrale moins affectée par la vapeur d'eau, est plus difficilement détectable. Elle nécessite des niveaux de pollution plus élevés (200 ppb) et/ou des contrastes thermiques supérieurs à 15° en valeur absolue. Il a également été montré que la restitution du profil vertical de SO₂ doit être préférentiellement réalisée à partir de l'inversion de la bande ν_3 , celle réalisée à partir de la bande ν_1 ne permettant pas d'obtenir une sensibilité suffisante dans la CLA par rapport au reste du profil.

Sur base de ces résultats, les colonnes de surface du SO₂ à Norilsk ont été restituées sur la période 2009-2011 et uniquement pour les mois d'hiver (novembre à mars). Des rapports de mélange mensuels moyens de l'ordre de 20-30 ppb ont ainsi été reportés, et des maximas atteignant 500 ppb ont été révélés. Une diminution des concentrations de SO₂ sur la période étudiée a également été mise en évidence, et va dans le sens d'une réduction des émissions de la ville par rapport aux années 1990. La complémentarité des sondeurs UV et TIR est, de plus, pleinement illustrée par la comparaison de leurs mesures respectives : l'instrument OMI, limité par la disponibilité du rayonnement solaire, fournit les colonnes de surface estivales du SO₂ tandis que IASI, limité par le contraste thermique et l'humidité, restitue les hivernales.

Dans le dernier chapitre, nous montrons que les résultats peuvent encore être améliorés considérablement en ayant recours à une méthode originale (OEMSE), reposant sur l'Estimation Optimale mais utilisant mieux le caractère hyperspectral de l'instrument pour abaisser le seuil de détection du SO₂. Par cette méthode, des quantités plus faibles (VMR inférieurs à 20 ppb) et sous des conditions de contraste thermique moins favorables (de l'ordre de 3°) peuvent être mesurées. Ceci permet non seulement de réaliser des mesures presque quotidiennement pendant les mois d'hiver, mais également pendant certaines journées d'été, laissant entrevoir une application pour le suivi de la qualité de l'air. La complémentarité avec les instruments UV-visible se voit également améliorée.

Bien que les objectifs fixés au début de ce travail aient été remplis, certaines questions restent ouvertes et stimulent, par conséquent, des études complémentaires. Un examen approfondi du biais, éventuellement engendré par les critères de sélection des spectres à inverser, doit notamment être entrepris, et une validation précise des colonnes restituées (et des tendances temporelles) devrait impérativement être faite. De plus, l'étude réalisée dans ce travail a principalement porté sur l'influence du contraste thermique sur la capacité de IASI à mesurer un

signal provenant du SO₂ de la couche limite. L'investigation de l'impact de la vapeur d'eau sur la sensibilité de l'instrument à ce gaz devra également être étudiée.

Bibliographie

- [1] Crutzen P.J., and Stroemer E.F., 2000, The “Anthropocene”, *Global Change Newsletter*, 41, 17-18.
- [2] Laj P., Klausen J., Bilde M., Plaß-Duelmer C., Pappalardo G., Clerbaux C., Baltensperger U., Hjorth J., Simpson D., Reimann S., Coheur P.-F., Richter A., De Mazière M., Rudich Y., McFiggans G., Torseth K., Wiedensohler A., Morin S., Schulz M., Allan J. D., Attié J.-L., Barnes I., Birmili W., Cammas J. P., Dommen J., Dorn H.-P., Fowler D., Fuzzi S., Glasius M., Granier C., Hermann M., Isaksen I. S. A., Kinne S., Koren I., Madonna F., Maione M., Massling A., Moehler O., Mona L., Monks P. S., Müller D., Müller T., Orphal J., Peuch V.-H., Stratmann F., Tanré D., Tyndall G., Abo Riziq A., Van Roozendaal M., Villani P., Wehner B., Wex H., and Zardini A. A., 2009, Measuring atmospheric composition change, *Atmospheric Environment*, 43, 5351-5414, [doi :10.1016/j.atmosenv.2009.08.020](https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2009.08.020).
- [3] Burrows J. P., Platt U., and Borrell P. (Eds), 2011, *The Remote Sensing of Tropospheric Composition from Space*, Springer.
- [4] The European environment – State and outlook, 2005, Part A: Integrated assessment – Atmospheric environment, Air pollution and health.
- [5] Sportisse Bruno, 2008, *Pollution Atmosphérique: Des processus à la modélisation*, Springer.
- [6] Seinfeld J. H., Pandis S. N., 2006, *Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change*, Second Edition, John Wiley & Sons, Inc, Wiley Interscience.
- [7] Lee C., Martin R. V., Van Donkelaar A., Lee H., Dickerson R. R., Hains J. C., Krotkov N., Richter A., Vinnikov K., Schwab J. J., 2011, SO₂ emissions and lifetimes: Estimates from inverse modeling using in situ and global, space-based (SCIAMACHY and OMI) observations, *Journal of Geophysical Research*, 116, D06304, [doi:10.1029/2010JD014758](https://doi.org/10.1029/2010JD014758).
- [8] Arctic Monitoring and Assessment Programme, 2006, *AMAP Assessment 2006: Acidifying Pollutants, Arctic Haze, and Acidification in the Arctic*.
- [9] Petty Grant W., 2006, *A First Course in Atmospheric Radiation*, Second Edition, Sundog publishing.
- [10] 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 & Radiative Transfer*, 113 (11), 1391-1408, [doi:10.1016/j.jqsrt.2012.02.036](https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2012.02.036).
- [11] Rothman L. S., Gordon I. E., Barbe A., Chris Benner D., Bernath P. F., Birk M., Boudon V., Brown L.R., Campargue A., Champion J.-P., Chance K., Coudert L. H., Dana V., Devi V. M., Fally S., Flaud J.-M., Gamache R. R., Goldman A., Jacquemart D., Kleiner I., Lacombe N., Lafferty W. I., Mandin J.-Y., Massie S. T., Mikhailenko S. N., Miller C. E., Moazzen-Ahmadi N., Naumenko O. V., Nikitin A. V., Orphal J., Perevalov V. I., Perrin A., Predoi-Cross A., Rinsland C. P., Rotger M., Simecková M., Smith M. A. H., Sung K., Tashkun S. A., Tennyson J., Toth R. A., Vandaele A. C., and Vander Auwera J., 2009, The HITRAN 2008 molecular spectroscopic database, *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 110, 533-572, [doi:10.1016/j.jqsrt.2009.02.013](https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2009.02.013).
- [12] Rodgers C. D., 2000, *Inverse methods for atmospheric sounding: theory and practice*, World Scientific, Hackensack, N. J.
- [13] Coheur P.-F., Barret B., Turquety S., Hurtmans D., Hadji-Lazaro J., Clerbaux C., 2005, Retrieval and characterization of ozone vertical profiles from thermal infrared nadir sounder, *Journal of Geophysical Research*, 110, D24303, [doi:10.1029/2005JD005845](https://doi.org/10.1029/2005JD005845).
- [14] Pougatchev N., August T., Calbet X., Hultberg T., Oduleye O., Schlüssel P., Stiller B., Germain K. S., and Bingham G., 2009, IASI temperature and water vapor retrievals-Error assessment and validation, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 6453-6458, <http://www.atmos-chem-phys.net/9/6453/2009>.

- [15] Martin Randall V., 2008, Satellite remote sensing of surface air quality, *Atmospheric Environment*, 42, 7823-7843, doi:10.1016/J.atmosenv.2008.07.018.
- [16] Richter A., Burrows J. P., Nüß H., Granier C., and Niemeier U., 2005, Increase in tropospheric nitrogen dioxide over China observed from space, *Nature*, 437, 129-132, doi:10.1038/nature04092.
- [17] Carn S. A., Krueger A. J., Krotkov N. A., Yang K., and Levelt P. F., 2007, Sulfur dioxide emissions from Peruvian copper smelters detected by the Ozone Monitoring Instrument, *Geophysical Research Letters*, 34, L09801, doi:10.1029/2006GL029020.
- [18] Khokhar M. F., Frankenberg C., Hollwedel J., Beirle S., Kühl S., Grzegorski M., Wilms-Grabe W., Platt U., and Wagner T., Satellite remote sensing of atmospheric SO₂: Volcanic eruptions and anthropogenic emissions, 2004 Envisat & ERS Symposium.
- [19] Frankenberg C., Meirink J. F., Van Weele M., Platt U., and Wagner T., 2005, Assessing Methane Emissions from Global Space-Borne Observations, *Science*, 308, 1010-1014, doi:10.1126/science.1106644.
- [20] Bloom A. A., Palmer P. I., Fraser A., Reay D. S., and Frankenberg C., 2010, Large-Scale Controls of Methanogenesis Inferred from Methane and Gravity Spaceborne Data, *Science*, 327, 322-325, doi:10.1126/science.1175176.
- [21] Buchwitz M., Schneising O., Burrows J. P., Bovensmann H., Reuter M., and Notholt J., 2007, First direct observation of the atmospheric CO₂ year-to-year increase from space, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7, 4249-4256, www.atmos-chem-phys.net/7/4249/2007/.
- [22] Deeter M. N., Edwards D. P., Gille J. C., and Drummond J. R., 2007, Sensitivity of MOPITT observations to carbon monoxide in the lower troposphere, *Journal of Geophysical Research*, 112, D24306, doi:10.1029/2007JD008929.
- [23] Clerbaux C., Edwards D. P., Deeter M., Emmons L., Lamarque J.-F., Tie X. X., Massie S. T., and Gille J., 2008, Carbon monoxide pollution from cities and urban areas observed by the Terra/MOPITT mission, *Geophysical Research Letters*, 35, L03817, doi:10.1029/2007GL032300.
- [24] Clarisse L., Clerbaux C., Dentener F., Hurtmans D., and Coheur P.-F., 2009, Global ammonia distribution derived from infrared satellite observations, *Nature Geoscience*, 2, 479-483, doi:10.1038/NGEO551.
- [25] Clarisse L., Shephard M. W., Dentener F., Hurtmans D., Cady-Pereira K., Karagulian F., Van Damme M., Clerbaux C., and Coheur P.-F., 2010, Satellite monitoring of ammonia: A case study of the San Joaquin Valley, *Journal of Geophysical Research*, 115, D13302, doi:10.1029/2009JD013291.
- [26] Clerbaux C., Boynard A., Clarisse L., George M., Hadji-Lazaro J., Herbin H., Hurtmans D., Pommier M., Razavi A., Turquety S., Wespes C., and Coheur P.-F., 2009, Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared IASI/MetOp sounder, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 6041-6054, www.atmos-chem-phys.net/9/6041/2009/.
- [27] Hilton F., Armante R., August T., Barnett C., Bouchard A., Camy-Peyret C., Capelle V., Clarisse L., Clerbaux C., Coheur P.-F., Collard A., Crevoisier C., Dufour G., Edwards D., Faijan F., Fourrié N., Gambacorta A., Goldberg M., Guidard V., Hurtmans D., Illingworth S., Jacquinet-Husson N., Kerzenmacher T., Klaes D., Lavanant L., Masiello G., Matricardi M., McNally A., Newman S., Pavelin E., Payan S., Péquignot E., Peyridieu S., Phulpin T., Remedios J., Schlüssel P., Serio C., Strow L., Stubenrauch C., Taylor J., Tobin D., Wolf W., and Zhou D., 2012, Hyperspectral Earth Observation from IASI: five years of accomplishments, *American Meteorological Society*, 347-370, doi:10.1175/BAMS-D-11-00027.1.
- [28] Schlüssel P., Hultberg T. H., Philips P. L. T., August T., and Calbet X., 2005, The operational IASI Level 2 processor, *Advanced Space Research*, 36, 982-988, doi:10.1016/j.asr.2005.03.008.
- [29] August T., Klaes D., Schlüssel P., Hultberg T., Crapeau M., Arriaga A., O'Carroll A., Coppens D., Munro R., and Calbet X., 2012, IASI on Metop-A: Operational Level 2 retrievals after five

- years in orbit, *Journal of Quantitative Spectroscopy & Radiative Transfer*, 113, 1340-1371, doi:10.1016/j.jqsrt.2012.02.028.
- [30] Coheur P.-F., Clarisse L., Turquety S., Hurtmans D., and Clerbaux C., 2009, IASI measurements of reactive trace species in biomass burning plumes, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 5655-5667, www.atmos-chem-phys.net/9/5655/2009/.
- [31] Clarisse L., Coheur P.-F., Prata A. J., Hurtmans D., Razavi A., Phulpin T., Hadji-Lazaro J., and Clerbaux C., 2008, Tracking and quantifying volcanic SO₂ with IASI, the September 2007 eruption at Jebel at Tair, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8, 7723-7734, www.atmos-chem-phys.net/8/7723/2008/.
- [32] Karagulian F., Clarisse L., Clerbaux C., Prata A. J., Hurtmans D., and Coheur P.-F., 2010, Detection of volcanic SO₂, ash, and H₂SO₄ using the Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI), *Journal of Geophysical Research*, 115, D00L02, doi:10.1029/2009JD012786.
- [33] Walker J. C., Dudhia A., and Carboni E., 2011, An effective method for the detection of trace species demonstrated using the MetOp Infrared Atmospheric Sounding Interferometer, *Atmospheric Measurement Techniques*, 4, 1567-1580, www.atmos-meas-tech.net/4/1567/2011/.
- [34] Clarisse L., R'Honi Y., Coheur P.-F., Hurtmans D., and Clerbaux C., 2011, Thermal infrared nadir observations of 24 atmospheric gases, *Geophysical Research Letters*, 38, L10802, doi:10.1029/2011GL047271.
- [35] George M., Clerbaux C., Hurtmans D., Turquety S., Coheur P.-F., Pommier M., Hadji-Lazaro J., Edwards D. P., Worden H., Luo M., Rinsland C., and McMillan W., 2009, Carbon monoxide distributions from IASI/MetOp mission: evaluation with other space-borne remote sensors, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 8317-8330, www.atmos-chem-phys.net/9/8317/2009/.
- [36] Dufour G., Eremenko M., Orphal J., and Flaud J.-M., 2010, IASI observations of seasonal and day-to-day variations of tropospheric ozone over three highly populated areas of China: Beijing, Shanghai, and Hong Kong, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 3787-3801, www.atmos-chem-phys.net/10/3787/2010/.
- [37] Wespes C., Hurtmans D., Clerbaux C., Santee M. L., Martin R. V., and Coheur P.-F., 2009, Global distributions of nitric acid from IASI/MetOp measurements, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 7949-7962, www.atmos-chem-phys.net/9/7949/2009/.
- [38] Clarisse L., Coheur P.-F., Chefdeville S., Lacour J.-L., Hurtmans D., and Clerbaux C., 2011, Infrared satellite observations of hydrogen sulfide in the volcanic plume of the August 2008 Kasatochi eruption, *Geophysical Research Letters*, 38, L10804, doi:10.1029/2011GL047402.
- [39] Clarisse L., Fromm M., Ngadi Y., Emmons L., Clerbaux C., Hurtmans D., and Coheur P.-F., 2011, Intercontinental transport of anthropogenic sulfur dioxide and other pollutants : An infrared remote sensing case study, *Geophysical Research Letters*, 38, L19806, doi:10.1029/2011GL048976.
- [40] Clarisse L., Hurtmans D., Prata A. J., Karagulian F., Clerbaux C., De Mazière M., and Coheur P.-F., 2010, Retrieving radius, concentration, optical depth, and mass of different types of aerosols from high-resolution infrared nadir spectra, *Applied Optics*, 49 (19), 3713-3721, doi:10.1364/AO.49.003713.
- [41] Fukasawa T., Ohta S., Enomoto K., Murao N., Yamagata S., Shimizu T., Makarov V. N., and Rastegaev I., 2000, Measurement of air pollution in Norilsk, *Polar Meteorology and Glaciology*, 14, 92-102.
- [42] Anderson G.P., Clough S. A., Kneizys F. X., Chetwynd J. H., and Shettle E.P., 1986, AFGL Atmospheric Constituent Profiles (0-120 km), *Environmental Research Papers*, 954 (Air Force Geophysics Laboratory).
- [43] Zhou D. K., Larar A. M., Liu X., Smith W. L., Strow L. L., Yang P., Schlüssel P., and Calbet X., 2011, Global Land Surface Emissivity Retrieved From Satellite Ultraspectral IR Measurements,

IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing, 49 (4), 1277-1290,
[doi:10.1109/TGRS.2010.2051036](https://doi.org/10.1109/TGRS.2010.2051036).

- [44] Coheur P.-F., Clerbaux C., and Colin R., 2003, Spectroscopic measurements of halocarbons and hydrohalocarbons by satellite-borne remote sensors, *Journal of Geophysical Research*, 108 (D4), 4130, [doi:10.1029/2002JD002649](https://doi.org/10.1029/2002JD002649).

Annexes

Annexe 1: Modèles atmosphériques standards

Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre 3, sous-section 1.1, les modèles atmosphériques standards proposent différentes climatologies selon la zone géographique et la saison [42]. Ils sont au nombre de six : tropical, moyennes latitudes été et hiver, subarctiques été et hiver, US Standard 1976 (modèle global). Pour chacun de ces modèles, les profils verticaux de température, de pression et de 39 molécules sont disponibles. Ces dernières correspondent aux 39 premières molécules répertoriées dans la base de données spectroscopiques HITRAN. Ces molécules sont : H₂O, CO₂, O₃, N₂O, CO, CH₄, O₂, NO, SO₂, NO₂, NH₃, HNO₃, OH, HF, HCl, HBr, HI, ClO, OCS, H₂CO, HOCl, N₂, HCN, CH₃Cl, H₂O₂, C₂H₂, C₂H₆, PH₃, COF₂, SF₆, H₂S, HCOOH, HO₂, O, ClONO₂, NO⁺, HOBr, C₂H₄, CH₃OH. Dans les sections suivantes, nous représentons les profils verticaux de pression, de température et des molécules principales (en particulier celles qui nous ont intéressées dans ce travail) pour les cinq premiers modèles. Notons que le profil vertical du SO₂ est identique pour tous les modèles et correspond à celui de la figure 3.2 (chapitre 3).

1 Profils de pression

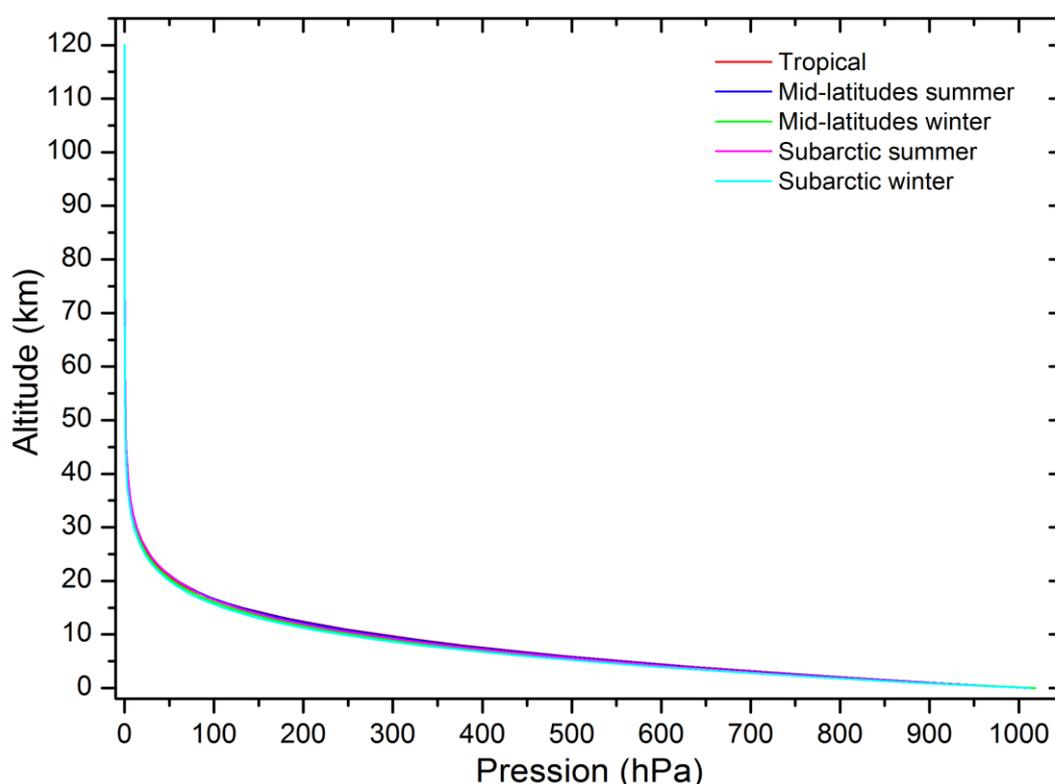


Figure A1.1 : Profils verticaux de pression (hPa) pour les cinq premiers modèles atmosphériques standards.

2 Profils de température

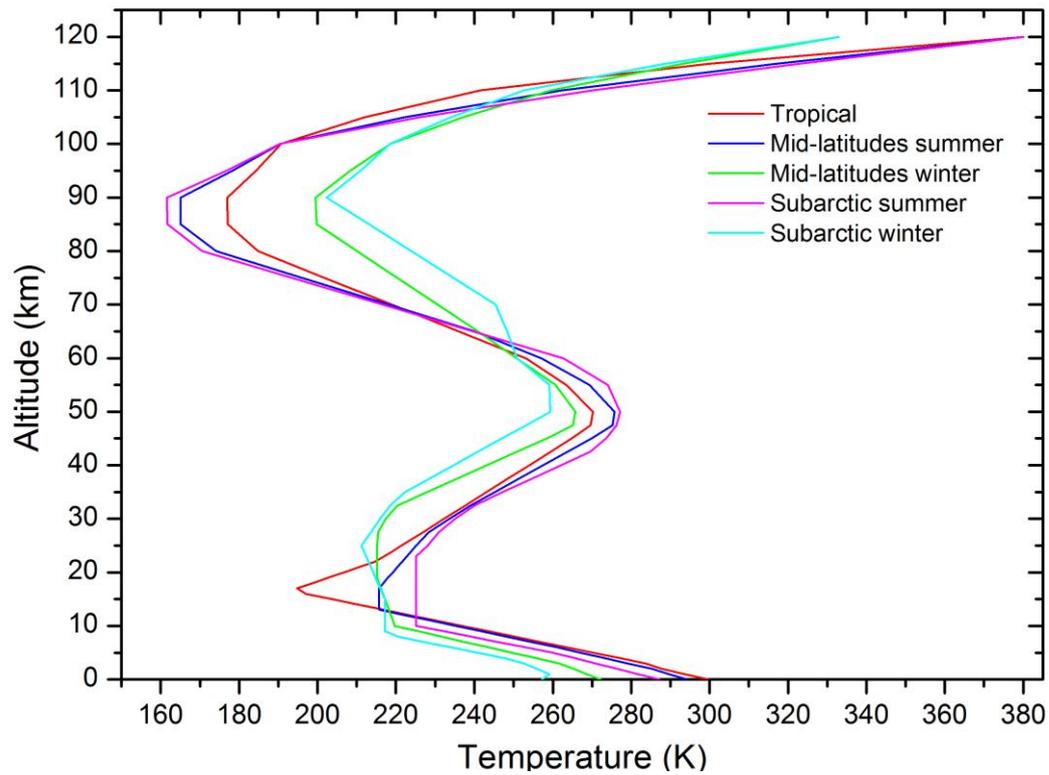


Figure A1.2 : Profils verticaux de température (K) pour les cinq premiers modèles atmosphériques standards.

3 Profils d'H₂O

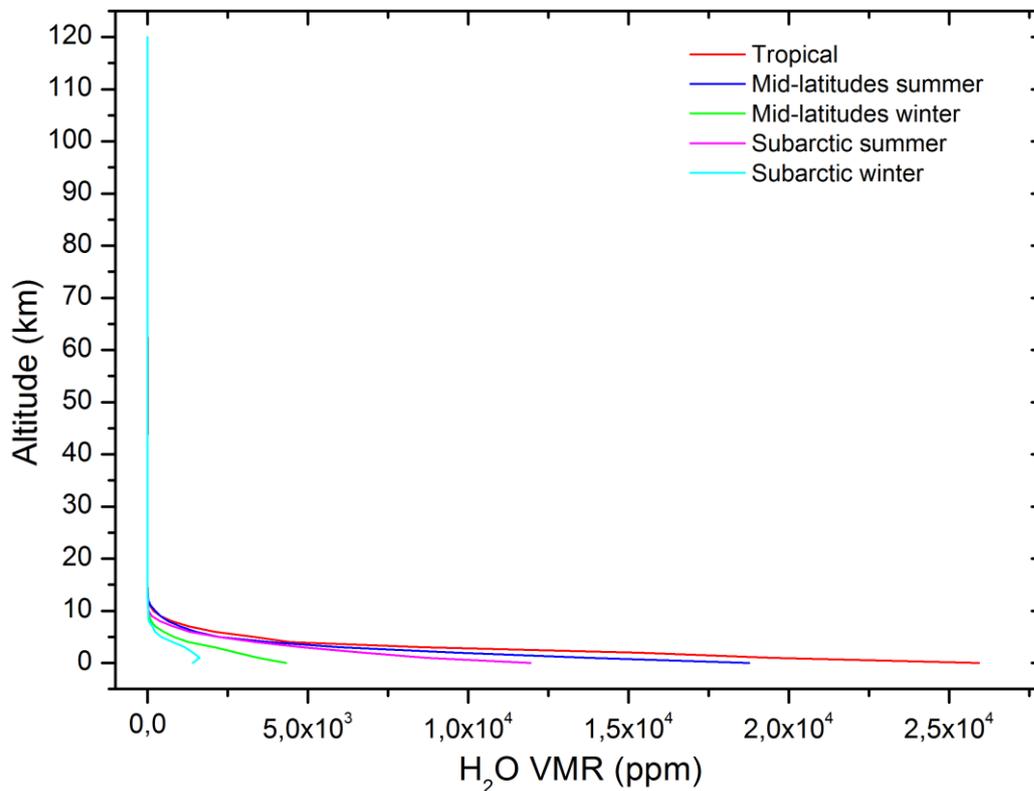


Figure A1.3 : Profils verticaux d'H₂O (ppm) pour les cinq premiers modèles atmosphériques standards. Notons la très faible humidité pour le modèle subarctique hiver (chapitre 3)

4 Profil de CO₂

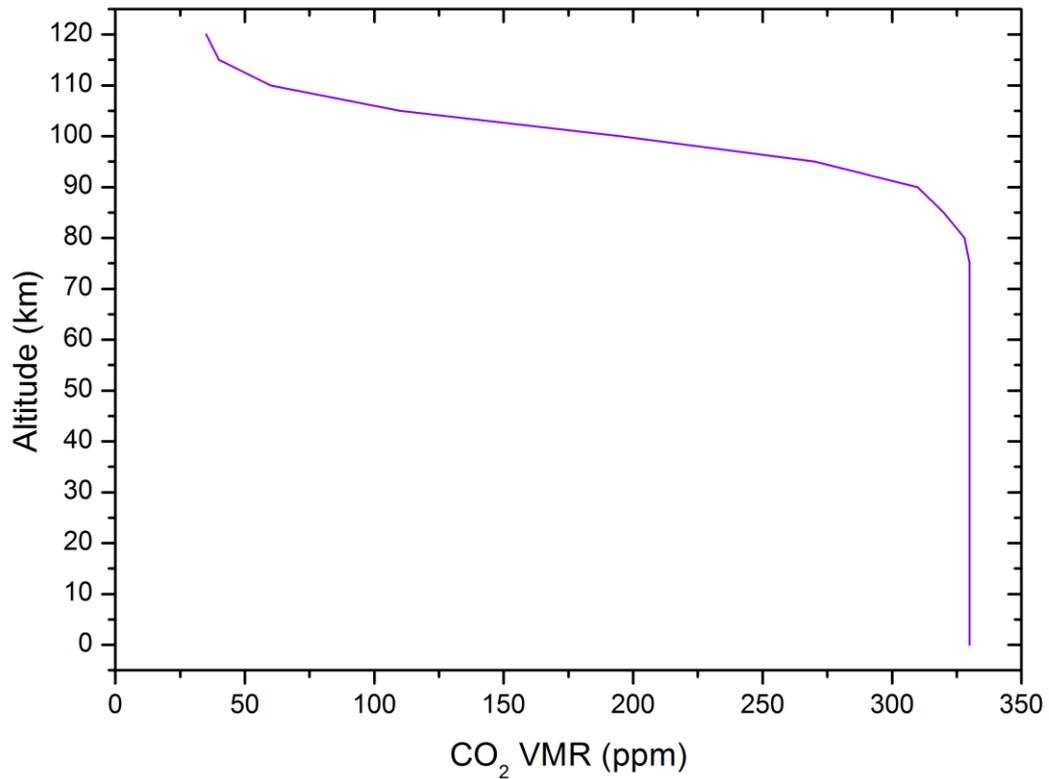


Figure A1.4 : Profil vertical de CO₂ (ppm), identique pour les cinq premiers modèles atmosphériques standards.

5 Profils d'O₃

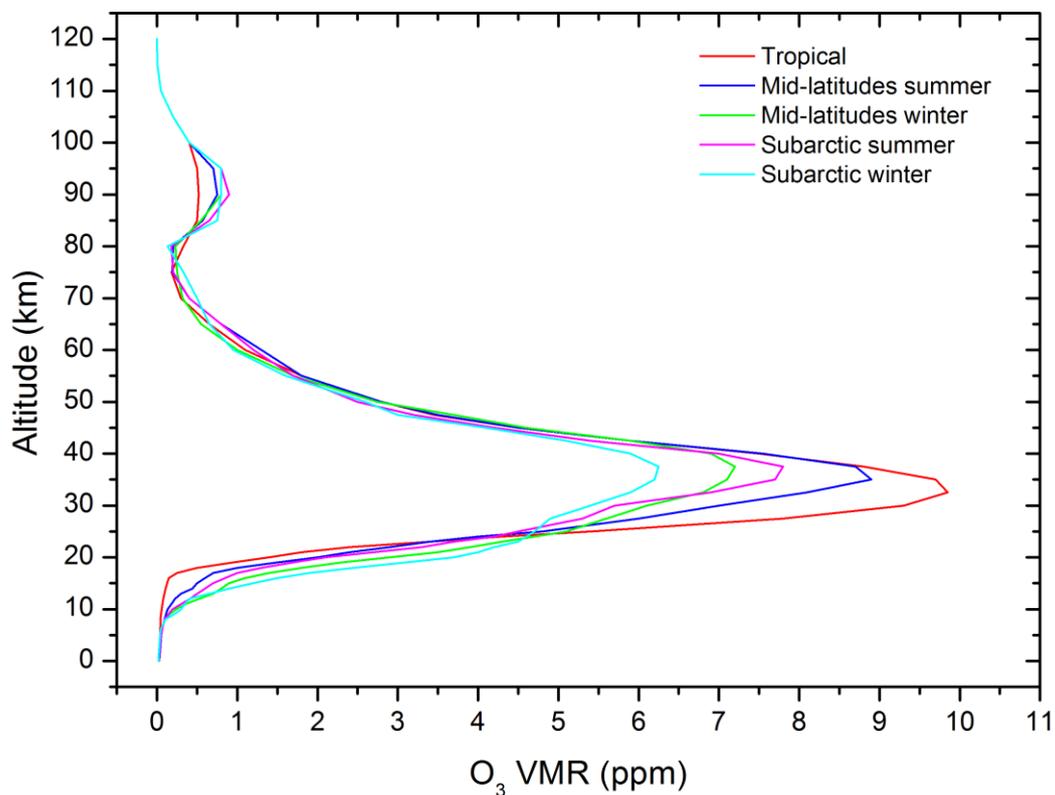


Figure A1.5 : Profils verticaux d'O₃ (ppm) pour les cinq premiers modèles atmosphériques standards.

6 Profils de CH₄

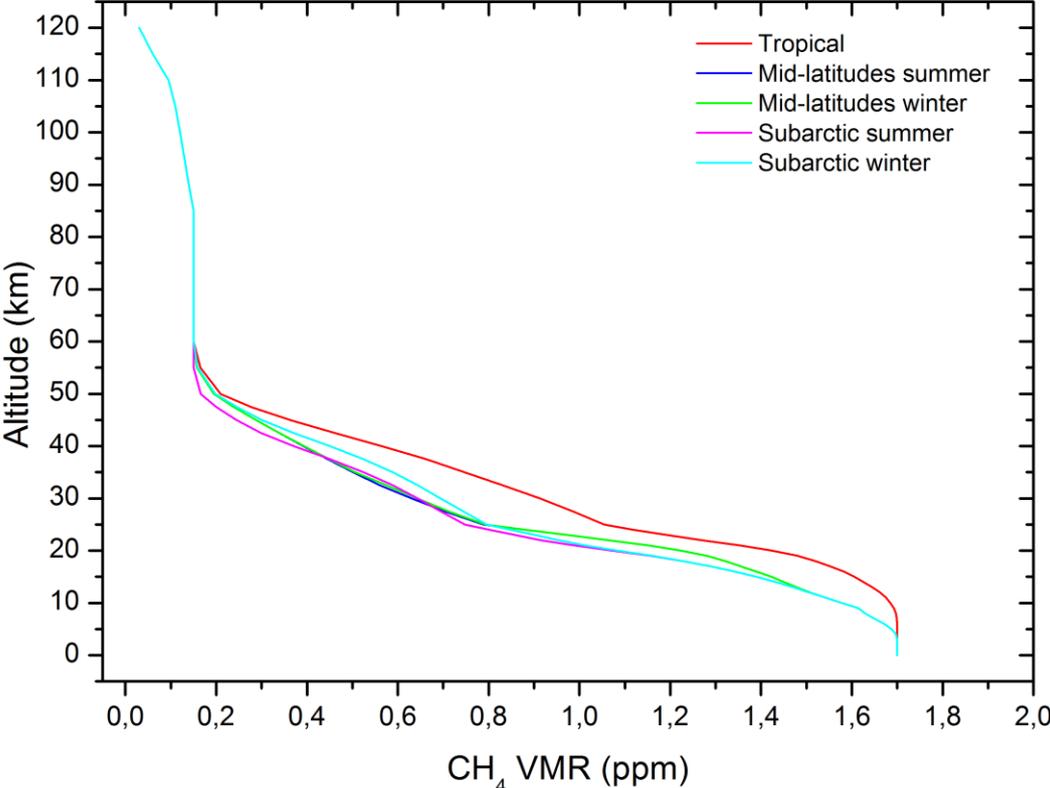


Figure A1.6 : Profils verticaux de CH₄ (ppm) pour les cinq premiers modèles atmosphériques standards.

Annexe 2 : Sensibilité de IASI à différents polluants de la CLA pour différentes climatologies

Des simulations, similaires à celles réalisées dans le chapitre 3, ont été réalisées pour d'autres molécules (CO, O₃ et NH₃) et pour d'autres atmosphères standards. Dans cette annexe, nous résumons les résultats obtenus.

Quelle que soit l'espèce considérée, une atmosphère de 60 km d'altitude, discrétisée en couches de 1 km d'épaisseur, a été définie. La première couche délimite la CLA. Un instrument de type IASI pointant au nadir a été considéré (caractéristiques instrumentales décrites dans le chapitre 2). Une émissivité de 1 a été fixée dans tous les cas.

Pour chaque modèle atmosphérique, le contraste thermique est défini comme la différence entre la température de surface T_S et la température moyenne de la CLA \bar{T}_{CLA} : $TC = T_S - \bar{T}_{CLA}$. Les simulations sont réalisées pour des valeurs de TC allant de -15° à 15° par pas de 1°. La température moyenne de la CLA est maintenue constante, seule la température de surface est modulée pour faire varier ces valeurs. Un résumé est donné dans le tableau A2.1 ci-dessous.

Tableau A2.1 : Calcul des contrastes thermiques pour les cinq modèles atmosphériques standards étudiés.

Profils de température	\bar{T}_{CLA}	Variations T_S	Pas de la variation
Tropical	296.7 K	281.7 < T_S < 311.7 K	1°
Moy. latitudes été	291.9 K	276.9 < T_S < 306.9 K	1°
Moy. latitudes hiver	270.5 K	255.5 < T_S < 285.5 K	1°
Subarctique été	284.4 K	269.4 < T_S < 299.4 K	1°
Subarctique hiver	258.5 K	243.5 < T_S < 273.5 K	1°

Dans les sections suivantes, nous présentons brièvement les résultats obtenus pour chacune des espèces considérées.

1 SO₂ (suite)

Des simulations identiques à celles du chapitre 3 (région spectrale 1000-1450 cm⁻¹, profil non-pollué = modèle et profil pollué = 100 ppb dans la CLA) ont été réalisées pour les modèles tropical, et moyennes latitudes. Leurs résultats sont représentés sur la figure A2.1. Un tableau récapitulatif des conditions de contrastes thermiques nécessaires à l'observation du SO₂ est également donné (tableau A2.2).

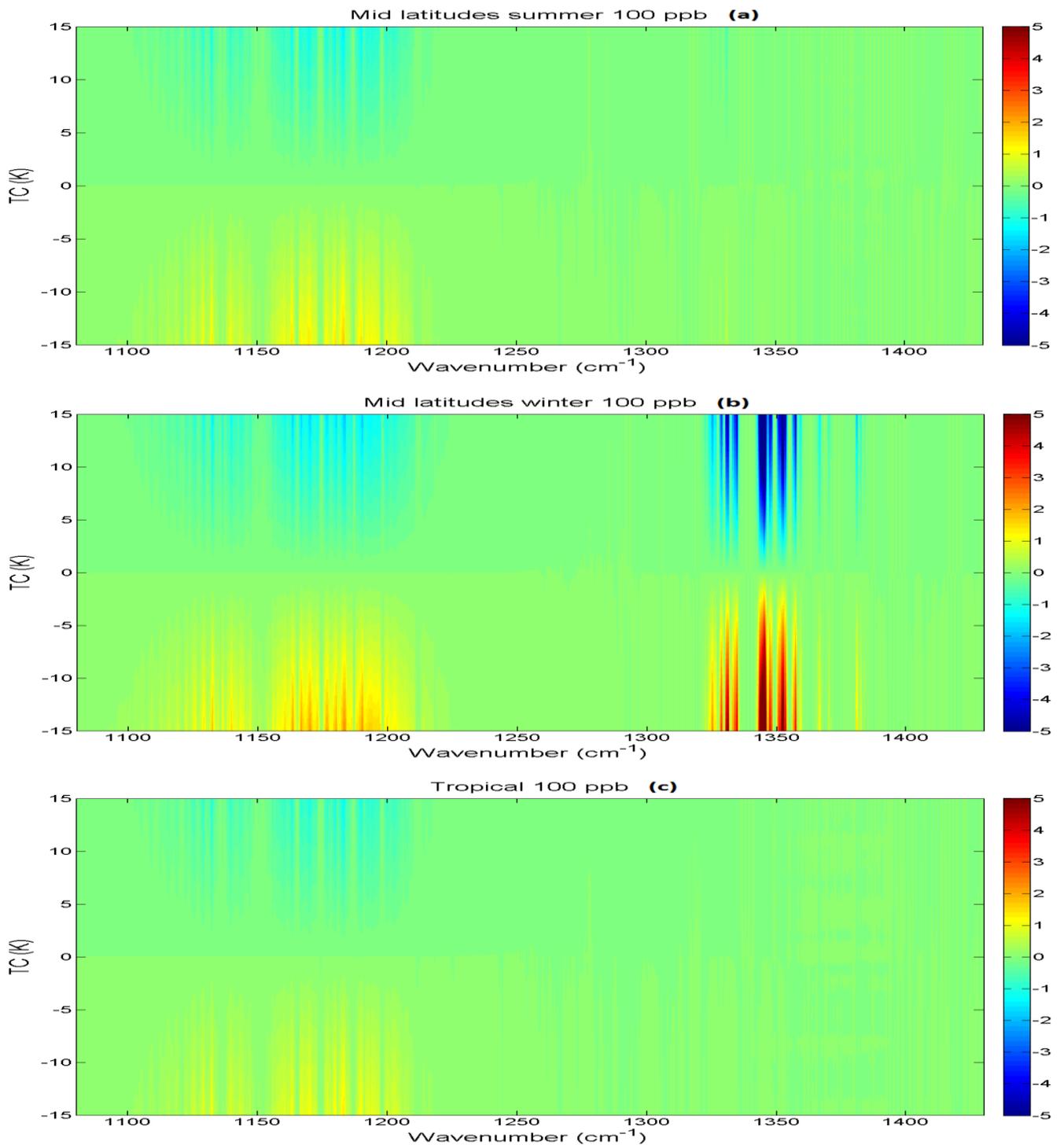


Figure A2.1 : Influence du contraste thermique sur la détection d'un signal provenant du SO₂ de la couche limite pour (a) le modèle des moyennes latitudes été, (b) le modèle des moyennes latitudes hiver, et (c) le modèle tropical. L'échelle de couleur représente les différences de température de brillance normalisées $(\Delta TB(\tilde{\nu}))_{norm}$ calculées entre le spectre pollué et le spectre non-pollué.

Tableau A2.2 : Influence du TC sur la détection d'un signal provenant du SO₂ de la CLA. Pour chaque modèle considéré, le TC seuil (en valeur absolue) pour cette détection est indiqué pour les bandes ν_3 et ν_1 . Notons que le seuil est donné lorsqu'au moins le signal d'un échantillon spectral est détecté (sort du bruit).

Modèle	VMR SO ₂ (ppb) dans CLA	TC seuil pour ν_3	TC seuil pour ν_1
Moy latitudes été	100	--	> 15°
Moy latitudes hiver	100	4°	> 10°
Tropical	100	--	> 15°

2 CO

Les simulations réalisées pour le CO s'étendent sur la région spectrale 2000-2250 cm^{-1} . Le profil vertical non-pollué est l'a priori utilisé dans l'algorithme FORLI [10] (figure A2.2), construit sur base d'une moyenne de profils représentatifs des concentrations de l'espèce. Pour le profil pollué, le VMR de CO a été uniformément porté à 500 ppb dans la CLA (0-1 km). Les résultats obtenus pour les cinq modèles sont donnés sur la figure A2.3, et un tableau récapitulatif des conditions de contrastes thermiques nécessaires à l'observation du CO est également donné (tableau A2.3).

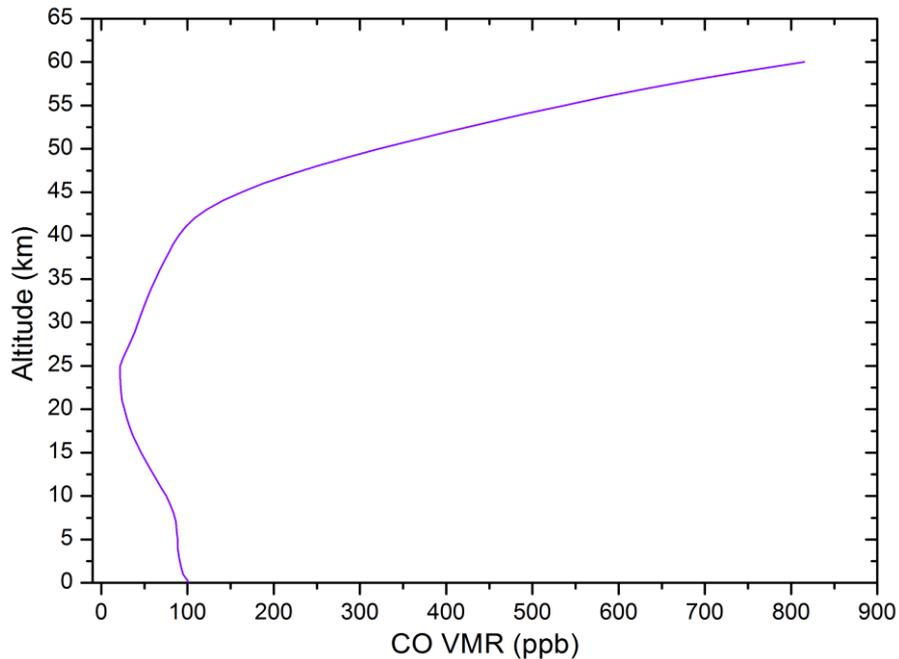
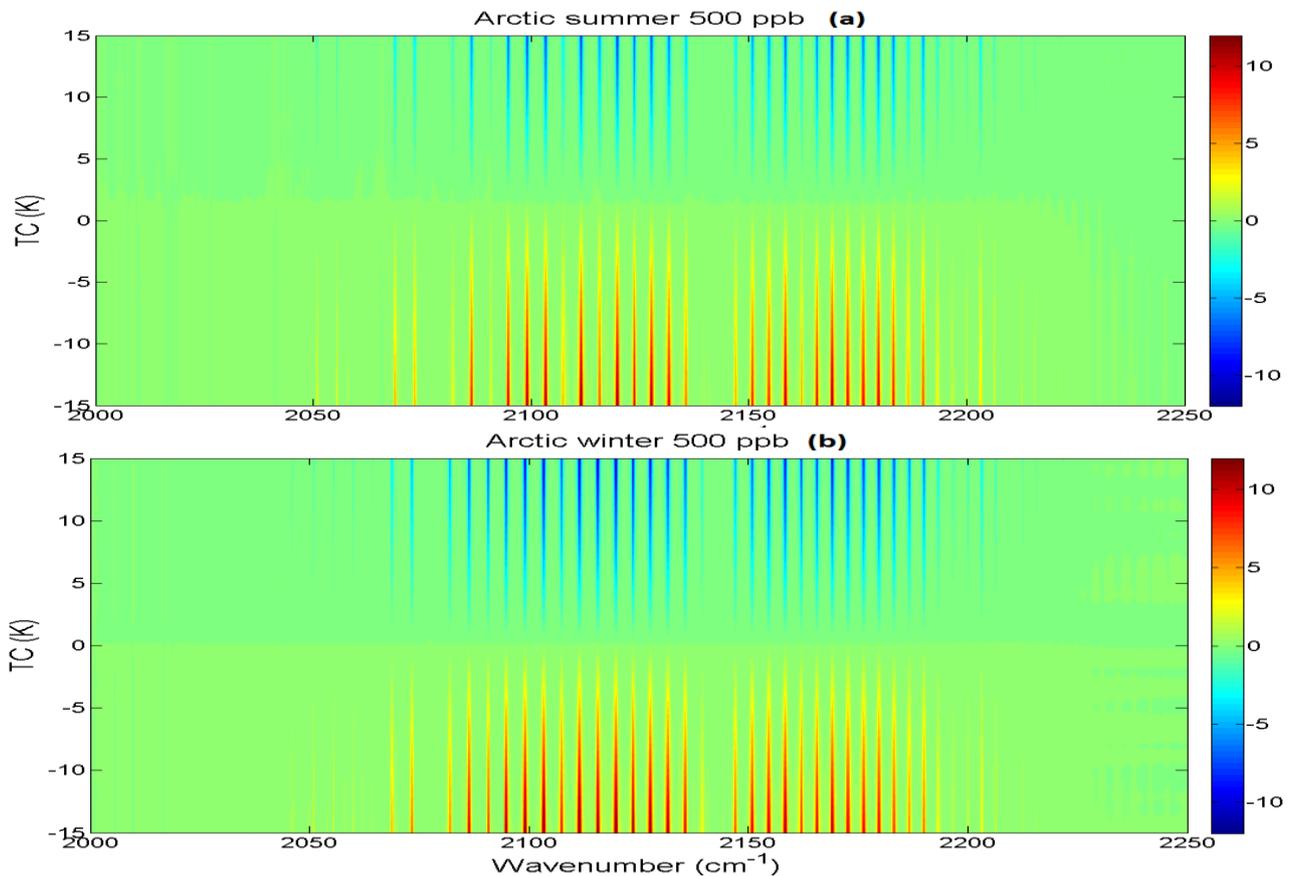


Figure A2.2 : Profil vertical a priori du CO (ppb) pour le programme FORLI.



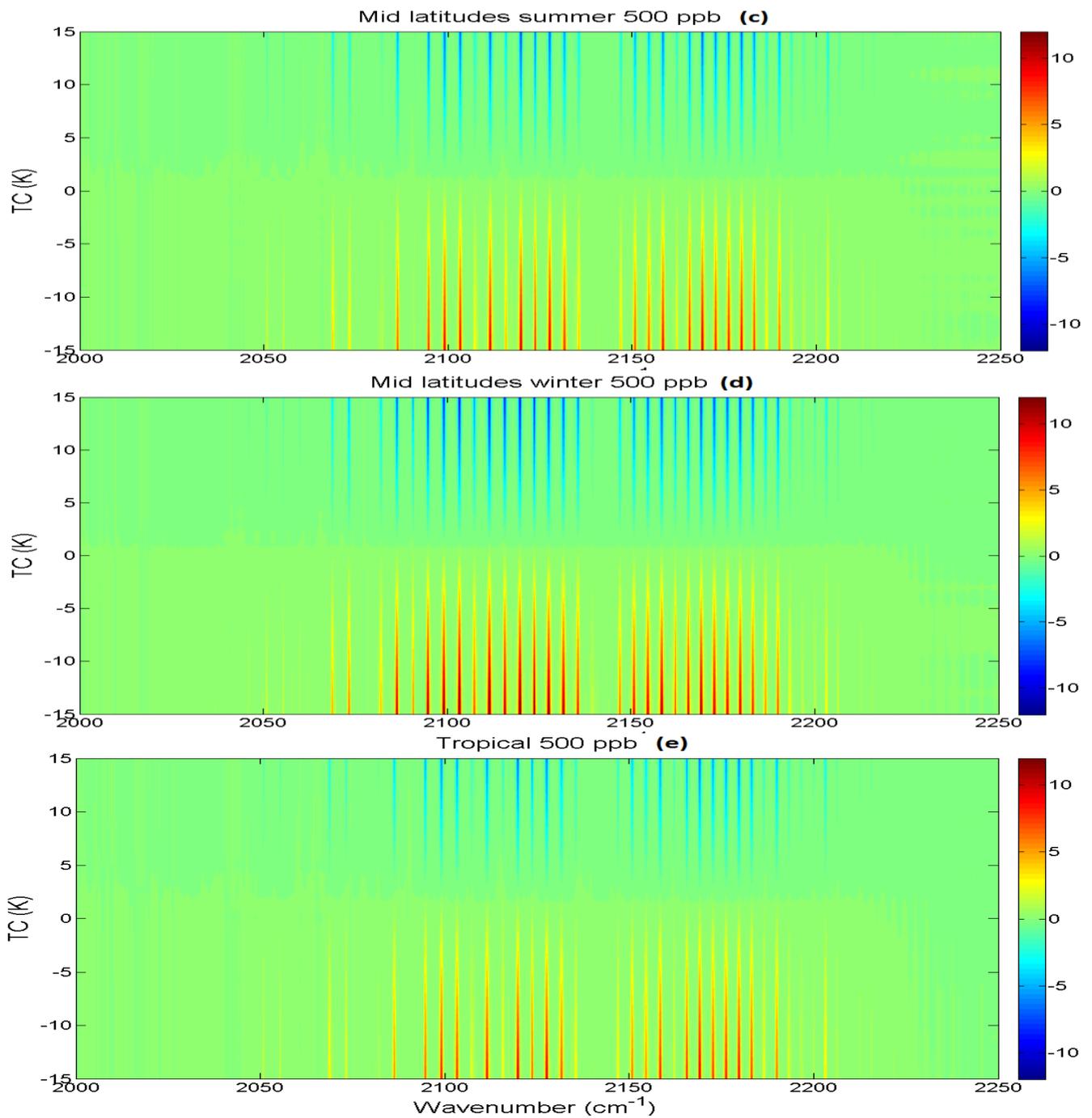


Figure A2.3 : Influence du contraste thermique sur la détection d'un signal provenant du CO de la couche limite pour les modèles (a) subarctique été, (b) subarctique hiver, (c) moyennes latitudes été, (d) moyennes latitudes hiver, et (e) tropical. L'échelle de couleur représente les différences de température de brillance normalisées ($\Delta TB(\tilde{\nu})_{norm}$) calculées entre le spectre pollué et le spectre non-pollué.

Tableau A2.3 : Influence du TC sur la détection d'un signal provenant du CO de la CLA. Pour chaque modèle considéré, le TC seuil (en valeur absolue) pour cette détection est indiqué pour la bande 1-0. Notons que le seuil est donné lorsqu'au moins le signal d'un échantillon spectral est détecté (sort du bruit).

Modèle	VMR CO dans CLA (ppb)	TC seuil pour bande 1-0
Subarctique été	500	> 2°
Subarctique hiver	500	> 1°
Moy latitudes été	500	> 2°
Moy latitudes hiver	500	> 1°
Tropical	500	> 2°

3 O₃

Les simulations réalisées pour l'O₃ s'étendent sur la région spectrale 980-1100 cm⁻¹. Le profil vertical non-pollué est l'a priori utilisé dans l'algorithme FORLI [10] (figure A2.4), construit sur base d'une moyenne de profils représentatifs des concentrations de l'espèce. Pour le profil pollué, le VMR d'O₃ a été uniformément porté à 84 ppb (seuil d'alerte européen) dans la CLA (0-1 km). Les résultats obtenus pour les cinq modèles sont donnés sur la figure A2.5.

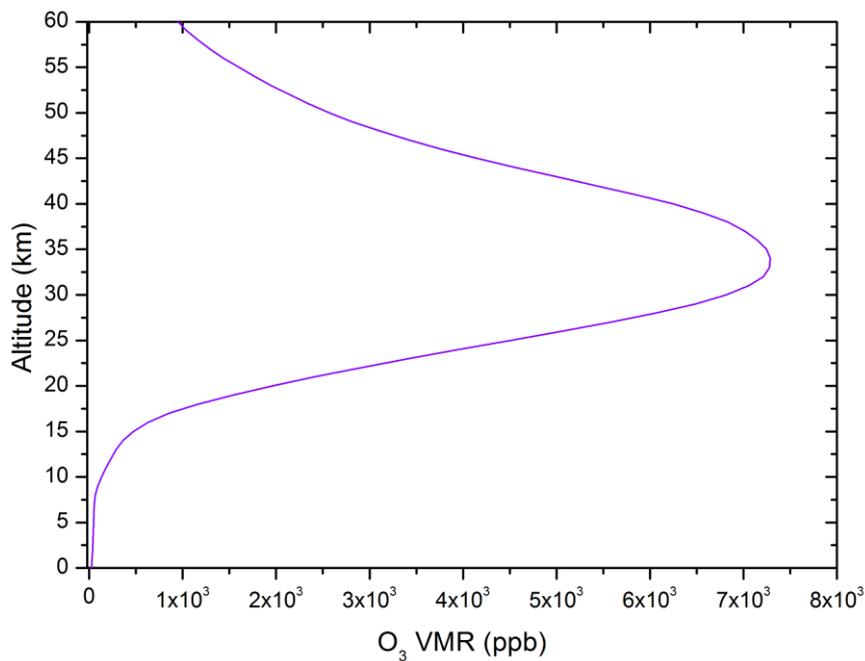
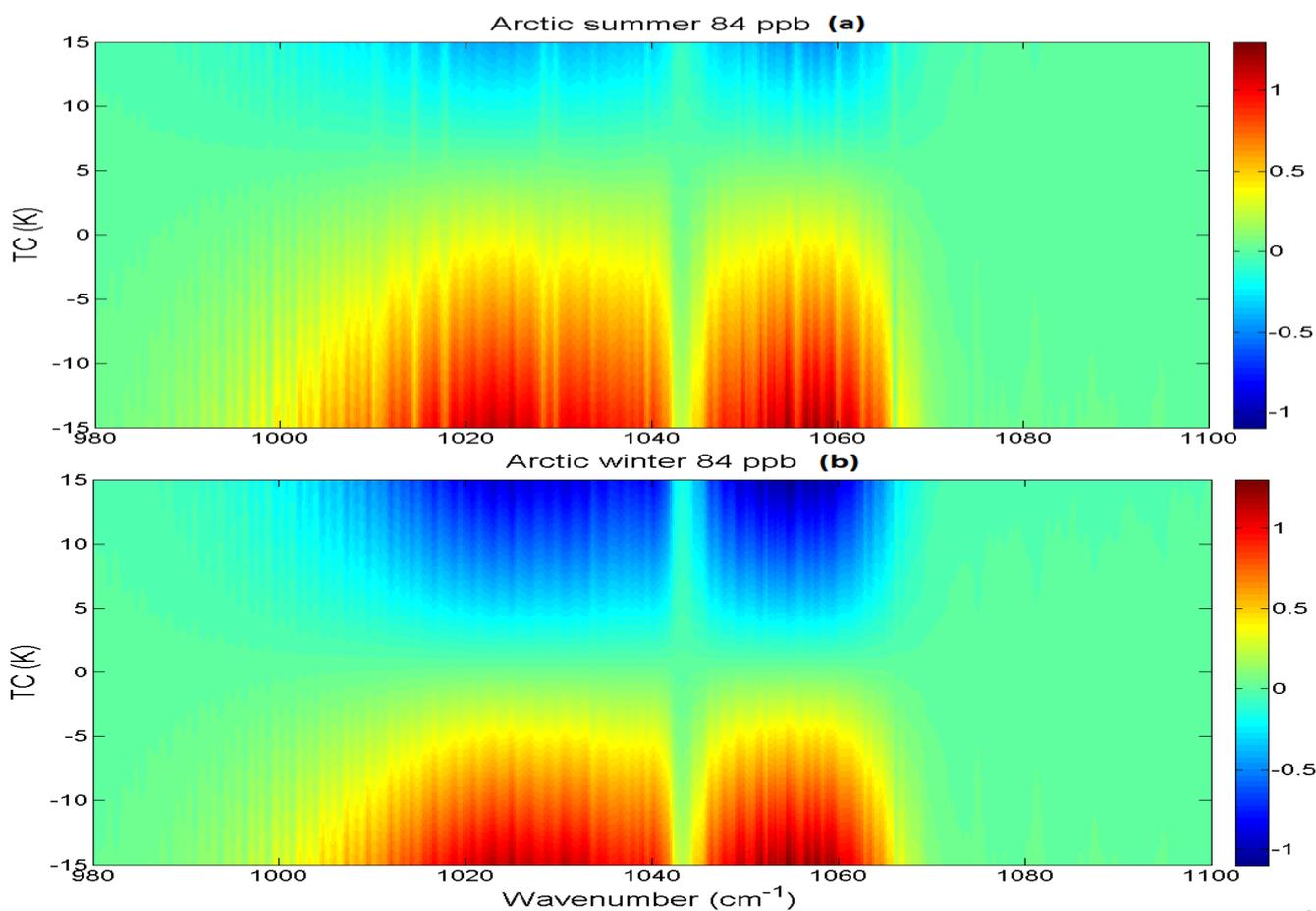


Figure A2.4 : Profil vertical a priori d'O₃ (ppb) pour le programme FORLI.



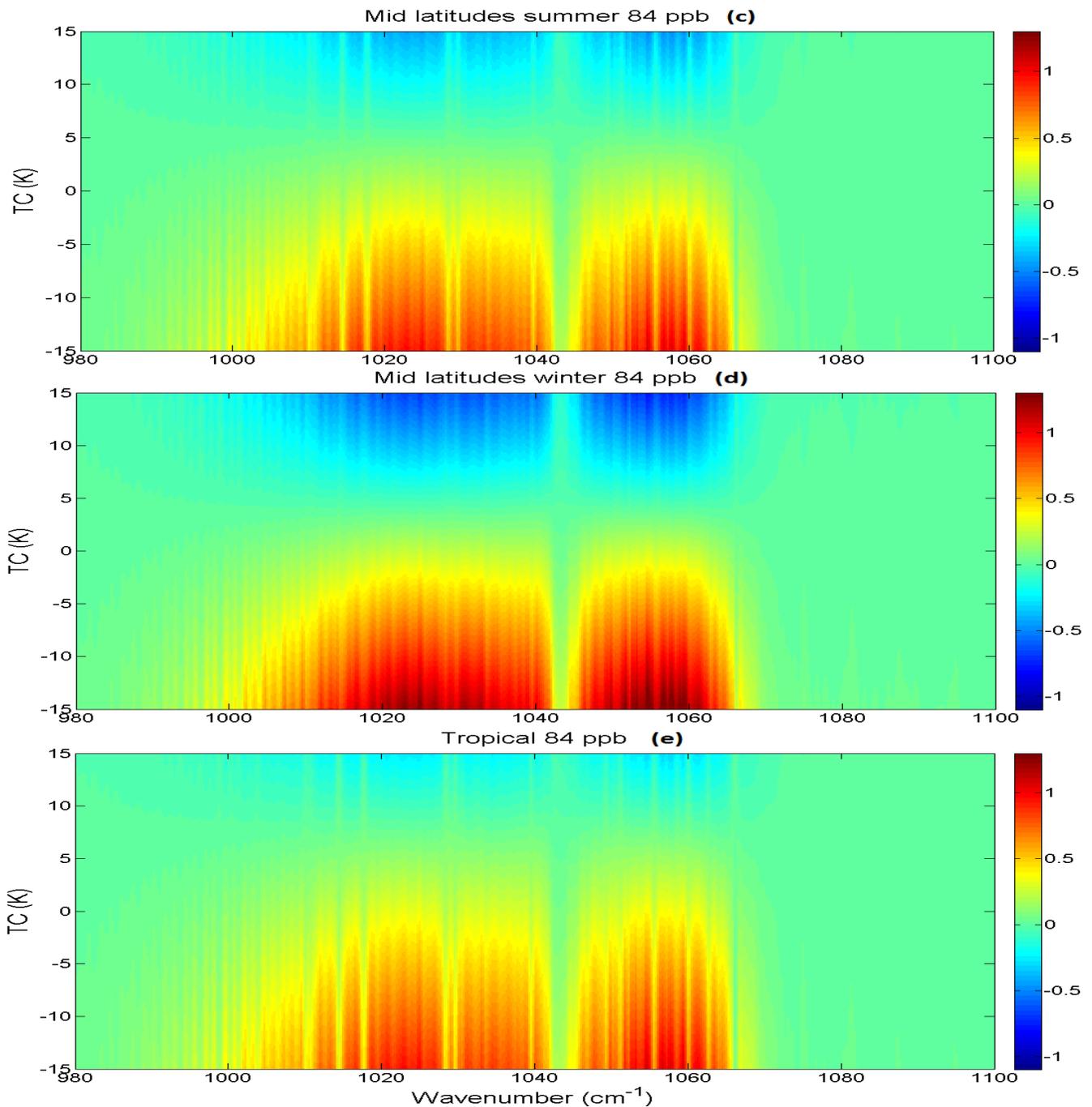


Figure A2.5 : Influence du contraste thermique sur la détection d'un signal provenant de l'O₃ de la couche limite pour les modèles (a) subarctique été, (b) subarctique hiver, (c) moyennes latitudes été, (d) moyennes latitudes hiver, et (e) tropical. L'échelle de couleur représente les différences de température de brillance normalisées ($\Delta TB(\tilde{\nu})_{norm}$) calculées entre le spectre pollué et le spectre non-pollué.

Pour tous les modèles atmosphériques envisagés, un signal provenant de l'O₃ de la couche limite est très difficilement détectable par IASI. Des contrastes thermiques inférieurs à -15° ou des rapports de mélange supérieurs à 84 ppb sont nécessaires. Nous pouvons également remarquer que pour la plupart des modèles, les $\Delta TB(\tilde{\nu})_{norm}$ ne sont pas égales à 0 pour un TC = 0°. Ceci est probablement lié à la présence de quantités importantes d'O₃ à plus haute altitude. Une analyse du transfert radiatif couche après couche devrait être réalisée pour expliquer ce résultat. Notons que cette analyse n'a pas été entreprise au cours de ce travail.

4 NH₃

Les simulations réalisées pour NH₃ s'étendent sur la région spectrale 700-1250 cm⁻¹. Le profil vertical non-pollué a été construit en moyennant des profils de basses concentrations représentatifs de tout le globe (figure A2.6). Pour le profil pollué, le VMR de NH₃ a été uniformément porté à 20 ppb dans la CLA (0-1 km). Les résultats obtenus pour les cinq modèles sont donnés sur la figure A2.7, et un tableau récapitulatif des conditions de contrastes thermiques nécessaires à l'observation de NH₃ est également donné (tableau A2.4).

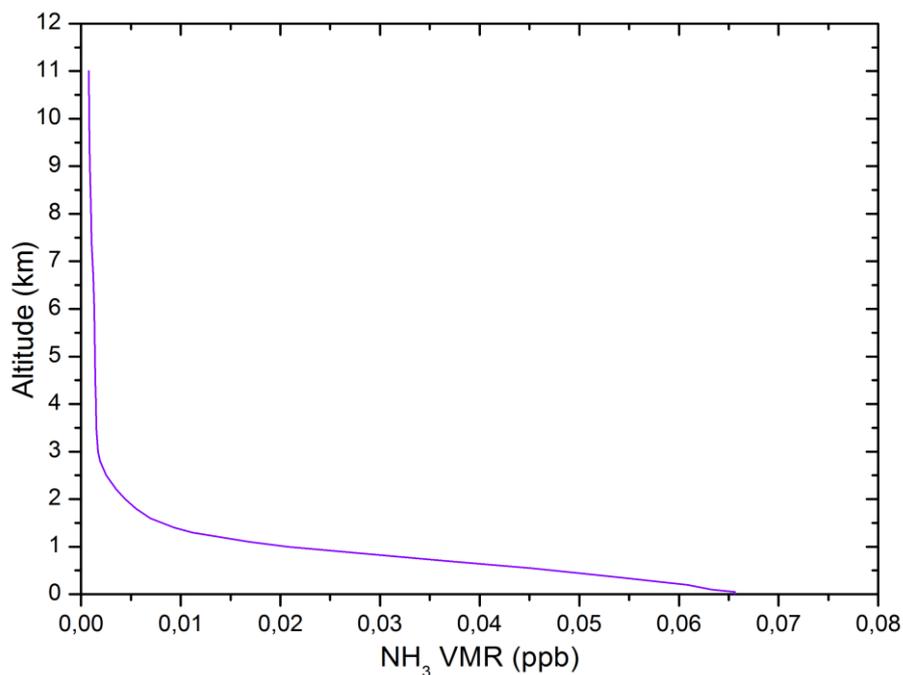
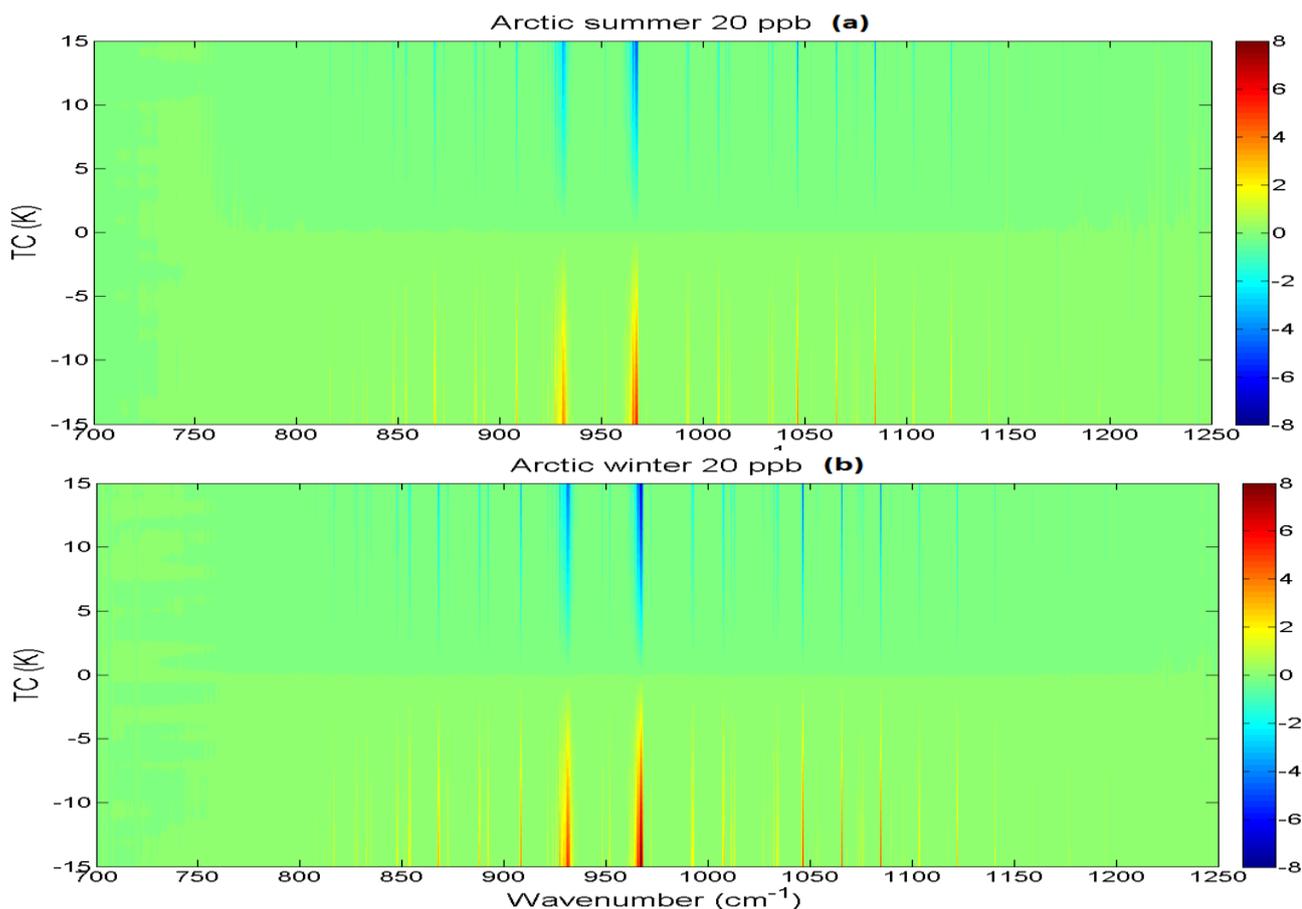


Figure A2.6 : Profil vertical de NH₃ (ppb) utilisé.



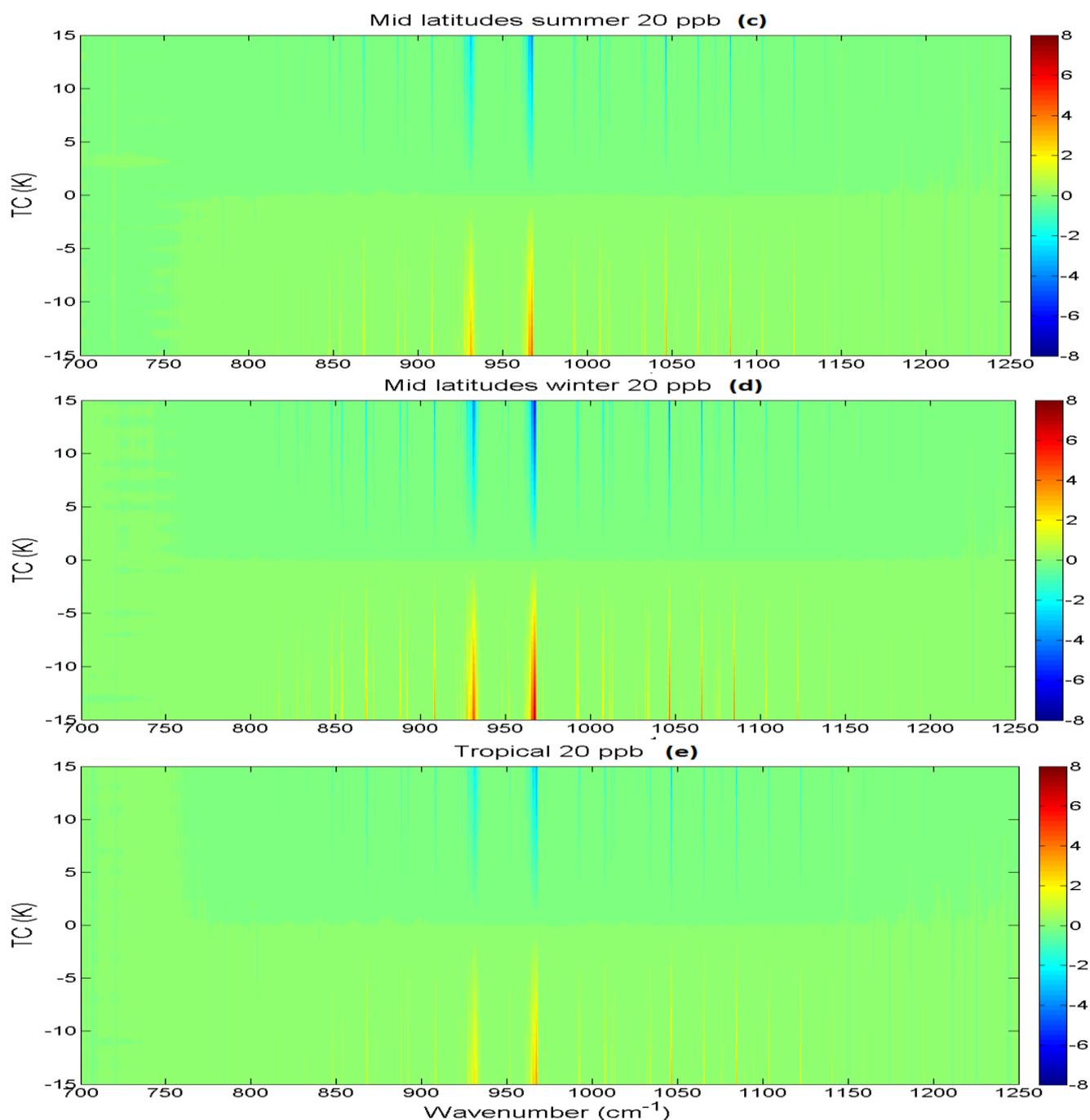


Figure A2.7 : Influence du contraste thermique sur la détection d'un signal provenant de NH_3 de la couche limite pour les modèles (a) subarctique été, (b) subarctique hiver, (c) moyennes latitudes été, (d) moyennes latitudes hiver, et (e) tropical. L'échelle de couleur représente les différences de température de brillance normalisées ($\Delta TB(\tilde{\nu})_{norm}$) calculées entre le spectre pollué et le spectre non-pollué.

Tableau A2.4 : Influence du TC sur la détection d'un signal provenant de NH_3 de la CLA. Pour chaque modèle considéré, le TC seuil (en valeur absolue) pour cette détection est indiqué pour la bande ν_2 . Notons que le seuil est donné lorsqu'au moins le signal d'un échantillon spectral est détecté (sort du bruit).

Modèle	VMR NH_3 dans CLA (ppb)	$ TC $ seuil pour la bande ν_2
Subarctique été	20	3°
Subarctique hiver	20	2°
Moy latitudes été	20	4°
Moy latitudes hiver	20	3°
Tropical	20	5°

Annexe 3 : Données complémentaires restituées pour la période 2009-2011

1 Données journalières

Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre 4, les colonnes partielles de SO₂ (0-1 km) journalières moyennes ont été calculées sur la région inversée (68-70°N, 87-89°E). Les séries temporelles pour les années 2009, 2010 et 2011 sont représentées sur les figures A3.1, A3.2 et A3.3 respectivement. Nous pouvons ainsi observer l'importante variabilité de ces colonnes journalières (déjà discutées dans le chapitre 4, sous-section 2.1). Des colonnes moyennes de SO₂ distinctes ont été calculées pour les inversions réalisées sur les spectres avec et sans niveau 2 disponibles, et sont également représentées. Notons que ces moyennes sont du même ordre de grandeur. Enfin, remarquons la très faible quantité d'ajustements convergents pour l'année 2011.

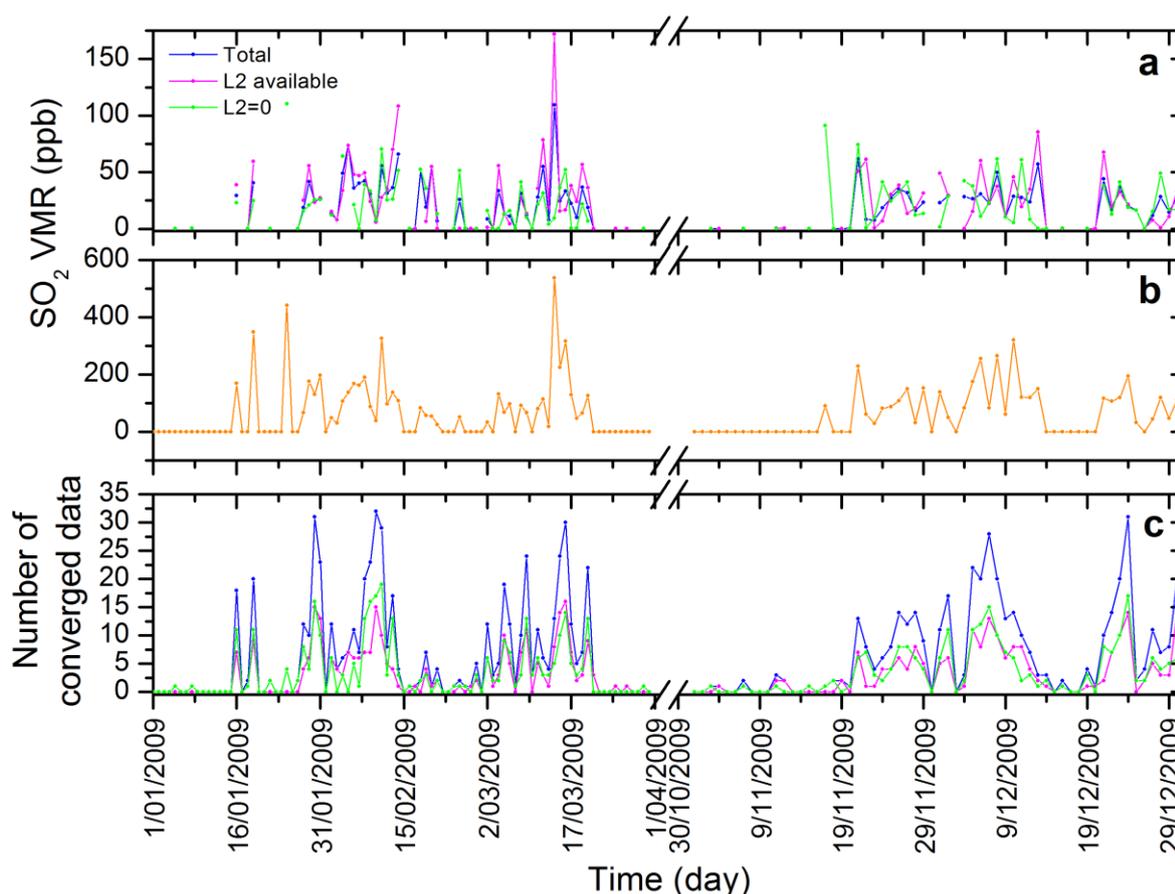


Figure A3.1 : (a) Colonnes partielles (0-1 km) journalières moyennes de SO₂ (ppb), (b) colonnes journalières maximales (ppb) et (c) nombres d'ajustements convergents pour l'année 2009. Sur les figures (a) et (c), les couleurs sont les suivantes. En bleu : moyennes réalisées sur l'ensemble des données. En rose : moyennes réalisées sur les colonnes restituées à partir des spectres avec niveaux 2. En vert : moyennes réalisées sur les colonnes restituées à partir des spectres sans niveaux 2.

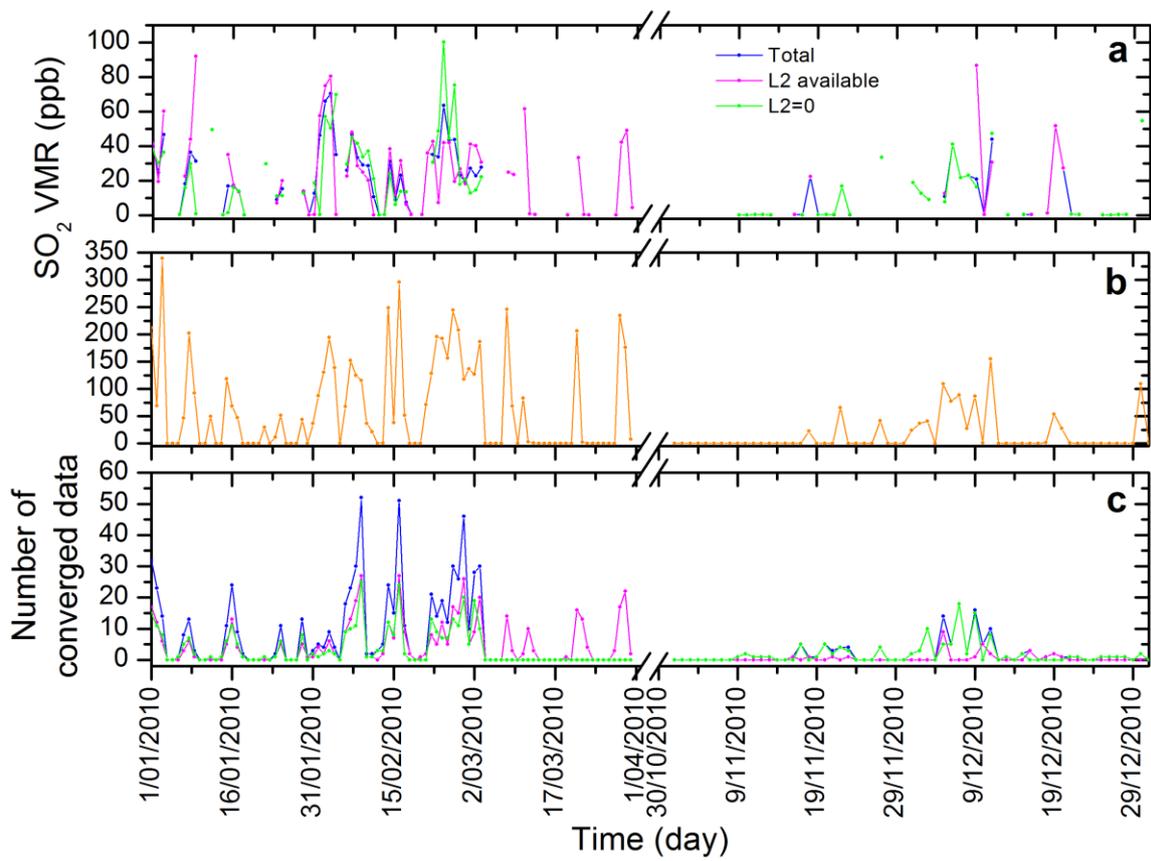


Figure A3.2 : Même chose que pour la figure A3.1 pour 2010.

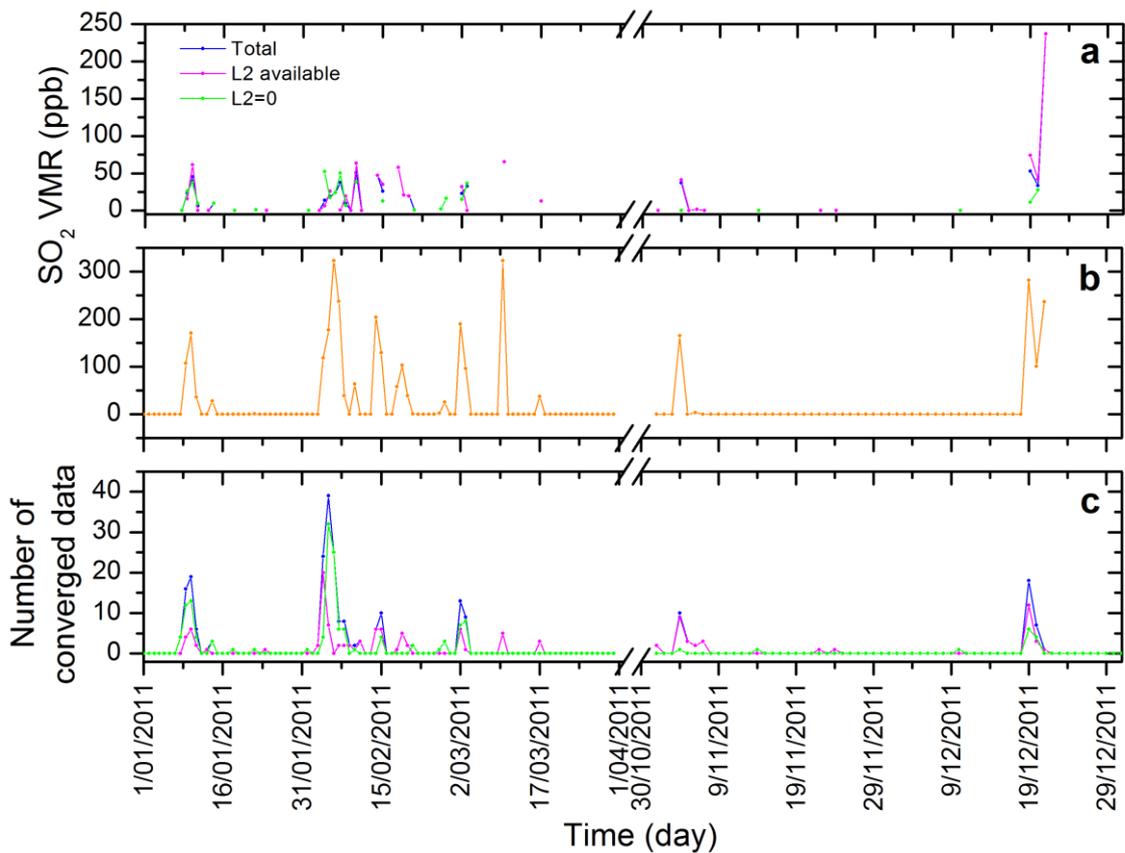


Figure A3.3 : Même chose que pour la figure A3.1 pour 2011.

2 Données mensuelles

Dans le chapitre 4, nous avons mentionné que des colonnes mensuelles moyennes de SO_2 distinctes ont été calculées pour les inversions réalisées sur les spectres avec et sans niveau 2 disponibles. Elles sont représentées sur la figure A3.4. Nous pouvons ainsi remarquer qu'elles sont du même ordre de grandeur. L'ensemble des ajustements peut donc être pris en compte sans distinction.

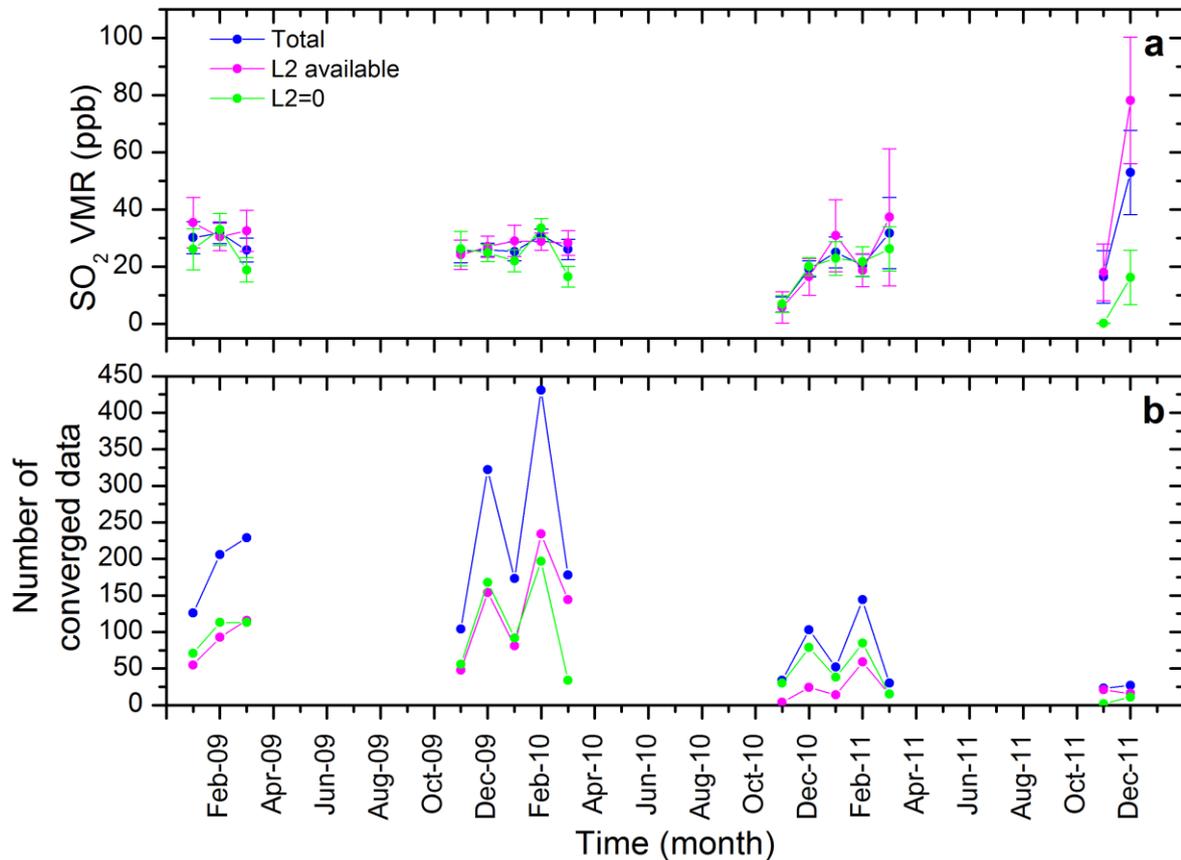


Figure A3.4 : (a) Colonnes mensuelles moyennes de SO_2 (ppb) et (b) nombre d'ajustements convergents pour la période 2009-2011. En bleu : moyennes réalisées sur l'ensemble des données. En rose : moyennes réalisées sur les colonnes restituées à partir des spectres avec niveaux 2. En vert : moyennes réalisées sur les colonnes restituées à partir des spectres sans niveaux 2.