Nº d'urdre: 3057

# THÈSE

# présentée à L'UNIVERSITÉ DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES DE LILLE

pour obtenir le grade de DOCTEUR DE L'UNIVERSITE dans la spécialité Lasers, Molécules et Rayonnement Atmosphérique

> par Ariane BAZUREAU

Préparation de l'inversion des mesures de transmission de l'expérience spatiale SAGE III : Mise en place et étude des algorithmes d'inversion. Application aux mesures des expériences ballon AMON et SALOMON

> à souten, publiquement le 17 décembre 2001 devant le jury composé de:

M. Claude CAMY-PEYRET	Professeur, LPMA, Paris	Rapporteur
M. Didier FUSSEN	Dire teur de recherches, IASB, Bruxelles	Rapporteur
Mme. Florence GOUTAIL	CNRS, SA, Verrières le Buisson	Examinatrice
Mme. Jacqueline LENOBLE	Professeur Emérite, LOA, Lille	Examinatrice
M. Jean-Baptiste RENARD	CNRE, LPCE, Orléans	Examinateur
Mme. Colette BROGNIEZ	Professeur, LOA, Lille	Directrice de Thèse

Leboratoire d'Optique Atmosphérique U. F. R. de Physique Fondamentale

## Résumé

Après avoir connu quelques retards, l'expérience spatiale SAGE III est sur le point d'être lancée à bord de METEOR 3M début décembre 2001. L'instrument SAGE III doit mesurer les profils verticaux des constituants atmosphériques (gaz et aérosols) en utilisant le principe d'occultation solaire et lunaire. Par rapport à son prédecesseur SAGE II, la bande spectrale de SAGE III a été élargie par l'utilisation d'un détecteur CCD, permettant une couverture spectrale plus étendue (de 280 à 1040 nm) et par l'ajout d'une photodiode infrarouge à 1550 nm. Notre travail a consisté à élaborer un algorithme d'inversion, dit *inversion dans les bandes résolues* pour les mesures de transmission de SAGE III. Nous avons utilisé 4 bandes spectrales résolues en sous-canaux étroits, situées autour de 410 nm, 442 nm, 590 nm et 660 nm, pour obtenir une restitution aisée des concentrations des différents constituants atmosphériques. Les premières simulations ont montré sa capacité à restituer avec une bonne précision les profils verticaux diurnes de densités moléculaires d'ozone et de dioxyde d'azote ainsi que les profils de cœfficient d'extinction des aérosols. Les résultats préliminaires pour le cas lunaire ont été encourageants.

Parallèlement, l'inversion par analyse globale, utilisant toutes les longueurs d'ondes, développée par le LOA pour les mesures de SAGE II et de POAM II et III, a été adaptée aux mesures de SAGE III. Une comparaison entre ces deux algorithmes a été menée à paril. des simulations portant sur différents profils d'ozone et types d'aérosols, de granulométrie variée. Les premiers résultats nous ont conduit à la mise en place d'une troisième inversion, dite inversion combinée, résultat d'une fusion entre deux méthodes d'inversion, permettant de restituer les cœfficients d'extinction des aérosols en dehors des bandes résolues.

Les mesures réelles de SAGE III n'étaient pas disponibles mais nous avons eu la possibilité d'accéder aux mesures des expériences ballon AMON et SALOMON à partir de Kiruna (Suède), réalisées par l'équipe du LPCE. Cela nous a permis de tester l'*inversion dans les bandes résolues* avec des mesures réelles. Les profils verticaux de densité moléculaire d'ozone, de dioxyde d'azote et du trioxyde d'azote ainsi que des profils de coefficient d'extinction des aérosols retrouvés ont été comparés avec ceux obtenus par la méthode d'inversion du LPCE. Une comparaison des dépendances spectrales des cœfficients d'extinction des aérosols déterminés par ces deux méthodes a été discutée. La comparaison des résultats obtenus par ces deux méthodes d'inversion a montré qu'il y a désaccord entre les profils pour certains des constituants, notamment pour les aérosols.

Mots Clefs : Inversion, SAGE III, Aérosols, Ozone, Dioxyde d'azote, SALOMON, AMON.

#### Abstract

SAGE III launch is planned aboard METEOR 3M on December, 20001. SAGE III instrument is designed to monitor aerosol extinction coefficient and gas in the upper troposphere and stratosphere by using the attenuation of the sun light or the moon light due to Earth's atmosphere. Compared to its predecessor, SAGE II, some improvements have been carried out: the new prototype is constituted of a CCD linear array to provide spectral coverage from 280 nm to 1040 nm, coupled to a single photodiode detector at 1550 nm. The work has been devoted to the development of our inversion algorithm, called "reduced analysis". Four resolved channels have been used, around 410 nm, 442 nm, 590 nm and 660 nm : they are divided into narrow sub-channels, which permit us to retrieve molecular densities. First results have been obtained for the resolved channels, for the retrieval of daytime constituents, such as ozone, nitrogen dioxide, with a good quality from simulated transmission profiles. Preliminary outcomes for the lunar case are encouraging.

The "global analysis", developed on all channels by the LOA for the SAGE II and POAM II - III species retrieval, have been adapted for the SAGE III transmissions measurements with only minor changes. The comparison between "reduced analysis" and "global analysis" methor<sup>1</sup> have been then conducted on simulated different ozone profiles and aerosol types, of various size distribution. Since these retrieved results are shown promising, these two methods have been combined into a single, called "combined analysis", which allows to retrieve aerosol extinction coefficient in the wavelengths outside the resolved bands.

Since SAGE III measurements are not yet available, an opportunity for testing the "reduced analysis" on teal balloon measurements, from AMON and SALOMON experiment, have been offered by the LPCE team, to validate the method. Our retrieved densities profiles of ozone, nitrogen dioxide and nicrogen trioxide have been compared with those obtained by the LPCE inversion. An analysis of aerosol extinction spectra, inverted by the two teams, have been also performed through the comparison of aerosol integrated properties. However, the comparison between the two algorithms points out some large discrepancies between the results, specially for the aerosol extinction coefficient.

Mots Clefs : Inversion, SAGE III, Aerosols, Ozone, Nitrogen dioxide, SALOMON, AMON.

### Remerciements

Les travaux de recherche présentés ici ont été effectués au Laboratoire d'Optique Atmosphérique de l'Université de Lille. J'adresse mes remerciements aux directeurs successifs du laboratoire, Messieurs Didier Tanré, Yves Fouquart et Maurice Herman, pour leur accueil depuis 1997.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude à Madame Colette Brogniez, pour avoir patiemment dirigé et encadré mes travaux avec une compétence inégalable et un sens critique efficace. C'est avec beaucoup de plaisir que j'ai travaillé sous sa direction, tout en bénéficiant d'un échange intellectuel permanent et stimulant.

Je remercie également Madame Jacqueline Lenoble, pour l'intérêt qu'elle a bien voulu porter à ce travail et les encouragements qu'elle m'a prodigués, ainsi qu'à Messieurs Jean-Baptiste Renard et Gwenaël Berthet, du Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement d'Orléans, grâce auxquels l'accès aux mesures réelles de AMON et SALOMON a été rendu possible par une étroite collaboration, avec des échanges e-mail très fructueux, tant sur le plan expérimental que sur les applications théoriques.

Je tiens à remercier Madame Florence Goutail, du Service d'Aéronomie de Verrières le Buisson, qui me fait l'honneur de présider le jury de thèse, ainsi que Messieurs Claude Camy-Peyret et Didier Fussen, qui ont accepté d'être mes rapporteurs, tâche qu'ils ont accomplie avec concision et minutie en dépit de leurs nombreuses obligations: leurs remarques ont été très constructives pour la version définitive de mon manuscrit.

Je dis un grand merci à toutes les personnes du laboratoire entre autres, nos gentilles secrétaires Liliane Devaux et Andrée Girard, qui m'ont facilité la logistique et l'organisation de mes déplacements professionnels. Je n'oublie pas non plus Christine Deroo et Louis Gonzales, pour nos intéressantes discussions sur le logiciel Mgraph, indispensable canevas des résultats de ma thèse; je m'excuse de leur avoir donné beaucoup de grain à moudre. Enfin, je n'oublie pas de citer Bahy Damiri, pour avoir rescusité mon PC.

Je remercie tout aussi chaudement mes chers collègues et "non-permanents" du laboratoire, notamment Bertrand Cadet, Isabelle Chiappello, Thierry Elias, Vincent Giraud, Laurent C.-Labonnote, Jean-François Leon, Jérôme Riédi, Odile Thouron et Jamal Yahia pour leur encouragements sportifs.

J'exprime toute ma gratitude à Isabelle Joye, mon orthophoniste, pour m'avoir préparée mentalement et "oralement" la soutenance de ma thèse, et à mon professeur d'anglais, Anne Gueguand, qui, dans le cadre des formations de l'Ecole Doctorale, n'a jamais ménagé ses efforts pour améliorer ma prononciation anglaise.

Merci à mes cousins et cousines de la famille Duprez pour leur accueil 100% cht'mi.

Merci à mes parents, qui, en faisant fi de toute fatalité, m'ont rendue bavarde; Et toc, à ceux qui leur prédisaient que *je serais une culottière*...

Et enfin, merci à Adrien pour son soutien fraternel.

# Table des matières

Introduction	13
1 L'Atmosphère terrestre et l'ozone: Les enjeux, le futur	17
1.1 Origine et composition de l'atmosphère	17
1.1.1 Naissance de l'atmosphère	17
1.1.2 Composition de l'atmosphère	18
1.2 La balance thermique de la Terre	20
1.2.1 L'accroissement des gaz à effet de serre	20
1.2.2 Rôle climatique des gar à effet de serre	22
1.3 Les aérosols, ces particules casse-tête	24
1.3.1 Définitions générales, origines	24
1.3.2 Les aérosols stratosphériques	24
1.3.3 Caractéristiques physiques	25
1.3.4 Distribution en taille des aérosols	26
1.3.5 Effet direct et indirect des aérosols	29
1.4 L'ozone: l'avenir incertain de la biosphère?	31
1.4.1 Propriétés de l'ozone	31
1.4.2 Equilibre naturel de l'ozone dans la stratosphère	33
1.4.3 Les chlorofluorocarbures	35
1.4.4 Les Nuages Stratosphériques Polaires	36
1.4.5 Ozone troposphérique	41
1.4.6 Rôle climatique de l'ozone	42
1.4.7 Impact de l'ozone sur la biosphère	42
1.5 Conclusion	43

2	r,0	ptique	Atmosphérique	47
	2.1	Défini	tions générales	47
		2.1.1	Equation du Transfert Radiatif	47
		2.1.2	Loi de Lambert-Beer	48
		2.1.3	Définitions de la transmission et de l'épaisseur optique	48
		2.1.4	Définition du cœfficient d'extinction	49
		2.1.5	Diffusion du rayonnement par le milieu atmosphérique	50
		2.1.6	Diffusion moléculaire de Rayleigh	50
		2.1.7	Définition de l'extinction pour une population d'aérosols	52
	2.2	Les te	chniques d'étude de l'atmosphère	53
		2.2.1	Les spectromètres de l'ozone	53
		2.2.2	Les moyens d'investigation	54
	2.3	L'abso	prption	57
		2.3.1	Les fenêtres atmosphériques	57
		2.3.2	Quelques remarques sur les données spectroscopiques	60
		2.3.3	Coefficient d'absorption de l'ozone	61
		2.3.4	Coefficient d'absorption du $NO_2$	67
		2.3.5	Cœfficient d'absorption du $NO_3$	72
		2.3.6	Coefficient d'absorption du OClO	73
		2.3.7	Et les autres constituants	74
3	Pré	sentati	ion de l'expérience satellitaire SAGE III	
	Mis	e en p	lace des algorithmes d'inversion de SAGE III	77
	3.1	Preser	itation de l'expérience satellitaire SAGE III	77
		3.1.1	L'héritage de SAGE III	77
		3.1.2	Description du spectromètre SAGE III	78
		3.1.3	Géométrie d'observation	85
		3.1.4	Calibration des transmissions	85
	3.2	La mo	odélisation : première étape avant l'inversion	86
		3.2.1	Introduction	86
		3.2.2	Un cas idéal : une atmosphère à couches homogènes	86
		3.2.3	Expression de la transmission à une altitude tangente	87
	3.3	L'algo	rithme d'inversion de SAGE III	92
		3.3.1	Objectifs de l'inversion	92

n in The s		3.3.2	Principes de l'inversion "dans les bandes résolues"	۰. ۲
		3.3.3	Inversion spatiale	r
		3.3.4	Inversion spectrale	i,
		3.3.5	Estimation des incertitudes	r
		3.3.6	Préser :ation de la méthode d'inversion globale	,
	3.4	Résul	tats	
		3.4.1	Application de l'inversion dans les bandes résolues	,
		3.4.2	Analyse des résultats pour les constituants minoritaires	ł
		3.4.3	Choix de l'inversion spatiale	•
		3.4.4	Exploration de l'espace	
	3.5	Applie	ation à des modèles d'atmosphères variés	
		3.5.1	Modélisation des huit atmosphères	
		3.5.2	Résultats de l'inversion sans les incertitudes	
		3.5.3	Influence de l'incertitude sur les profils de transmission	
		3.5.4	Influence de l'incertitude sur le profil de température	
	3.6	Concl	usions	
4	Ap	plicatic	on aux mesures ballon AMON et SALOMON	
	4.1	Applio	ation aux mesures AMON	
		4.1.1	Description de l'instrument AMON	
		4.1.2	Campagne de mesures AMON du 27 Février 1997	
		4.1.3	Présentation succincte de l'algorithme d'inversion du LPCE	
		4.1.4	Adaptation de l'algorithme de SAGE III pour les mesures ballons	
		4.1.5	Application aux mesures réelles de AMON	
		4.1.6	Conclusion des résultats préliminaires des mesures AMON	
	4.2	Applic	ation aux mesures SALOMON	
		4.2.1	Présentation de l'expérience SALOMON	
		4.2.2	Campagne de mesures SALOMON du 22 Février 2000	
		4.2.3	Résultats	
		4.2.4	Dépendance spectrale des cœfficients d'extinction des aérosols	
	4.3	Conclu	isions	
Co	onclu	ision G	énérale	1
GI	lossa	ire des	symboles	ſ
	- 261 - 24 - 24 - 24 -	and the state of the state of the state		

10	Table des matières
Publications	235
Article 1: An Overview of LOA SAGE III Inversion Algorithm	237
Article 2: Inference of nitrogen trioxide and chlorine dioxide	profile from
simulated SAGE III transmission measurements	243
Article 3 : SAGE III measurements : a study on the retrieval of or	zone, nitrogen
dioxide and aerosol extinction coefficients	255
Article 4: Applications of SAGE III Inversion algorithm to SAI	LOMON mea-
surements	287
Bibliographie	301

# Liste des acronymes utilisés

AMON	Absorption par Minoritaires Ozone et NOx
CCD	Charge-Coupled Device
CCN	Cloud Condensation Nuclei
CMS	Composés Minoritaires Stratosphériques
CNE:	Centre National d'Etudes Spatiales
CNRS	Centre National de la Recherche Scientifique
DOAS	Differential Optical Absorption Spectroscopy
ECC	Electrochimical Concentration Cell
ENSO	El Nino Southern Oscillation
FTS	Fourier Transform Spectrometer
GES	Gaz à Effet de Serre
GEISA	Gestion et Etudes des Informations Spectroscopiques Atmosphériques
GIEC	Groupe d'Experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat
GPS	Global Positioning System
HITRAN	HIgh-resolution TRANSsmission molecular absorption database
IFOV	Instantaneous Field of View
ILAS	Improved Limb Atmospheric Spectrometer
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change
ISS	International Space Station
R	Infra-Red / Infrarouge
LaRC	Langley Research Center, Hampton (USA)
LIDAR	Light Detection And Ranging
LND	Log-Normal Distribution
LOA	Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Lille (France)
LPCE	Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement, Orléans (France)

Acronymes

LPMA	Limb Profile Monitor of the Atmosphere
MiPLaSMO	Microphysical and Photochemical Langrangian Stratospheric Model of Ozone
MZA	Moon Zenith Angle
NASA	National Aeronautics and Space Administration
NAT	Nitric Acid Trihydrate
NCEP	National Center for Environmental Prediction
OHP	Observatoire de Haute Provence, Forcalquier (France)
ppbv	Partie par milliard en volume (10 <sup>-9</sup> )
ppmv	Partie par million en volume $(10^{-6})$
pptv	Partie par trillion en volume $(10^{-12})$
POAM	Polar Ozone and Aerosol Measurement
PSC	Polar Stratospheric Cloud
SAGE	Stratospheric Aerosol and Gas Experiment
SALOMON	Spectrométrie d'Absorption Lunaire pour l'Observation des Minoritaires
	Ozone et NOx
SAM	Stratospheric Aerosol Measurement
SAOZ	Système d'Analyse par Observation Zénithale
SAT	Sulfuric Acid Tetrahydrate
STS	Supercooled Ternary Solution
SZA	Star Zenith Angle
TOMS	Total Ozone Mapping Spectrometer
UV	Ultraviolet
VEI	Volcanic Explosivity Index

# Introduction

L'atmosphère de la Terre est un système complexe en perpétuelle évolution résultant de nombreux couplages entre les différentes composantes de l'environnement : atmosphère, cryosphère, hydrosphère et biosphère, composantes en interaction entre elles et avec le rayonnement solaire. L'équilibre thermique de la Terre est donc assuré par les échanges d'énergie et de matières, notamment de dioxyde de carbone, de vapeur d'eau et d'ozone, entre ces différents compartiments.

L'ozone est un composant mineur de l'atmosphère, pourtant il y joue un rôle essentiel de bouclier protecteur de la biosphère terrestre contre l'action abiotique des plus dangereux rayonnements UV. L'équilibre de l'ozone est régi par de nombreux couplages physicochimiques, impliquant, outre le rayonnement solaire, de nombreux constituants très peu abondants. Ainsi une variation de ces constituants d'un milliardième de la concentration totale suffit pour influencer chimiquement la concentration d'ozone, et par conséquent tout l'équilibre de l'atmosphère.

Or, ces dernières décennies, à la suite de l'accélération des progrès technologiques, de l'expansion des activités humaines et agricoles, et de l'accroissement des transports et de l'utilisation des combustibles fossiles, l'atmosphère de la Terre a subi une évolution très rapide. L'emprise de l'homme sur la nature a donc changé d'échelle et perturbe les nombreux échanges naturels qui ont toujours existé depuis des millions d'années. Les nouvelles interactions complexes risquent de conduire l'atmosphère terrestre vers un nouvel équilibre dont nous anticipons mal la nature. Ceci vient du fait que notre compréhension du système couplé atmosphère - océan - biosphère est encore incomplète tant en ce qui concerne le système dans son ensemble que les sous-systèmes pris séparément.

Néanmoins, la prise de conscience des changements globaux a conduit à une multiplica-

tion des observations et de mesures satellitaires en vue de déterminer la composition atmosphérique, avec notamment l'obtention de profils verticaux des composants atmosphériques permettant de quantifier les échanges entre les différents sous-systèmes. La nécessité d'une continuité temporelle et d'une couverture géographique uniforme sur tout le globe a fait qu'en 30 ans, les mesures optiques satell'taires sont devenues d'une importance majeure pour la communauté scientifique.

Qui dit mesure optique, dit mesure des spectres. Pour retrouver les profils de concentration des espèces moléculaires, nous inversons d'abord l'équation du transfert radiatif. Ensuite, nous devons séparer les contributions des différentes espèces et la difficulté majeure réside dans la gamme très étendue des concentrations des différentes espèces dont l'ordre de grandeur des rapports peut varier parfois jusqu'à plus de 1000. Comment restituer au mieux toutes ces molécules, les espèces cibles comme les espèces interférentes, en préservant l'information sur les moins abondantes? Le choix de l'instrument est critique ainsi que la formulation de la méthode d'inversion des mesures. Les méthodes d'inversion sont au cœur des préoccupations des expérimentateurs réalisant des mesures à distance dans l'atmosphère.

Qu'est ce qu'une bonne méthode d'inversion? C'est celle qui permet d'obtenir une reconstitution aussi fidèle que possible des profils verticaux des concentrations des constituants tout en prenant en compte les incertitudes sur les paramètres d'entrée et les erreurs des mesures, et en intégrant la connaissance a priori disponible sur le système. Les exigences sont nombreuses et il n'existe pas de méthode d'inversion idéale. Les plus robustes d'entre elles font appel à la théorie des probabilités. Mais les méthodes d'inversion continuent à se développer en fonction des nouveaux instruments disponibles : elles nécessitent une étroite collaboration entre physiciens et mathématiciens tout en concernant de nombreux domaines ne relevant pas strictement de la recherche atmosphérique.

Le premier chapitre de cette thèse rassemble quelques-unes des principales connaissances actuelles sur l'évolution et la composition de l'atmosphère; ozone, gaz à effet de serre, aérosols y sont analysés. Le rôle fondamental de l'ozone dans la stratosphère et les processus de destruction des molécules d'ozone au-dessus des pôles font l'objet d'une description détaillée. Finalement, on donnera un bref aperçu de l'impact de l'ozone troposphérique sur la biosphère. La partie "aérosol" de ce chapitre est consacrée aux définitions de quelques uns des

#### Introduction

paramètres physico-chimiques les plus pertinents, qui seront mentionnés à plusieurs reprises dans le manuscrit ; abondance, composition chimique, granulométrie..

Le deuxième chapitre a pour thème majeur l'optique atmosphérique. Il est divisé en trois parties indépendantes : la première récapitule quelques unes des grandeurs physiques qui vont servir à l'élaboration de l'algorithme d'inversion ; les principales théories de la diffusion du rayonnement y sont aussi présentées. La deuxième partie constitue un rappel des techniques spectroscopiques utilisées pour l'étude de l'atmosphère ; les principaux moyens de mesure des constituants atmosphériques y seront présentés. Enfin, la troisième partie est consacrée à une synthèse globale des différentes banques de données concernant les sections efficaces d'absorption des principaux constituants stratosphériques ; une analyse plus approfondie pour certains d'entre eux est également proposée.

Le troisième chapitre décrit l'algorithme d'inversion dit "dans les bandes résolues" de SAGE III. Il se décline en 5 parties : la première présente les caractéristiques de l'instrument SAGE III ; la deuxième, le développement de la modélisation des épaisseurs optiques à partir d'une atmosphère a priori connue ; la troisième, l'algorithme d'inversion dans les bandes résolues de SAGE III. Parallèlement, une présentation est proposée de l'algorithme d'inversion dit "globale", destiné aux mesures de SAGE II et de POAM II-III, qu'on a adapté aux mesures de SAGE III. Dans la quatrième partie, on présente les premiers résultats des inversions, résultats également publiés sous forme d'articles. La cinquième et dernière partie termine ce chapitre par une estimation de la qualité de l'algorithme d'inversion avec des simulations portant sur différents types d'aérosols, différentes distributions verticales et des granulométries variées. L'efficacité du concept d'une inversion menée sur des bandes résolues nous a conduit à la mise en place d'un nouvel algorithme d'inversion, dit "combiné", résultat d'une fusion entre deux méthodes d'inversion : les premiers résultats, fruits d'un travail plus collectif qu'individuel, sont présentés en fin de ce chapitre et ont conduit à un article publié.

Le quatrième et dernier chapitre est consacré à l'adaptation de l'algorithme d'inversion de SAGE III pour des mesures ballons, réalisées lors de deux expériences, menées par l'équipe du Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement (LPCE) d'Orléans : les expériences AMON et SALOMON. La possibilité d'accéder à ces données nous a permis d'estimer la fiabilité de notre algorithme d'inversion par comparaison avec les résultats obtenus par une autre méthode d'inversion mise en œuvre au LPCE. Aussi ce dernier chapitre est-il divisé en deux parties, chacune étant consacrée à l'une des deux expériencer "ballon". La première commence par une étude préliminaire de l'inversion des profils d'épaisseur optique simulés : elle permet de valider l'approche choisie de l'algorithme d'inversion dans les bandes résolues de SAGE III adapté aux mesures réelles des épaisseurs optiques AMON. Quant à la deuxième, elle expose l'inversion des mesures des épaisseurs optiques réelles de SALOMON. Ce chapitre s'achève par une comparaison des variations spectrales des cœfficients d'extinction obtenus par ces deux méthodes d'inversion ainsi que par une comparaison entre les différentes propriétés sysiques et optiques des aérosols obtenues.

# Chapitre 1

# L'Atmosphère terrestre et l'ozone: Les enjeux, le futur...

## 1.1 Origine et composition de l'atmosphère

Du grec  $\alpha \tau \mu o \sigma$  (vapeur), le mot atmosphère désigne la mince pellicule gazeuse qui enveloppe la Terre. Sous l'effet de la force de gravité terrestre, l'extension verticale de l'atmosphère dépasse à peine 5 pour mille du rayon terrestre : la quasi totalité de la masse atmosphérique est concentrée dans les 30 premiers kilomètres d'altitude. C'est pourtant cette ténue enveloppe transparente qui sépare la surface terrestre, où se développe la vie animale et végétale, de l'espace vide et inhospitalier.

#### 1.1.1 Naissance de l'atmosphère

L'apparition de l'atmosphère de la Terre est consécutive à la formation de la Terre, il y a 4,5 milliards d'années. L'atmosphère primitive était majoritairement formée de dioxyde de carbone, de vapeur d'eau et d'azote, avec des traces d'ammoniac, de dioxyde de soufre, de méthane et de chlorure d'hydrogène [Allègre et Schneider, 1996]. C'etait une atmosphère fortement réductrice, ne contenant pas d'oxygène nécessaire à la respiration cellulaire [Duplessy, 1996]. 80 à 85 % de ces gaz primitifs étaient produits par le dégazage des couches internes de la planète durant sa formation pendant le premier million d'années. Ce processus se perpétue encore de nos jours, via les éruptions volcaniques [Berger, 1994; Allègre et Schneider, 1996]. Au comme du lent refroidissement de la Terre, la vapeur d'eau contenue dans l'atmosphère s'est concensée, créant les océans, qui recouvrent actuellement 71% de la surface terrestre. La mise en route du moteur du cycle hydrologique est alors enclenchée. A son tour, le  $CO_2$ atmosphérique se serait dissous dans l'eau de pluie et transformé sous forme de carbonates, constituant les roches sédimentaires. Selon une autre hypothèse émise par Lovelock, Volk et Schwartzman, dite Hypothèse de Gaia, le  $CO_2$  aurait été soit biologiquement éliminé par les micro-organismes photosynthétiques, soit dissous par les bactéries via la dégradation des molécules organiques. La question de l'apparition du cycle du carbone pèse encore sur le débat de l'évolution de la composition de l'atmosphère: la fixation du  $CO_2$ , en maintenant son niveau dans des limites compatibles avec la vie, fut une étape fondamentale dans l'apparition de l'oxygène et une condition sine qua non pour l'éclosion de la vie, un milliard d'années après la naissance de la Terre [Labeyrie, 1993; Allègre et Schneider, 1996].

Ainsi s'organisèrent, au fond des oécans, de nouvelles réactions chimiques plus complexes combinant méthane, ammoniac, vapeur d'eau et gaz carbonique constituant une soupe primitive de molécules organiques. Protégées par leur environnement, ces molécules, de plus en plus évoluées, vont créer les premières cellules, puis les premiers organismes précurseurs de l'apparition des organismes pluri-cellulaires. Les premières plantes primitives océaniques, les algues bleues, créent le premier mode de photosynthèse et rejetent de l'oxygène moléculaire : il faudra plusieurs centaines de millions d'années pour que l'oxygène commence à s'accumuler à l'état libre dans l'atmosphère [Duplessy, 1996; Allègre et Schneider, 1996]. Dès l'apparition des premières molécules de  $O_3$  produites par la photodissociation des molécules d'oxygène, l'ozone commence à filtrer les rayonnements UV destructeurs. L'ozone a donc contribué à établir des conditions environnementales nécessaires à l'apparition des premiers organismes sur les terres émergées, et finalement, des premiers hominidés [Labeyrie, 1993].

#### 1.1.2 Composition de l'atmosphère

L'air de l'atmosphère terrestre actuelle est principalement composé à 99,95% par trois gaz majeurs; l'azote  $N_2$  (~ 78%), l'oxygène  $O_2$  (~ 21%) et l'argon Ar (~ 0.95%) [Seinfeld et Pandis, 1997]. Ces concentrations sont déterminées par des processus biologiques et géologiques, restés constants depuis des millénaires : l'activité humaine n'a donc pas pu jusque là affecter ces concentrations de manière significative [Crutzen, 1994]. Le quatrième constituant de l'atmosphère par ordre d'abondance est la vapeur d'eau, dont la concentration très variable est régie par le taux de précipitation et d'évaporation dans la basse atmosphère. Mais ces

#### Origine et composition de l'atmosphère

Gaz	Teneur Relative (ppmv)	Cycle
Ar	9340	Pas de cycle
Ne	18	
Kr	1,1	
Xe	0.09	
N2	780840	Biologique et microbiologique
<i>O</i> 2	209460	Biologique et microbiologique
CH4	1.72	Biogénique et chimique
$CO_2$	365	Anthropique et biogénique
CO	0.12 - 0.06	Anthropique et chimique
$H_2$	0.58	Biogénique et chimique
N2C7	0.311	Biogénique et chimique
$SO_2$	$10^{-5} - 10^{-4}$	Anthropique, biogénique et chimique
NH <sub>3</sub>	$10^{-4} - 10^{-3}$	Biogénique et chimique
NO, NO2	$10^{-6} - 10^{-2}$	Anthropique, biogénique et chimique
<i>O</i> 3	$10^{-2} - 10^{-1}$	Chimique
$H_2O$	Variable	Physicochimique
He	5.2	Désintégrations radioactives dans l'écorce
		Exploitation du gaz naturel

TAB. 1.1 – Teneur relative et origine des principaux gaz atmosphériques [D'après Seinfeld et Pandis, 1997].

quatre constituants n'assurent pas à eux seuls l'équilibre et le maintien de la biosphère. Les autres espèces gazeuses, dont la concentration totale ne dépasse pas 0.05%, jouent aussi un rôle important pour la physico-chimie dans l'atmosphère (Table 1.1). Parmi ces gaz, il existe des espèces minoritaires, les gaz à effet de serre (GES) qui possèdent des propriétés radiatives qui les conduisent à piéger le rayonnement infrarouge émis par la surface de la Terre. En filtrant le rayonnement solaire et/ou en créant un effet de serre substantiel, ces molécules déterminent une température de surface supérieure au point de congélation de l'eau et créent les conditions environnementales nécessaires au maintien de la vie sur Terre. Ainsi, sans la présence des GES dans l'atmosphère, la température d'équilibre à la surface de la Terre serait de -18 à -15 °C [Mégie, 1992; Berger, 1996]. Les GES naturels (le dioxyde de carbone  $CO_2$ , la vapeur d'eau  $H_2O_{vap}$ , le méthane  $CH_4$ , l'ozone  $O_3$  et les composés azotés  $NO_x$ ) ont toujours contribué à l'effet de serre naturel depuis des millénaires. La concentration des GES est

	$CO_2$	$CH_4$	$N_2O$	CFC - 11	HFC - 23	$CF_4$
Concentration 1750	~ 280 ppm	~ 700 ppb	~ 270 ppb	0	0	40 ppt
Concentration 1998	365 ppm	1745 ppb	314 ppb	268 ppt	14 ppt	80 ppt
Accroissement sur la						
période (1990-1998)	1.5 ppm/an	7.0 ppb/an	0.8 ppb/an	-1.4 ppt/an	0.55 ppt/an	1 ppt/an
Temps de résidence						
atmosphérique moyen	5 à 200 ans	12 ans	114 ans	45 ans	260 ans	$\geq 50\ 000\ \mathrm{ans}$

TAB. 1.2 – Principaux gaz à effet de serre, dont les concentrations sont affectées par les activités humaines [IPCC, 2001].

exprimée en ppmv (partie par million en volume), une unité définie pour les concentrations gazeuses très faibles. Le ppmv correspond à une abondance relative de 1 millionième, soit 1 molécule de gaz trace pour 10<sup>6</sup> molécules d'air (dans un volume donné).

#### **1.2** La balance thermique de la Terre

La balance thermique de la Terre est dite à l'équilibre lorsque le flux de l'énergie solaire entrante est globalement compensé par un flux égal du rayonnement tellurique sortant. Tout apport énergétique pour le système climatique, ou l'une de ses composantes, est appelé forcage radiatif du système climatique, exprimé en  $W/m^2$ . Si le forçage radiatif est positif, il pousse le climat de la Terre vers un nouvel état d'équilibre plus chaud. Lorsque le forçage radiatif est négatif, le climat sera plus froid.

#### 1.2.1 L'accroissement des gaz à effet de serre

Des observations récentes font état d'une importante augmentation directe ou indirecte des concentrations des gaz à effet de serre (GES) et de polluants dans l'atmosphère résultant des activités humaines (Tableau 1.2) [IPCC, 2001]. L'augmentation des émissions anthropiques, qui a débuté dans le milieu du 19e siècle avec la révolution industrielle et technologique, provient de plusieurs sources: activités industrielles, pression démographique et urbaine, pratiques agricoles, production énergétique, développement des transports [Pacyna, 1594; Berger, 1994] ...

Depuis la période pré-industrielle (1750), la concentration du  $CO_2$  s'est accrue de 30 %, celle du méthane de 150 % et celle du protoxyde d'azote ( $N_2O$ ) de 16 %, sans oublier les augmentations des concentrations du monoxyde de carbone (CO), des oxydes d'azote



FIG. 1.1 – Estimation du forçage radiatif induit par les gaz à effet de serre (60% CO2, 20% CH<sub>4</sub>, 14% CFC et 6% NO<sub>x</sub>), l'ozone et les différents types d'aérosols. Cette figure récapitule l'état des connaissances actuelles sur le forçage radiatif du changement climatique depuis la période pré-industrielle. Le niveau de connaissance scientifique (Level of Scientific Understanding), qui caractérise les incertitudes actuelles sur la valeur du forçage radiatif, est légendé par H (High), M (Medium), L (Low) et VL (Very Low) [IPCC, 2001; Haywood et Boucher, 2000].

 $(NO_x)$ , du dioxyde de soufre  $(SO_2)$ , des hydrocarbures non méthaniques (NMHCs) et des chlorofluorocarbones (CFC) [Jouzel et Hauglustaine, 2000; Crutzen, 1994].

La conséquence de ces perturbations engendrées par les activités humaines est une modification profonde de la composition chimique atmosphérique, notamment la modification du pouvoir photo-oxydant de la troposphère [Mégie, 1996] et la dégradation de l'environnement à l'échelle locale, régionale et globale [Pacyna, 1994].

#### 1.2.2 Rôle climatique des gaz à effet de serre

L'augmentation des GES modifie l'efficacité du transfert de rayonnement tellurique vers l'espace : ce forçage radiatif est positif dans la '  $_{A}$  e atmosphère, et conduit à un refroidissement radiatif de la stratosphère (voir nomenclature Figure 1.2). Ce forçage dépend du taux d'émission des GES et du temps de résidence de ceux-ci dans l'atmosphère. Comme le tern ps de résidence des GES se chiffre en décennies, leur homogénéisation à l'échelle planétaire s'en trouve favorisée, grâce aux circulations atmosphériques. S'ils sont chimiquement stables dans la troposphère, ils finissent par atteindre la stratosphère. Plus le temps de résidence d'une espèce moléculaire est important (notamment  $CO_2$ ,  $CH_4$  et CFC), plus celle-ci va s'accumuler dans l'atmosphère avant destruction par un processus naturel (chimique ou photochimique). A cause de l'inertie du système climatique, l'effet de forçage des GES va mettre plusieurs décennies avant de se traduire complètement par un réclauffement climatique [Andrer : 1996]. En outre, le forçage radiatif des GES s'excerce nuit et jour, sous n'importe quelles conditions météorologiques (temps clair ou nuageux).

Le for, age positif des GES anthropiques s'ajoute à celui des GES *naturels*. Et l'évolution des concentrations des GES n'est pas près de s'arrêter dans les prochaines décennies, comme le montre la figure 1.3. Au rythme des augmentations actuelles des émissions anthropiques, les GES représenteraient un facteur déterminant dans la perturbation de la chimie atmosphérique et dans celle du bilan thermique du système Terre-Atmosphère, et par voie de conséquence, dans tout le climat global futur [Hauglustaine et al., 1994].



FIG. 1.2 - Nomenclature des régions atmosphériques [Mégie, 1992]



FIG. 1.3 – Tendance des émissions pour  $CO_2$ ,  $N_2O$ ,  $CH_4$ , CFC et chlorine Cly, sur la base des projections IPCC [Shindell et al., 1998].

### 1.3 Les aérosols, ces par Jules casse-tête

#### 1.3.1 Définitions générales, origines ...

Ici, le mot aérosol désigne toute particule micronique ou submicronique, en phase liquide ou solid, en suspension dans l'atmosphère. Cette convention exclut les gouttelettes d'eau et les cristaux de glace. Leurs sources sont soit primaires (processus mécaniques) soit secondaires (transformation de la phase gazeuse en phase particulaire).

Les origines des aérosols sont diverses : naturelle, industrielle, volcanique ... Cela va des particules sulfatées, produites par l'oxydation du  $SO_2$  émis par les sources naturelles ou anthropiques au dessus des régions industrielles, à des poussières minérales, aéroportées dans l'atmosphère par l'action des vents au dessus des régions arides et semi-arides, en passant par les particules carbonées, constituées de matière organique et de suie, libérées par les incendies des forêts et des savanes.

#### 1.3.2 Les aérosols stratosphériques

Les aérosols stratosphériques sont pour grande parti : issus de la conversion 3az-à-particules, notamment l'exydation du dioxyde de soufre gazeux  $SO_2(g)$  et de ses composés conduisant à la formation des particules d'aérosols sulfatés. Ces particules sont des solutions aqueuses d'acide sulfurique composées approximativement de 75% d'acide  $H_2SO_4$  et de 25% d'eau [Tl.omason et Poole, 1993; Lenoble, 1993]. Une fois les aérosols d'acide sulfurique formés, ils vont intervenir dans la formation des nuages stratosphériques polaires (PSC) et jouer un rôle déterminant dans les réactions hétérogènes dans la stratosphère (Voir paragraphe 1.4.4). Le temps de résidence moyen de ces aérosols stratosphériques est d'une année, à comparer avec le temps de résidence de l'ordre d'une semaine pour les aérosols troposphériques.

Emissions naturelles Les émissions du  $SO_2(g)$  proviennent principalement des éruptions volcaniques et des sources biologiques, à travers la dégradation microbienne qui libère dans l'atmosphère des particules de soufre organiques, notamment le DMS (sulfure de diméthyle, de formule  $CH_3SCH_3$ ).

Les éruptions volcaniques peuvent injecter des composés soufrés directement dans la stratosphère où ils sont transformés en aérosols sulfatés. Majoritairement composés de  $SO_2$  et de HCl, avec des gaz volatils  $HF, HBr, H_2S, CO \dots$ ) dans des proportions à l'état de traces, les gaz volcaniques sont variables d'un volcan à un autre : ils dépendent

24

\$

Je la nature de l'éruption [Coffey, 1996]. Chaque éruption volcanique est caractérisée par un indice d'explosivité volcanique (volcanic explosivity index, VEI), qui représente leur puissance d'éjection de molécules de gaz soufrés. Les indices VEI s'échellonnent depuis 0 à 8, 0 représentant le plus faible indice d'explosivité. Si l'indice VEI dépasse 3, les émissions volcaniques sout susceptibles d'atteindre la stratosphère et d'y modifier les processus chimiques et radiatifs [Coffey, 1996]. Approximativement 12% à 30% des gaz émis par les panaches des volcans atteignent la stratosphère. Mais il est extrêmement difficile d'estimer la quantité d'aérosols d'acide sulfurique produite dans la stratosphère car les éruptions volcaniques sont épisodiques [McCormick et Veiga, 1992; Berger, 1996]. Bluth et al. [1992] estiment la quantité de SO2 libérée par le volcar. El Chichon (Avril 1982) à 7 Mégatonnes, et celle émise par l'éruption du volcan Mont Pinatubo (Juin 1991) à 19 Mégatonnes. Mais il est difficile d'estimer la quantité de  $SO_2(g)$  convertie sous forme de particules d'aérosols d'acide sulfurique  $(H_2SO_4/H_2O)$ . Sur la base des mesures de SAGE II<sup>1</sup>, McCormick et Veiga [1992] estiment à 12 Mégatonnes d'aérosols d'acide sulfurique produits dans la stratosphère par l'éruption d'El Chichòn, et de 20 à 30 Mégatonnes pour celle du Mont Pinatubo. La concentration de ces aérosols volcaniques décroît progressivement avec leur sédimentation : le retour à la "normale" met environ deux années mais la composition de la stratosphère reste en permanence influencée par ces émissions volcaniques même si elles sont sporadiques [Seinfeld et Pandis, 1997].

Emissions anthropiques Les émissions anthropiques de  $SO_2$ , issues de la "umbustion des énergies fossiles, comptent pour 34% du flux total de  $SO_2$  atmosphérique culémissions sont surtour concentrées dans l'hémisphère Nord [Möller, 1996]. Les avions produisent des émissions de suie, d'oxydes d'azote  $NO_x$  et d'oxydes de soufre  $SO_x$ , dans la troposphère et la basse stratosphère (de 9 à 13 km). De plus, les rejets des avions influencent les concentrations des GES (notamment le  $CO_2$ ,  $O_3$  et  $CH_4$ ) et favorisent la formation des cirrus : ils induisent un forçage radiatif supplémentaire, principalement localisé dans l'hémisphère Nord [GIEC, 1919].

#### 1.3.3 Caractéristiques physiques

Le diamètre des particules d'aérosols couvre un large domaine de taille, depuis quelques nanomètres jusqa'à 100  $\mu$ m. Leur composition chimique détermine, entre autres, leur indice

1. SAGE II: Chapitre 3 - paragraphe 3.1.1

Chapitre 1

Taille	$\tau \leq 0.1 \mu m$	$0.1\mu m \leq r \leq 1\mu m$	$r \gg 1 \mu m$
Junge [1963]	Particules d'Aitken	Particules grosses	Particules géantes
Whitby [1978]	Mode de nucléation	Mode d'accumulation	Mode grossier
Formation	Particules issues	Particules issues des combustions	Particules issues des processus mécaniques,
	des processus	(transport, énergie, brûlis)	érosions des sols (agriculture, mines),
	photochimiques	sulfates (anions $SO_4^-$ )	poussières minérales aéropoliées (Sahara),
		issues des émissions de SO2,DMS	source biologique (pollens),
		(sulfure de diméthyle) produit par	embruns marins, cendres volcaniques,
		le phytoplancton	poussières industrielles
Dissipation	Agrégation	Lessivage	Sédimentation

TAB. 1.3 – Classification des particules d'aérosols selon Junge et Whitby avec les principaux processus de formation et de dissipation pour chaque classe de taille des aérosols [Flossmann et Laj, 1998].

de réfraction.

La concentration verticale de particules d'aérosols stratosphériques dépend de leur taille et décroît avec l'altitude. Néanmoins il existe un maximum de concentration dans la basse stratosphère. L<sub>1</sub> majorité des aérosols se situe dans la troposphère où les concentrations atteignent des valeurs entre 10 et  $10^5 cm^{-3}$  [Flossmann et Laj, 1998]. Dans la stratosphère, autour de 20 km, il existe une couche qu'on appelle *couche d'aérosol de Junge* d'épaisseur moyenne de 5 à 10 kilomètres, où l'on trouve des concentrations maximales de particules entre 1 et 10  $cm^{-3}$  [Junge et Manson, 1961].

On distingue trois différents modes de taille des aérosols: le mode grossier (particules d'un diamètre supérieur à 1  $\mu$  m), le mode d'accumulation (particules de diamètres de l'ordre de 1/10  $\mu$ m) et le mode fin ou mode de nucléation (particules de l'ordre du 1/100  $\mu$ m) (Tableau 1.4). Ces trois modes sont différents par leur durée de résidence dans l'atmosphère.

#### 1.3.4 Distribution en taille des aérosols

Les caractéristiques physiques des aérosols stratosphériques sont en général décrites en terme de distribution en taille : c'est une fonction analytique permettant de représenter une population d'aérosols. Ces fonctions sont semi-empiriques et sont choisies parce qu'elles reproduisent raisonnablement bien les formes des distributions observées dans l'atmosphère [Seinfeld et Pandis, 1997]. L'expression mathématique de distribution en taille la plus usitée



FIG. 1.4 – Exemple de distribution en taille des aérosols avec le modèle Log-normal pour  $\sigma_g$ = 1.25 (fin:  $r_m = 0.01 \ \mu m$ ; accumulation:  $r_m = 0.06 \ \mu m$ ; grossier:  $r_m = 1. \ \mu m$ )

est la loi Log-normale ou LND:

$$\mathbf{n}(\mathbf{r}) = \frac{dN(r)}{dr} = \frac{N_o}{\sqrt{2\pi}r\ln\sigma_g} \exp\left[-\frac{\ln^2(r/r_m)}{2\ln^2\sigma_g}\right]$$
(1.1)

Où  $\frac{dN(r)}{dr}$  est le nombre de particules par unité de volume, dont les rayons sont compris entre r et r + dr (en  $\mu$ m);  $N_o$  est la concentration totale des aérosols en  $cm^{-3}$ ;  $r_m$  est le rayon médian, caractéristique globale de la distribution en taille des particules [Lenoble, 1993]. La grandeur  $\sigma_g$ , dite largeur de la courbe lognormale, est la déviation standard géométrique z la distribution en taille des aérosols [Seinfeld et Pandis, 1997]. Pour l'étude des aérosols stratosphériques de fond, qui sont présents en permanence dans l'atmosphère, c'est cette loi qu'on utilisera plus particulièrement dans cette thèse.

De manière générale, deux paramètres sont nécessaires pour définir une distribution de taille monomodale (à un seul mode). Dans le cas des distributions multimodales, où deux ou plusieurs modes sont représentés, il faudra plusieurs paramètres pour représenter l'ensemble de la population d'aérosols. La distribution multimodale s'obtient alors par addition des différentes distributions monomodales. Pour décrire une distribution en taille, Hansen et Hovenier [1974] introduisent d'autres paramètres:  $r_{eff}$  et  $v_{eff}$ . En effet, une sphère de rayon r diffuse une quantité de lumière proportionnelle à sa section  $\pi r^2$ . Donc le rayon effectif  $r_{eff}$  est défini par:

$$r_{eff} = \frac{\int_{r_1}^{r_2} r \pi r^2 \mathbf{n}(\mathbf{r}) dr}{\int_{r_1}^{r_2} \pi r^2 \mathbf{n}(\mathbf{r}) dr}$$
(1.2)

De la même manière, le paramètre caractérisant la largeur de la distribution en taille, la variance effective associée  $v_{eff}$ , s'écrit :

$$v_{eff} = \frac{\int_{r_1}^{r_2} (r - r_{eff})^2 \pi r^2 \mathbf{n}(\mathbf{r}) dr}{r_{eff}^2 \int_{r_1}^{r_2} \pi r^2 \mathbf{n}(\mathbf{r}) dr}$$
(1.3)

Ces paramètres sont plus représentatifs des propriétés diffusantes des particules d'aérosols et peuvent remplacer les deux paramètres  $r_m$  et  $\sigma_g$  pour caractériser une population d'aérosols.  $r_{eff}$  et  $v_{eff}$  peuvent être reliés aux paramètres de la distribution log-normale  $r_m$  et  $\sigma_g$  [Lenoble et Brogniez, 1985; Brogniez et Lenoble, 1988]:

$$v_{eff} = \exp(\ln^2 \sigma_g) - 1 \tag{1.4}$$

$$r_{eff} = r_m \, \exp\left(2.5 \ln^2 \sigma_g\right) \tag{1.5}$$

Les valeurs typiques de  $v_{eff}$  peuvent s'échelonner entre 0.1 et 1.0, avec des valeurs caractéristiques voisines de 0.25 pour les aérosols de fond et de 0.5 pour les aérosols volcaniques [Lenoble et Brogniez, 1985].

On peut définir la densité de surface S et la densité de volume V d'une distribution n(r) par :

$$S = \int_0^\infty (4\pi r^2) \mathbf{n}(\mathbf{r}) dr \tag{1.6}$$

$$V = \int_0^\infty (\frac{4}{3}\pi r^3)\mathbf{n}(\mathbf{r})dr \tag{1.7}$$

La détermination de la densité de surface et de la densité de volume des aérosols permet de modéliser les réactions chimiques hétérogènes à la surface ou à l'intérieur des particules d'aérosols : une augmentation de la surface des particules d'aérosols, le plus souvent consécutive à une éruption volcanique, entraîne une hausse de l'activité des réactions chimiques hétérogènes [Crutzen et Arnold, 1986], comme celles qui ont lieu sur les PSC [Poole et Mc Cormick, 1988; Seinfeld et Pandis, 1997](Paragraphe 1.4.4). Les aérosols de fond stratosphériques ont une densité de surface moyenne entre 0.5 et 1  $\mu m^2 cm^{-3}$ . Après l'éruption du Mont Pinatubo, les valeurs de densité de surface des aérosols stratosphériques, aux latitudes moyennes, ont augmenté jusqu'à 20  $\mu m^2 cm^{-3}$ , voire plus (35  $\mu m^2 cm^{-3}$ ) 5 mois après l'éruption [Seinfeld et Pandis, 1997].

#### **1.3.5** Effet direct et indirect des aérosols

Contrairement aux gaz à effet de serre, qui agissent uniquement sur le flux d'énergie sortant, les particules d'aérosols peuvent influencer simultanément les deux côtés de la balance d'équilibre radiatif de la Terre: leur forçage est complexe car il dépend des propriétés optiques des aérosols [Seinfeld et Pandis, 1997].

Aérosols troposphériques Leur particularité est de présenter une répartition géographique hétérogène sur l'ensemble du Globe: en effet, leur temps de résidence dans la troposphère se chiffrant en jours, les aérosols troposphériques ne peuvent pas se déplacer vers la stratosphère, et, donc le forçage troposphérique dépend du point d'émission des sources anthropiques avant que les particules ne soient transportées et disparaîssent par lessivage ou sédimentation [Seinfeld et Pandis, 1997].

A cause de leurs propriétés hautement diffusantes, les particules d'aérosol du mode d'accumulation sont intéressantes d'un point de vue climatique : elles interagissent avec le rayonnement solaire et tellurique. Elles refroidissent l'atmosphère en renvoyant une partie de ce rayonnement vers l'espace. Dans la partie visible du spectre, l'effet de diffusion de la lumière domine et les aérosols exercent un effet de refroidissement global ; dans les régions de l'infrarouge, les particules d'aérosols constituent des absorbants et se comportent comme les gaz à effet de serre. C'est l'*effet direct* induit par les aérosols.

Les aérosols sont à l'origine de la formation des nuages. Les particules hydrophiles, notamment les particules sulfatées, servent de noyaux de condensation (CCN, *Cloud Condensation Nucleii*) sur lesquels la vapeur d'eau se condense, créant les nuages. Les aérosols contrôlent les propriétés optiques et physiques des nuages: taille et concentration des gouttelettes, albédo, durée de vie, pH, .... La concentration des aérosols influence celle des gouttelettes nuageuses (granulométrie du nuage) et, par conséquent, influence les propriétés radiatives des nuages [Boucher, 1997]. En effet, à volume égal, les gouttelettes nuageuses plus petites ont une surface totale plus grande et diffusent plus que les grosses gouttelettes. Donc les particules d'aérosols déterminent l'albédo des nuages: c'est l'*effet indirect* induit par les aérosols [Boucher, 1997]. Cet effet est plus concentré au dessus des océans où les nuages sont plus sensibles au moindre changement de concentration des aérosols. Aérosols stratosphériques Principalement issus des éruptions volcaniques, ils ont une durée de vie plus longue que les aérosols troposphériques (8 à 12 mois), ce qui leur permet une répartition à peu près homogène autour du Globe. L'effet direct des aérosols stratosphériques se traduit le plus souvent par un réchauffement de la stratosphère. Ainsi, lors de l'éruption du Mont Pinatubo en 1991, le forçage s'est traduit par une augmentation de la température stratosphérique de 3.5 K [Labitzke et McCormick, 1992]. Suite à l'éruption d'El Chichòn, la température stratosphérique a augmenté de 4 K (Labitzke et al., 1983]. Au niveau du sol, l'effet climatique des éruptions individuelles a été un forçage négatif, de 0.5 K après l'éruption du volcan El Chichòn, à 0.7 K après celle du Mont Pinatubo [Chazette et al., 1995]. Néanmoins, même si l'impact des éruptions volcaniques est épisodique, un tel refroidissement conduit à une variation climatique significative [Berger, 1996].

Bien que le rôle crucial des aérosols dans la balance thermique de la Terre soit clairement établi, notre compréhension de leur action est loin d'être complète : l'estimation du forçage radiatif introduit par les aérosols est entachée d'une grande incertitude, les chiffres variant de 0 à -2.5  $W/m^2$  [Jouzel et Hauglustaine, 2000]. Cette incertitude est en grande partie dûe à leur grande variabilité saisonnière et géographique. L'effet indirect des aérosols entre pour une part dans le forçage radiatif à hauteur de - 1  $W/m^2$  (avec une incertitude de  $\pm 0.5 W/m^2$ ). La contribution des aérosols stratosphériques dans le bilan radiatif de la Terre est petite (de l'ordre de -0.1 à -0.4  $W/m^2$ ), excepté lors des évènements volcaniques majeurs: ainsi, le forçage négatif produit par les aérosols issus de l'éruption du Mont Pinatubo, est estimé entre -0.6 et -5  $W/m^2$  [Brogniez et al., 1999]. Les aérosols sont susceptibles de contrebalancer, en partie, l'effet de serre additionnel des émissions gazeuses depuis le début de l'ère industrielle [Berger, 1996; Bergametti, 2000], le forçage de ceux-ci étant de  $+2.5 W/m^2$  [Seinfeld et Pandis, 19 i] Mais la différence entre le temps de résidence des GES (de quelques décennies à des siècles) et celui des aérosols à courte durée de vie (de quelques jours à une semaine) fait que l'impact de leurs concentrations atmosphériques respectives suivra des voies divergentes dans le futur [Andreae, 1996].

La réponse du système est donc variable à toutes les échelles d'espace et de temps, du niveau local jusqu'au niveau planétaire, engendrant des changements climatiques locaux, régionaux ou globaux [Bergametti, 2000]: tout dépend de l'amplitude relative des multiples forçages radiatifs des molécules et des particules d'aérosols dans la balance du budget radiatif

#### L'ozone : l'avenir incertain de la biosphère?

[Hauglustaine et al., 1994]. Par exemple, si on ne considère que les émissions de  $CO_2$  et des aérosols, et en supposant que ces deux émissions cessent aujourd'hui, la Terre continuera à se réchauffer parce que le système climatique va continuer à répondre à la quantité accumulée de molécules de  $CO_2$  jusqu'au retour à la situation antérieure à la Révolution industrielle.

### 1.4 L'ozone : l'avenir incertain de la biosphère?

#### 1.4.1 Propriétés de l'ozone

La molécule triatomique<sup>2</sup> d'oxygène, l'ozone, du grec  $o\zeta \epsilon \iota \nu$  (sentir), fut nommée pour la première fois  $\neg$  1840 par Schönbein. Bien qu'elle soit un composant mineur de l'atmosphère, de concentration variable dans l'espace et le temps, cette molécule assure deux fonctions :

- Dans la région spectrale ultraviolette  $240 < \lambda < 320$  nm (Bandes de Hartley-Huggins) et dans la région spectrale visible (Bande de Chappuis), l'ozone stratosphérique est un principal absorbant du rayonnement solaire, notamment les radiations solaires abiotiques UV-B et UV-C. Cette couche protectrice est principalement située dans la stratosphère où se concentrent environ 90% de l'ozone atmosphérique.
- Dans la bande de vibration-rotation dans le domaine IR, autour de 9.6  $\mu$ m, l'ozone agit comme un gaz à effet de serre: il bloque une partie du rayonnement tellurique et le renvoie vers le sol. Ce forçage est principalement situé dans la troposphère où l'ozone représente 10% de l'ozone atmosphérique total: la valeur de ce forçage est de 0.4  $W/m^2$ à 0.8  $W/m^2$  dans l'hémisphère Nord [Mégie, 1996].

L'ozone contribue d'une manière essentielle au couplage indirect entre les principales composantes de l'environnement (cryosphère, atmosphère, océans et biosphère). L'équilibre de ce couplage est précaire : il dépend des échanges dynamiques, des échanges radiatifs soumis à la variation du rayonnement solaire et des échanges chimiques impliquant de nombreux constituants minoritaires, de concentration relative très faible [Mégie, 1992; 1994].

En 1985, la découverte de la diminution de la quantité d'ozone pendant le printemps polaire au dessus de Halley Bay (Antarctique) par Farman et al. [1985] fait l'effet d'une bombe. La Figure 1.5 présente les profils de pression partielle de l'ozone dans l'Antarctique, mesurés à différentes dates. A leur tour, les médias s'en font l'écho et qualifient (à tort) cette diminution de trou dans la couche d'ozone (ozone hole). L'image du trou est

2. constituée de 3 alomes



FIG. 1.5 – Distribution verticale de la pression partielle d'ozone (en mPa), mesurée par sondage ballon: (a) au dessus de McMurdo (Antarctique) en 1987 (b) Comparaison entre les sondages effectués avant le printemps (2 septembre 1994) et pendant le printemps dans le Pôle Sud [Berger, 1996].



FIG. 1.6 – Diminution de l'ozone depuis les années 1960 [Staehelin et al., 2001].

erronée dans le sens où il y a toujours de l'ozone : la valeur minimale de la colonne intégrée d'ozone est d'environ 100 DU (Dobson Unit<sup>3</sup>). Jones et Shanklin [1995] relèvent qu'entre 1976 et 1991, la tendance à la diminution de l'ozone antarctique se chiffre à -7.28 DU par an. La figure 1.6 présente les mesures de la colonne intégrée de l'ozone à la station Halley Bay, dans l'Antarctique entre 1956 et 1998 [Farman et al., 1985; Jones et Shanklin, 1995; Staehelin et al., 2001]. Dès alors, il est fondamental de connaître les processus qui régissent la concentration de l'ozone stratosphérique dont la diminution à travers les réactions chimiques catalysées par des constituants anthropiques, notamment les oxydes d'azote et les composés organo-halogénés, constitue à court terme une menace très sérieuse pour la biosphère.

#### 1.4.2 Equilibre naturel de l'ozone dans la stratosphère

Environ 90% de l'ozone atmosphérique se trouve dans la stratosphère, principalement entre 15 e<sup>+</sup> 25 km d'altitude, lieu de photodissociation de l'oxygène moléculaire  $O_2$  sous l'action du rayonnement solaire ultra-violet (UV) (Tableau 1.4). Le maximum de concentration d'ozone se trouve autour de 15-25 km d'altitude, cela s'explique par la conjugaison du rayon-

<sup>3.</sup> Le Dobson : Unité permettant de mesurer l'épaisseur totale de  $\mathcal{V}$ . couche d'ozone située à la verticale d'un point d'observation (ou quantité intégrée d'ozone). 1 DU = 0.0% cm.atm

Cycle de Chapman		
Production de l'	ozone	
Photodissociation de	$O_2 + h\nu \to O + O$	
l'oxygène moléculaire	$h u \le 242 \text{ nm}$	
M : 3e corps moléculaire qui stabilise	$O + O_2 + M \rightarrow O_3 + M$	
les produits de la réaction	net: $3O_2 + h\nu \rightarrow 2O_3$	
Destruction de l	ozone	
$h\nu \le 320 \text{ nm} (90 \%)$	$O_3 + h\nu \to O_2 + O(^1D)$	
$h\nu \le 850 \text{ nm} (10 \%)$	$O_3 + h\nu \to O_2 + O$	
	$O + O + M \to O_2 + M$	
	$O + O_3 \rightarrow 2O_2$	
	$net: \ 2O_3 + h\nu \to 3O_2$	

TAB. 1.4 - Cycle de Chapman [Chapman, 1930; Berger, 1996].

nement solaire indispensable pour sa formation et de la présence de l'oxygène moléculaire (qui se raréfie au dessus de la stratosphère) [Berger, 1996].

Le processus de photodissociation de l'oxygène et de "recombination" de l'ozone est responsable du gradient positif de température observé dans la stratosphère. En mesurant les densités moléculaires de l'ozone dans la stratosphère, les expérimentateurs se sont aperçus que la densité prédite par Chapman est surévaluée. Le bilan du cycle est exprimé par la réaction  $2O_3 + h\nu \rightarrow 3O_2$ : c'est une réaction très lente et qui n'intervient que dans 20% de la destruction totale de l'ozone. Il existe donc d'autres cycles de destruction de l'ozone qui font intervenir des constituants mineurs de l'atmosphère par de nouvelles réactions catalytiques (Voir Tableau 1.5) où interviennent des radicaux X<sup>\*</sup> et leur oxydes  $XO^*$ , où X est une espèce comme  $H, OH, Cl, NO, BrO \dots$ 

Ces constituants qui initient les réactions sont régénérés et peuvent à nouveau réagir avec l'ozone, enclenchant un nouveau cycle de destruction. Ainsi une abondance relative d'un constituant clé de l'ordre de quelques ppby suffit pour que celui-ci puisse contrôler chimiquement l'ozone, dont l'abondance relative est supérieure d'un facteur 1000 [Mégie, 1992]. Chimiquement, la stratosphère est moins complexe que la troposphère; on y dénombre 40 espèces chimiques importantes [Berger, 1996]. On y distingue quatre principales familles de composés minoritaires qui interviennent dans le cycle de destruction de l'ozone : les composés hydrogénés, les composés azotés, les composés chlorés et les composés bromés. L'ozone : l'avenir incertain de la biosphère?

CYCLE DES RADICAUX  $X^*$  et  $XO^*$  X = H, OH, Cl, NO, BrO, etc ...Production de l'ozone  $X^* + O_3 \rightarrow XO^* + O_2$   $O_2 + h\nu \rightarrow O_2 + O$ Destruction de l'ozone  $O + XO^* \rightarrow X^* + O_2$ net:  $2 O_3 + h\nu \rightarrow 3O_2$ 

TAB. 1.5 – Cycle de production et de destruction de l'orone avec les radicaux  $X^*$  et  $XO^*$ .

#### 1.4.3 Les chlorofluorocarbures

Les chlorofluorocarbures (CFC) sont des composés chimiquement inertes et non solubles avec l'eau, ce qui les rend "résistants" au lessivage par les pluies [Solomon, 1999]. Ils interagissent peu avec les molécules de l'environnement et sont hautement volatiles [Prather et al., 1996]. Ces propriétés font que ces matériaux étaient principalement utilisés comme gaz propulseur des bombes aérosols, comme solvants ménagers ou fluide thermique dans les appareils de réfrigération et de climatisation. Ils peuvent résider dans l'atmosphère pendant 40 à 150 ans où ils s'accumulent de plus en plus [Molina et Rowland, 1974]. Quelques années suffisent pour que les CFC soient dispersés par les vents dans toute la troposphère, et une dizaine d'années pour qu'ils atteignent la stratosphère.

Le puits de CFC le plus important dans la stratosphère résulte de leur décomposition par photodissociation sous l'action des rayons UV. Les produits de cette réaction enclenchent une réaction en chaîne, initiée par les atomes de chlore et où ClO est impliqué [Molina et Rowland, 1974]. La relation entre l'accroissement des CFC dans la troposphère et la diminution de l'ozone stratosphérique a été mise en évidence par Farman et al. [1985].

En réalité, les réactions chimiques impliquant directement les CFC et les composés halogènés sont peu effectives; elles contribuent par exemple dans la destruction de l'ozone à 40 km, à hauteur de 5% à 10%, largement en dessous de ce qui est observé [Seinfeld et Pandis, 1997]. En effet, les molécules de chlore issues des CFC se combinent rapidement avec d'autres composés comme le  $CH_4$  et le  $NO_2$ , créant des composés stables, qu'on appelle les réservoirs inactifs de chlore (Tableau 1.6). L'efficacité de destruction de la chaîne catalytique des composés chlorés est réduite tant qu'il y existe des composés azotés qui piégent les molécules de chlore pour former des nitrates de chlore.

RÉACTIONS DE FORMATION DES RÉSERVOIRS DE CHLORE		
les formes actives	$ClO + NO \rightarrow Cl + NO_3$	
Cl et ClO	$Cl + CH_4 \rightarrow HCl + CH_3$	
sont converties	$HO_2 + ClO \rightarrow HOCl + O_2$	
en composés inertes	$ClO + NO_2 + M \rightarrow ClONO_2 + M$	
ClONO2 et HCl		

TAB. 1.6 – Principales réactions de formation des réservoirs inertes de chlore [Solomon, 1999].

D'autres composés, issus des CFC et des composés halogénés, comme le fluor (F), le brome (Br) et l'iode (I), participant aussi à la destruction de l'ozone [Solomon, 1999]: ainsi, le composé F induit une courte réaction de destruction en chaîne de l'ozone jusqu'à ce qu'il soit transformé de manière irréversible en acide (HF). Le brome, un des composés actif dans le cycle de destruction de l'ozone, est 200 fois moins abondant que le chlore : il se combine également avec les composés chlorés dans les cycles de destruction catalytiques de l'ozone [McElroy et al., 1986]. Quant au composé I, principalement issu des sources naturelles, est beaucoup moins abondant que les autres composés. Il participe néanmoins activement au cycle de destruction de l'ozone avec le Br et le Cl.

L'enclenchement du cycle de destruction de l'ozone par les composés chlorés ne peut pas se produire tant qu'il n'y a pas conversion des réservoirs de chlore inactivés ( $ClONO_2$  et HCl) dans des formes réactives [Ravishankara et Hanson, 1996]. Cette activation des réservoirs intervient principalement via des réactions hétérogènes, impliquant d'autres acteurs: les nuages stratosphériques polaires.

#### 1.4.4 Les Nuages Stratosphériques Polaires

Pour désigner ces couches d'aérosols le plus souvent situées entre 15 et 25 km, où la mesure de l'extinction par l'instrument SAM II révèle un pic élévé par rapport aux aérosols de fond, McCormick et al. [1982] propose le terme de Nuages Stratosphériques Polaires (PSC, *Polar Stratospheric Cloud*). L'analyse des profils de température fournis par les radiosondes au même moment que les passages de SAM II montre une corrélation entre les températures très basses, de l'ordre de 198 K (- 75 °C) à 188 K (-85 °C), et l'apparition de ces PSC [Mc-Cormick et al., 1982].

Type de	Propriétés	Formation	Composition /	Seuil de Températur
Type II	Irisés	Processus de condensation	Cristaux de glace $(H_2O_{ice})$	TICE
	(ou nacrés)	mixte avec NAT+SAT	+ traces de HNO3	~ 188 - 190 K
		où domine la cristallisation	et $H_2SO_4$	~ −85 à −83°C
		de l'eau pure	Structure non sphérique	
Type Ia	Forte	ىرىنى بىلىنى بىرىنى يەرىپى بىرىنىيەت كەيلىپىلىك ھەرىپىلىرىنىيەت كەيلىپىلىرىنىيەت بىلىپىلىرىنىيەت بىلىپىلىپىلىپ بى	(HNO3,3H2O)	T
	dépolarisation		Nitrie Acid	~ 190 - 195 K
	(solide)		Trihydrate NAT	~ -83 à -78°℃
			Structure non sphérique	
Type Ib	Faible	Condensation des molécules	(H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> , HNO, H <sub>2</sub> O)	T
	dépolarisation	de NAT autour des	Supercooled ternary	~ 190 - 195 K
	(liquide)	aérosols d'acide sulfurique	solution STS	~ -83 à -78° C
			Structure sphérique	

L'ozone: l'avenir incertain de la biosphère?

TAB. 1.7 – Les trois types des nuages stratosphériques polaires. D'après [Seinfeld et Pandis, 1997; Solomon, 1999]

La stratosphère contient une couche naturelle d'aérosols située vers 12 - 30 km d'altitude, essentiellement des particules d'acide sulfurique composées en moyenne de 75 % de  $H_2SO_4$  et de 25% d'eau [Thomason et Poole, 1993]. C'est un milieu très sec où le point de condensation de la vapeur d'eau en cristaux de glace se situe à la température  $T_{ICE}$  de 188 K (entre 15 et 20 km). Au dessus des pôles, les conditions de température extrêmes favorisent la condensation des faibles quantités de vapeur d'eau sur les particules d'aérosols sulfatés.

La composition, la phase et la température de formation sont les principaux paramètres des PSC, permettant d'en caractériser les différents types [Voigt et al., 2000] (Tableau 1.7 et Figure 1.7):

Les PSC du Type Ia consistent en des cristaux d'acide nitrique (NAT, Nitric Acid Trihydrate): les trihydrates d'acide nitrique ( $HNO_3$ ,  $3H_2O$ ) peuvent se former à une température  $T_{NAT}$  supérieure de 7°C à celle du point de congélation de l'eau pure [Voigt et al., 2000; Rivière et al., 2000]. La présence des PSC du Type Ia renforce le potentiel d'activation des réservoirs de chlore.

Dans le même domaine de température, les PSC du Type Ib peuvent se former à partir d'une solution STS (Supercooled Ternary Solution), c'est à dire des goutelettes de

37


FIG. 1.7 - Schéma d'un modèle de formation des PSC en fonction de la température [Rivière  $\epsilon t$  al., 2000]

 $(H_2SO_4, HNO_3, H_2O).$ 

Les PSC du Type II se forment via une condensation mixte des cristaux d'eau pure avec des traces de  $HNO_3$  et  $H_2SO_4$ . Le développement de ces particules est dominé par le processus de gel, ce qui nécessite des températures très froides  $T_{ICE}$  [Poole et McCormick, 1988]. Comme la formation des PSC du Type II nécessite des températures très basses pour condenser les cristaux d'eau pure, leur fréquence d'apparition est plus faible que celle des nuages PSC du Type I.

Le processus de formation des PSC est renforcé avec l'apparition d'un noyau d'air très froid, le *vortex polaire* en hiver au dessus de l'Antarctique ou de l'Arctique (Figure 1.8). C'est







FIG. 1.8 - Schéma d'un vortex antarctique durant l'hiver polaire [Mégie, 1989].

un tourbillon stable, qui ne se développe qu'avec le refroidissement de la stratosphère lors des hivers polaires. Les vents très violents isolent la stratosphère polaire du reste du globe terrestre et la confinent au dessus des pôles [Seinfeld et Pandis, 1997]. Ce tourbillon est autoalimenté par la destruction de l'ozone sous l'action du rayonnement solaire, qui, en retardant le réchauffement de la stratosphère, favorise l'apparition de nouveaux PSC, et ainsi de suite ...

Au dessus de l'Antarctique, lors de l'affaiblissement du tourbillon, l'air appauvri en ozone est transporté aux basses latitudes, et contribue à la diminution de la concentration moyenne de l'ozone dans tout l'hémisphère Sud [Toon et Turco, 1996]. Dans l'hémisphère Nord, le déficit d'ozone s'étend jusqu'aux latitudes moyennes : ce phénomène résulte du transport de l'air appauvri en ozone à travers la formation de filaments à la lisière du vortex, comme le montrent les observations LIDAR de l'OHP dans le sud de la France [Hauchecorne, 1998].

Le processus d'activation du chlore actif à partir des réservoirs inertes HCl et  $ClONO_2$ est habituellement très lent. La présence des PSC catalyse la conversion des réservoirs HClet  $ClONO_2$  en des composés chlorés, qui à leur tour initient les chaînes de réactions de

#### L'ozone : l'avenir incertain de la biosphère?

destruction de l' $O_3$  (Tableau 1.8). Ce processus conduit au piégeage à la surface des PSC de molécules d' $HNO_3$  et élimine les composés azotés de la stratosphère dans de nouvelles réactions de formation des réservoirs: les réactions en chaîne de destruction de l' $O_3$  sont alors favorisées. Une fois la stratosphère dénitrifiée autour des PSC, rien ne stoppe la chaîne catalytique des composés chlorés, plus efficace que celle des composés azotés. La réaction  $CIO + O \rightarrow CI + O_2$  est 6 fois plus efficace que la réaction  $NO_2 + O \rightarrow NO + O_2$  [Molina et Rowland, 1974]. Les particules de PSC ont une influence importante dans les réactions : si le PSC est constitué de particules solides, les réactions auront lieu à la surface, si c'est une solution STS, tout le volume est accessible aux réactions [Seinfeld et Pandis, 1997]. Dans les deux cas, les réactions sont rapides et la composition exacte des PSC n'a pas d'incidence majeure sur le taux de réaction [Seinfeld et Pandis, 1997].

Lorsque les masses d'air polaire se réchauffent sous l'action du rayonnement solaire, l'évaporation des PSC relâche des molécules d' $HNO_3$  qui se photolysent ou réagissent avec OH, pour restaurer les concentrations des oxydes nitreux  $NO_x$ . A leur tour, les  $NO_x$  vont reformer les réservoirs relativement inertes comme  $CIONO_2$ .

#### 1.4.5 Ozone troposphérique

Les 10% de l'ozone atmosphérique restants résident dans la troposphère. Les sources de production, en dehors des sources naturelles, sont les échanges troposphère/stratosphère et la photoxydation des constituants précurseurs (hydrocarbures, oxydes d'azote, monoxyde de carbone et méthane). Or la production photochimique, liée aux émissions anthropiques dans les atmosphères urbaines des cités polluées, s'est considérablement accrue ces dernières décennies conduisant à l'apparition et à la multiplication de nouveaux cycles de réactions [Mégie, 1996]. De plus, les conditions météorologiques locales (vent), le relief ou l'éclairement, modifient les propriétés oxydantes de la troposphère et amplifient la production de l'O<sub>3</sub>.

L'effet de brouillard photochimique (smog) conduit à l'accroissement de l'ozone troposphérique, notamment par le doublement de la concentration relative de l'ozone au sol dans l'hémisphère Nord, mais il n'a pas d'incidence sur l'ozone stratosphérique. En effet, la durée de vie de l'ozone troposphérique ne dépasse pas quelques semaines, ce qui ne permet pas une diffusion vers la stratosphère. Le temps caractéristique des échanges verticaux est de 7 à 10 ans. Du point de vue des équilibres chimiques, il n'y a pas de compensation de la destruction de l'ozone stratosphé-ique par la production de l'ozone au niveau du sol [Mégie, 1992].

#### 1.4.6 Rôle climatique de l'ozone

Le forçage radiatif de l'ozone induit deux effets directs distincts et un effet indirect :

- Une augmentation de l'ozone troposphérique induit un forcage radiatif positif (premier effet direct)
- La diminution de l'ozone stratosphérique induit un refroidissement (deuxième effet direct) et augmente la pénétration des rayons UV-B dans la troposphère, ce qui favorise les réactions de photolyse.
- Par conséquent, le taux de formation de l'ozone troposphérique et la capacité d'oxydation de la troposphère sont amplifiés (*effet indirect*).

Même si le rayonnement UV est absorbé dans la basse atmosphère par l'ozone troposphérique, cette compensation ne suffit pas car la diminution de l'ozone stratosphérique représente un facteur 10 dans le contenu total d'ozone par rapport à l'augmentation de l'ozone troposphérique. De plus, l'ozone est un gaz à effet de serre 1200 fois plus actif que le  $CO_2$  (à concentration égale): l'augmentation de l' $O_3$  troposphérique implique un piégage plus important du rayonnement IR dans la troposphère, ce qui induit une contribution supplémentaire à l'effet de serre [Mégie, 1996].

## 1.4.7 Impact de l'ozone sur la biosphère

Une diminution de l'ozone stratosphérique éventuellement associée à une augmentation de l'ozone troposphérique pourrait affecter toute la biosphère [Mégie, 1996; Rerger, 1996; Van der Leun et al., 1995]. L'effet phytotoxique de l'ozone est bien connu grâce aux études menées sur les cultures agricoles et forestières. La difficulté demeure de mesurer avec précision les doses effectivement absorbées par les plantes et de prendre en compte les facteurs de variabilité naturelle liés à l'environnement. Parmi ces effets:

- Altération de l'ADN et du processus physiologique des plantes. Modification de la photosynthèse conduisant à un changement de régime de croissance des plantes, selon les espèces végétales.
- Perturbation de l'écosystème marin [Berger, 1996]: la croissance et la reproduction du plancton, premier maillon de la chaîne alimentaire dans les océans, sont réduites.

## **Conclusion**

Lorsque les teneurs relatives d'ozone dans la troposphère dépassent les 100 à 120 ppbv, l'ozone devient toxique pour l'homme et provoque:

- Irritation des yeux et des muqueuses (augmentation des cataractes),

- Perturbation de la fonction respiratoire chez les personnes à risque,
- Affaiblissement du système immunitaire.

Ces mécanismes pathologiques sont liés aux effets oxydants de l'ozone sur les constituants biochimiques des organismes [Van der Leun et al., 1995]: l'ozone est un poison protoplasmique, qui altère les fonctions cellulaires des cellules avec lesquelles il est en contact, notamment les muqueuses oculaires et pulmonaires. La diminution de l'ozone stratosphérique a pour effet :

 Apparition de cancers de la peau. Certes, la peau développe des mécanismes d'autodéfense (pigmentation, épaississement) mais l'exposition aux UV accroît les risques de cancers, notamment les cancers des cellules pigmentaires, qui peuvent être mortels (mélanomes).

Les effets à plus long terme, notamment les effets cancerigènes, sont mal connus car on manque de données statistiques dans ces domaines. Dans le cadre de l'environnement urbain, il est difficile de discriminer les effets des polluants des infections saisonnières, bactériennes et virales. Les marges d'incertitude des impacts de l'ozone sur la biosphère sont donc encore grandes bien que les effets toxiques soient connus. A la différence de la stratosphère, le système troposphérique réagit plus vite : les processus y sont davantage réversibles.

## 1.5 Conclusion

La compréhension des différents phénomènes au sein de la stratosphère doit passer par celle des interactions complexes entre les processus dynamiques, chimiques et radiatifs, en prenant en compte les variabilités spatio-temporelles des facteurs pertinents. Notre connaissance actuelle est encore entachée d'incertitudes dans plusieurs domaines, notamment en ce qui concerne l'évolution à long terme de l' $O_3$  et des autres espèces stratosphériques en relation avec le climat, l'activité solaire, les volcans et les sources anthropiques. Dans ces différents domaines, on peut présenter l'état de la recherche de la manière suivante :

Les constantes des réactions en jeu dans les cycles sont souvent affectées d'incertitudes.
 Leur détermination reste difficile car elle demande beaucoup d'efforts pour reconstituer,

en laboratoire, des conditions stratosphériques. Il y a maintenant prise de conscience de l'importance de la chimie en phase hétérogène (interaction entre phases gazeuse, liquide et solide qui coexistent dans l'atmosphère). On cherche à mesurer l'impact des familles bromées et des émissions des avions dans ces réactions. Du fait des interactions entre les différentes familles de constituants, et du fait des non-linéarités qu'elles induisent, la proportionnalité des effets aux causes n'est pas la règle : il peut exister des effets d'amplification difficiles à quantifier [Mégie, 1992].

- 2. La quantification des sources et des puits naturels et anthropiques est encore entachée d'une incertitude à l'échelle globale. Les tendances des évolutions de ces quantités nécessitent d'être déterminées précisément et d'être prises en compte dans les modèles d'évolution du climat.
- 3. Le forçage radiatif supplémentaire induit par le soleil et la variabilité du rayonnement affectent le climat global et notamment les processus physico-chimiques dans la stratosphère [McCormack et al., 1997]. L'activité magnétique du soleil (deux cycles périodiques de 27 jours et de 11 ans) introduit un forçage radiatif supplémentaire égal à 0.2  $W.m^{-2}$ , à comparer avec celui induit par les gaz à effet de serre (0.35  $W.m^{-2}$ ) [Lean et Rind, 2001]. Or, l'augmentation du  $CO_2$  et des gaz anthropiques, et les injections des aérosols volcaniques masquent l'influence de l'activité solaire et rendent la connexion soleil/climat plus difficile à évaluer.
- 4. L'influence des oscillations quasi-bisannuelles (période moyenne de 2 ans) et des oscillations de périodicité de 3-4 ans, toutes deux responsables de l'apparition de El Niño (*El Niño Southern Oscillation*, ENSO), se répercute sur tout le climat global : les périodes et les amplitudes de ces oscillations semblent corrélées à la variation de la rotation de la Terre [Abarca Del Rio et al., 2001].
- 5. La formation (temps de croissance, ...), la composition (STS, NAT, SAT) et la nature (liquide/solide) des PSC en fonction de la température, sont encore objets d'interrogation. La compromension des processus de formation des PSC devrait nous permettre de mieux quantifier le bilan global de destruction de  $O_3$  en précisant notre compréhension des échanges chimiques (dénitrification) et dynamiques (atmosphères dans le vortex/hors vortex).

Le danger d'un bouleversement induit par les activités humaines sur l'équilibre de la blosphère est apparu dès les années 70 et a conduit à une prise de conscience progressive quant

## Conclusion

à l'urgence d'une mobilisation de tous les pays concernés. Mais, incertitudes, erreurs scientifiques, débats mudiatiques et pressions politiques et économiques ont retardé les efforts pour réduire les émissions anthropiques. Les conflits d'intérêts entre pays industrialisés et entre pays industrialisés et pays en voie de développement empêchent encore un consensus pour freiner l'aggravation du changement climatique.

Les projections IPCC montrent que la concentration de CFC dans la basse atmosphère diminue et cette diminution aura sans doute un effet à long terme positif sur la couche d'ozone [IPCC, 2001]. A court terme, la destruction de l'ozone polaire va encore continuer pendant au moins une décade après l'interdiction totale des CFC. Mais l'augmentation toujours croissante des GES va retarder les effets de la réduction des CFC, car les GES devraient conduire à un refroidissement dans la stratosphère, favorisant la destruction massive de l'ozone, notamment entre 2010 et 2019 [Shindell et al., 1998].

## Chapitre 2

# L'Optique Atmosphérique

Notre principale connaissance du monde physique, et notamment celle de l'atmosphère, vient d'abord de notre perception visuelle. La couleur bleue du ciel observée par temps clair est expliquée par le phénomène de diffusion de Rayleigh. La théorie de Mie interprète la diffusion des ondes lumineuses par les particules en suspension dans l'atmosphère: nuages, poussières volcaniques ou aérosols ...

La lumière qui arrive sur un détecteur (œil humain, spectromètre ...) ne provient pas toujours directement de la source lumineuse mais peut résulter de nombreux phénomènes de diffusion ou de réflection. Toute source de lumière *directement* observée est dite source primaire. C'est le cas lorsqu'on regarde la flamme d'une bougie ou un filament d'une lampe à incandescence. La surface de l'océan, le paysage, la multitude d'objets qui nous entourent sont visibles parce qu'ils reflètent la lumière. Ce sont des sources secondaires.

## 2.1 Définitions générales

## 2.1.1 Equation du Transfert Radiatif

L'équation du transfert radiatif est l'équation fondamentale qui décrit la propagation d'une onde électromagnétique dans la direction  $\vec{s}$  et définie en M par la luminance  $L_{\lambda}(M, \vec{s})$ (unité:  $Wm^{-2}sr^{-1}$ ). La conservation de l'énergie tient compte des diffusions et des émissions du milieu dans lequel se propage le rayonnement [Chandrasekhar, 1960]:

$$\frac{dL_{\lambda}(M, \vec{s})}{ds} = -\sigma_{\lambda}^{ext} \left[ L_{\lambda}(M, \vec{s}) - J_{\lambda}(M, \vec{s}) \right]$$
(2.1)

Où le premier terme exprime la perte par absorption et diffusion, et le second représente le gain par émission et/ou diffusion caractérisé par la fonction source  $J_{\lambda}(M, \vec{s})$ . Pour une atmosphère diffusante, la fonction source est exprimée en fonction de la fonction de phase  $P(M, \vec{s}, \vec{s}')$  [Lenoble, 1993].

#### 2.1.2 Loi de Lambert-Beer

Soit un faisceau lumineux monochromatique transportant un flux de photons par unité de temps et de surface. Lorsque ces photons rencontrent sur leur trajet optique des particules, molécules ou aérosols, ils interagissent avec ces espèces : le nombre de photons perdus par le faiseau direct est proportionnel au nombre de photons incidents et au nombre d'interactions rencontrées. L'extinction de la lumière se produit par diffusion et par absorption à la traversée de la couche. Sur un élément différentiel de longueur ds, la perte de flux du rayonnement incident dans la couche est exprimé, s'écrit en prenant  $J_{\lambda}(M, \vec{s}) = 0$  dans l'équation 2.1 (voir figure 2.1):

$$dL_{\lambda} = -\sigma_{\lambda}^{ext} L_{\lambda} ds \tag{2.2}$$

C'est la loi de Lambert-Beer, avec  $L_{\lambda}$  la luminance spectrale du faisceau incident.  $\sigma_{\lambda}^{ext}$  est le cœfficient d'extinction volumique total, qui dépend de la longueur d'onde du faisceau lumineux.  $\sigma_{\lambda}^{ext}$  est proportionnel à la concentration N des espèces diffusantes ou absorbantes, représentant la capacité d'une unité de volume de matière à absorber/diffuser totalement la lumière. L'équation de Lambert (2.2) traduit le principe fondamental des mesures par absorption, où l'atténuation du rayonnement monochromatique est liée aux propriétés du milieu rencontré par le faisceau sur son trajet optique.

## 2.1.3 Définitions de la transmission et de l'épaisseur optique

En intégrant l'équation 2.2 et en introduisant  $L_{\lambda}(0)$ , la luminance incidente en x=0, représentant le sommet de la couche, et la luminance  $L_{\lambda}(x)$ , mesurée à une d'stance x dans la couche, on obtient :

$$L_{\lambda}(x) = L_{\lambda}(0)e^{-\sigma_{\lambda}^{ext}x}$$
(2.3)

C'est la loi exponentielle de Beer pour l'extinction. On en tire l'expression de la transmission monochromatique  $T_{\lambda}$ , où le produit  $\sigma_{\lambda}^{ext}x$  est défini comme l'épaisseur optique, qu'on notera  $\tau$ :

$$\mathbf{T}_{\lambda} = \frac{L_{\lambda}(x)}{L_{\lambda}(0)} = e^{-\sigma_{\lambda}^{ext}x}$$
(2.4)

### Définitions générales



FIG. 2.1 – Traversée d'un faisceau lumineux dans une couche diffusante, les flèches représentant les multiples diffusions et absorptions à l'intérieur de la couche.

## 2.1.4 Définition du cœfficient d'extinction

Lorsque les molécules, ou les particules, du miliev absorbent et diffusent simultanément la lumière, chaque processus enlève séparément une partie du flux incident. La conservation de l'énergie requiert que tout flux du faisceau incident ôté par la particule est égal au flux diffusé dans toutes les directions et au flux absorbé par les espèces actives optiquement. L'effet combiné de la diffusion et de l'absorption définit l'extinction, le cœfficient d'extinction s'écrit donc:

$$\sigma_{\lambda}^{ext} = \sigma_{\lambda}^{diff} + \sigma_{\lambda}^{abs} \tag{2.5}$$

Où  $\sigma_{\lambda}^{diff}$  et  $\sigma_{\lambda}^{abs}$  sont respectivement les cœfficients de diffusion et d'absorption.

L'énergie associée à  $\sigma_{\Lambda}^{abs}$  ne se propage pas comme dans le cas de l'énergie diffusée: elle conduit à une perte d'énergie des photons par absorption, et en contrepartie par une augmentation de la température du milieu.

Des processus de diffusion inélastiques augmentent également la température du milieu : ils comprennent les processus de diffusion Raman et de fluorescence [Seinfeld et Pandis, 1997]. La diffusion Raman est le résultat des changements des niveaux d'énergie des molécules : les transitions produisent des fréquences décalées par rapport à la fréquence de l'onde incidente. On observe alors une apparition de nouvelles raies spectrales dans la lumière diffusée. Quant à la fluorescence, elle concerne les transitions vers un niveau d'énergie supérieur, accompagnées d'une relaxation ou d'une émission d'une onde lumineuse de fréquence inférieure à l'onde incidente. Ces transitions dépendent de la structure du diagramme des niveaux d'énergies et sont donc caractéristiques des espèces [Keckhut, 1998].

La section efficace est une grandeur qui définit la probabilité d'interaction (absorption, diffusion) entre le rayonnement lumineux et un milieu de densité numérique N (nombre de particules par unité de volume). On appelle  $\sigma_A^{mol}$  la section efficace d'absorption (ou de diffusion) particulaire la grandeur associée à la probabilité d'absorption ou de diffusion par un élément de matière A, qui peut être ur molécule d'un gaz ou une particule d'aérosol.

## 2.1.5 Diffusion du rayonnement par le milieu atmosphérique

La diffusion est le processus selon lequel toute élément de matière (molécules ou particule d'aérosol) situé sur le chemin d'une onde électromagnétique, va extraire de l'énergie de cette onde incidente, et réémettre cette énergie sous un angle solide total centré en cet élément. La particule (ou la molécule) est donc vue comme une singularité optique (ou inhomogénéité) pour l'onde lumineuse incidente : elle devient un point source d'énergie diffusée. La dépendance des diffusions en fonction de la longueur d onde peut être exploitée pour séparer la diffusion moléculaire et la diffusion par les grosses particules d'aérosol.

Les paramètres clés qui caractérisent les propriétés de la diffusion de la lumière par une particule sphérique et homogène sont :

 $\lambda$  la longueur d'onde du rayonnement incident

r le rayon de la particule

m l'indice de réfraction complexe, qui caractérise le milieu *à l'intérieur* de la particule, défini par :

$$\mathbf{m} = n + ik \tag{2.6}$$

La partie réelle n décrit le changement de vitesse et de direction d'une onde. Quant à la partie imaginaire k, elle représente la capacité d'absorption de la particule.

## 2.1.6 Diffusion moléculaire de Rayleigh

Les atomes et les molécules sont des petits objets diffusants, plus petits que les longueurs d'onde dans le domaine du visible. La diffusion de Rayleigh est une interaction *élastique* : lorsque qu'un faisceau incident rencontre un ensemble de molécules, elles se mettent à osciller en phase, il n'y a pas de perte d'énergie de l'onde incidente et les photons sont réémis à

## Définitions générales

la même longueur d'onde. Cette théorie de la diffusion a été développée par I  $\neg$  Rayleigh. Le calcul de l'interaction de l'onde électromagnétique avec les petites particules révèle une dépendance en  $\lambda^4$  pour la diffusion. Mais la théorie de Rayleigh n'est pas applicable pour les particules de grande taille comparée à  $\lambda$  de l'onde incidente.

Le cœfficient de diffusion de Rayleigh s'écrit:

$$\sigma_{Ray}^{diff}(\lambda) = N \, \sigma_{Ray}^{mol}(\lambda) \tag{2.7}$$

Où  $\sigma_{Ray}^{mol}(\lambda)$  est la section efficace de diffusion moléculaire et N, le nombre de molécules par unité de volume défini via la loi des gaz parfait :

$$N = \frac{N_A p(Pa)}{R T(K)}$$
(2.8)

-  $\mathcal{N}_A$ , le nombre d'Avogadro = 6.02252  $10^{23} mol^{-1}$ 

-  $R_i$  le constante des gaz parfaits = 8.3143  $JK^{-1}mol^{-1}$ 

La section efficace de diffusion moléculaire s'écrit, en fonction de l'indice de réfraction de l'air m<sub>s</sub> [Lenoble, 1993; McCartney, 1976]:

$$\sigma_{Ray}^{mol}(\lambda) = \frac{24\pi^3}{\lambda^4} \left(\frac{m_s^2 - 1}{m_s^2 + 2}\right)^2 \left(\frac{6 + 3d}{6 - 7d}\right) \frac{1}{N_s^2}$$
(2.9)

Le terme d prend en compte l'anisotropie des molécules d'air : c'est le facteur de dépolarisation.

Les conditions standards de pression température (STP), dénotées par l'indice s, sont prises au niveau de la mer: elles correspondent à une pression  $p_s = 1013.25$  hPa et  $T_s = 288.15$ K. Dans ces conditions,  $N_s = 2.547410^{19} cm^{-3}$  est le nombre de molécules par unité de volume. Enfin, l'indice de l'air m<sub>s</sub> [Edlen, 1966] est défini pour ces mêmes conditions STP par:

$$\mathbf{m}_{s} = 1 + \left(77.46 + \frac{0.459}{\lambda^{2}}\right) 10^{-6} \cdot \frac{p_{s}}{T_{s}}$$
(2.10)

Dans cette formule, la pression p est exprimée en hPa, la température T, en Kelvin, et la longueur d'onde  $\lambda$ , en  $\mu m$ .

Dans la suite, l'indice de réfraction complexe m (Equatic 12.6) est assimilé à l'indice nréel (en général,  $k \sim 0$ ). L'indice de réfraction de l'air n s'écrit en fonction de l'indice de réfraction standard  $n_s$ :

$$(n-1) = (n_s - 1) \frac{p}{p_s} \frac{T_s}{T}$$
(2.11)

On appelle le facteur de correction de dépolarisation, le facteur de King  $F_k$  défini par:

$$F_k = \left(\frac{6+3d}{6-7d}\right) \tag{2.12}$$

Ce facteur de correction pour la dépolarisation de la lumière varie en fonction de la longueur d'onde de 1.08 (à  $0.2 \ \mu m$ ) à 1.047 (à  $1 \ \mu m$ ). Nous avons choisi de fixer la constante  $F_k$  égale à 1.048, pour la valeur courante d = 0.0139, correspondant à la bande spectrale [600-750 nm] située dans la région du visible [Bucholtz, 1995]. En tenant compte de la dépendance du facteur de dépolarisation avec  $\lambda$ , l'incertitude totale pour le calcul de l'épaiset ar optique de Rayleigh n'est que de 0.16% [Hoyt, 1977].

Après les approximations effectuées sur  $\left(\frac{n_s^2-1}{n_s^2+2}\right)^2$  [Lenoble, 1993], nous avons l'équation générale du cœfficient de diffusion de Rayleigh :

$$\sigma_{Ray}^{diff}(\lambda) \sim N \, \frac{32\pi^3}{3\lambda^4} \left(n_s - 1\right)^2 F_k \frac{1}{N_s^2}$$
(2.13)

## 2.1.7 Définition de l'extinction pour une population d'aérosols

La théorie de Mie a comblé le vide entre la théorie de Rayleigh, pour la diffusion moléculaire, et la théorie de l'optique géométrique. La diffusion est estimée à partir d'un calcul classique de la théorie électromagnétique: elle dépend de la forme et de la taille des particules. Cette théorie peut s'appliquer au cas des particules diffusantes de forme quelconque, mais on se limite ici au cas des particules sphériques homogènes et isotropes. Dans cette approximation, la théorie de Mie prend une forme simplifiée [Scinfeld et Pandis 1997].

Dans le cas d'une particule,  $\sigma_p^{ext}$  et  $\sigma_p^{diff}$ , respectivement les sections efficaces d'extinction et de diffusi... particulaire, sont proportionnelles à la section géométrique de la particule ( $\pi r^2$ pour le cas sphérique), elles s'écrivent :

$$\sigma_p^{ext}(\mathbf{m},\lambda,r) = \pi r^2 \mathcal{Q}_{\lambda}^{ext}(\mathbf{m},\lambda,r)$$
(2.14)

$$\sigma_p^{diff}(\mathbf{m}, \lambda, r) = \pi r^2 \mathcal{Q}_{\lambda}^{diff}(\mathbf{m}, \lambda, r)$$
(2.15)

Où  $Q_{\lambda}^{ext}$  est le facteur d'extinction particulaire (ou efficacité d'extinction de Mie), qui définit la vanation de l'extinction en fonction de l'indice de réfraction complexe m et des paramètres  $\lambda$  et r; et  $Q_{\lambda}^{diff}$  est le facteur de diffusion particulaire.

## Les techniques d'étude de l'atmosphère

Pour une distribution en taille n(r) des aérosols et une concentration totale par unité de volume des particules  $\mathcal{N}$ , le cœfficient d'extinction  $\sigma_{\text{Mie}}^{\text{ext}}$  à la longueur d'onde donnée  $\lambda$  s'écrit [Lenoble, 1993]:

$$\sigma_{\text{Mie}}^{\text{ext}} = \mathcal{N} \int_0^\infty \pi r^2 \mathcal{Q}_{\lambda}^{ext}(\mathbf{m}, \lambda, r) \mathbf{n}(\mathbf{r}) dr$$
(2.16)

Cette équation relie le coefficient d'extinction observé à une longueur d'onde donnée et la distribution en taille n(r) de la population d'aérosols. De la même manière, on définit le coefficient de diffusion :

$$\sigma_{\text{Mie}}^{\text{diff}} = \mathcal{N} \int_0^\infty \pi r^2 \mathcal{Q}_{\lambda}^{diff}(\mathbf{m}, \lambda, r) \mathbf{n}(\mathbf{r}) dr \qquad (2.17)$$

## 2.2 Les techniques d'étude de l'atmosphère

Le principe de télédétection atmospherique à l'aide des techniques optiques est basé sur les phénomènes de diffusion et d'absorption du rayonnement lumineux incident par les composants de l'atmosphère, pour en extraire des informations sur les caractéristiques physiques et chimiques de celle-ci. L'étude des différences entre les caractéristiques de la lumière incidente (amplitude, fréquence, phase, polarisation, cohérence et direction ...) et celles de la lumière reçue, après traversée du milieu atmosphérique, nous donne une signature directe de celui-ci [Mc Cartney, 1976; Keckhut, 1998].

## 2.2.1 Les spectromètres de l'ozone

Le premier spectrographe, utilisé à Marseille en 1920 par Fabry et Buisson, était constitué d'une plaque photographique. Pour la première fois, la mesure de l'épaisseur réduite de l'ozone était introduite en physique atmosphérique mais cette expérience ne fournissait pas d'informations sur la répartition verticale de l'ozone [Mégie, 1995]. Les potentialités des méthodes optiques de Fabry-Buisson ne furent exploitées qu'avec les progrès des moyens techniques : ballons, avions, fusées ...

Le spectrographe de Dobson, mis en œuvre dans les années 20, mesure le rapport d'intensité pour une paire de longueurs d'onde dans l'ultraviolet (300 nm  $< \lambda < 340$  nm), dont une est selectionnée à une longueur d'onde où l'absorption des ultraviolets par l'ozone est faible et l'autre est choisie à une longueur d'onde correspondant à une forte absorption des UV par l'ozone. La restitution de l'ozone s'obtient par une méthode différentielle, en utilisant le rapport des différences des intensités mesurées à ccs deux longueurs d'onde [Dobson, 1968; Staehelin et al., 2001]. D'utilisation délicate à cause des exigences des réglages optiques et des étalonnages, dont dépend la qualité des mesures effectuées, le spectromètre Dobson reste cependant l'instrument le plus répandu dans la recherche atmosphérique pour la mesure de l'ozone depuis le sol [Staehelin et al., 2001].

L'instrument Brewer, développé dans les années 80, est basé sur l'observation directe du soleil, travaillant avec le même principe d'observation dans l'ultraviolet que les spectromètres Dobson. La seule différence est l'utilisation de 4 longueurs d'ondes, au lieu de 2 paires de longueurs d'ondes. Ces spectromètres permettent de mesurer, en plus de la quantité intégrée de l'ozone, la quantité intégrée de  $SO_2$ . Actuellement, le réseau des spectromètres Brewer, en pleine croissance, complète et étend le réseau actuei des spectromètres Dobson [Staehelin et al., 2001].

## 2.2.2 Les moyens d'investigation

Les moyens d'investigation ne se limitent pas aux mesures au sol, où l'instrument est installé sur le toit d'un bâtiment ou transporté par une plate-forme mobile (camion, bateau ...). Les plates-formes terrestres ont l'avantage de produire des séries de mesures continues en un lieu fixe. Concurrencées par les satellites de télédétection pour l'enregistrement à long terme des paramètres tmosphériques, les mesures à partir du sol sont encore très utiles pour réaliser des comparaisons avec les mesures effectuées en coïncidence par des capteurs satellitaires [Bonn et Rochon, 1993]: on parle alors de validation satellitaire.

Le développement et l'essor des technologies aéroportées et spatiales donnent accès à de nouvelles échelles spatiales et temporelles pour les mesures :

Les plates-formes aéroportées Ces plates-formes sont souvent mises en œuvre lors de campagnes de mesures spécialisées. En effet, le prix d'utilisation des plates-formes aéroportées est souvent élévé pour permettre des mesures sur une grande période. Néanmoins, les enregistrements effectués peuvent constituer un ensemble cohérent après correction des discontinuités éventuelles (problèmes de calibrage ...).

Ballons Le ballon est un vecteur pratique permettant l'accès à la stratosphère pour les mesures in situ ou pour les mesures à distance.

## Les techniques d'étude de l'atmosphère

Avions D'emploi souple, les avions peuvent embarquer une plus grande quantité d'instruments, par rapport aux ballons. Leur seule limite est la couverture spatiale déterminée par la couverture géographique (ou rayon d'action) lors d'une même mission. La variabilité induite par les conditions métérologiques au cours du vol peut être un avantage pour l'analyse lors de la pénétration dans le vortex. Avec la miniaturisation des capteurs, l'utilisation des avions devrait être plus fréquente (pilotage automatique ou drones) mais la gamme des altitudes des mesures aéroportées est différente de celle des mesures effectuées à bord des ballons.

Les mesures *in situ* sont utilisées à bord des ballons météorologiques, l'information étant cansmise au sol par ondes radio, et permettent de mesurer directement les paramètres atmosphériques : la plupart des instruments *in situ* exploitent l'effet physique ou les changement des propriétés physico-chimiques des détecteurs en contact avec le milieu atmosphérique.

Proposée en 1845 par Schönbein et fondé sur le pouvoir oxydant de l'ozone, le premier système d'analyse *in situ* de l'ozone est basé sur la réaction d'un papier d'iodure de potassium en présence d'une faible quantité d'ozone [Mégie, 1992]. Perfectionnés ces dernières décennies, les appareils de mesures *in situ* utilisent des électrodes: ce sont les sondes électro-chimiques (*Electrochimical Concentration Cell, ECC*). La technique de mesure consiste en la détection élec.*rochimique* de l'ozone dans une solution d'iodure de potassium : chaque molécule d'ozone qui traverse la cellule libère une molécule d'iode ( $I_2$ ) convertie en deux ions iodure (2  $I^-$ ) qui déclenche un signal électronique. Elles sont souvent couplées à des sondes météorologiques classiques pour le relevé des paramètres de pression/température, le tout étant embarqué sous des ballons sondes de petite taille. Ce système amélioré per net d'obtenir une résolution verticale minimum de l'ordre du 0.1 km, jusqu'à l'altitude maximale du ballon. La précision des mesures est de l'ordre de 10 % pour les altitudes inférieures à 25 km, et de 20 % pour les altitudes plus élevées. Les sondes actuelles permettent de détecter  $O_3$  à des concentrations relatives de l'ordre de 10 ppbv.

Les plates-formes spatiales A partir des années 70, ce moyen d'investigation a pris une importance particulière dans la recherche atmosphérique. D'un coût de développement initial important. les satellites offrent néanmoins plusieurs avantages [Bonn et Rochon, 1993; Lenoble, 1993]:

- une plus grande couverture spatio-temporelle,

- une acquisition de données permettant une étude journalière des phénomènes dynamiques et chimiques,
- une indépendance vis à vis de l'intervention d'un expérimentateur (systèmes très automatisés),
- un coût d'exploitation des données à long terme pouvant devenir moins onéreux que celui des plate<sub>s</sub>-formes aéroportées.

La répétivité des mesures spatiales dépendent des choix du détecteur et de l'orbite (*géostationnaire*, *polaire* ou à *orbite inclinée*...). Le choix de l'orbite définit la couverture géographique et la fréquence de répétition de la mesure au dessus d'un site donné.

En général, les mesures spatiales conviennent bien pour l'étude des tendances des espèces moléculaires à long terme : par exemple, SAGE II (paragraphe 3.1.1) fournit des profils de concentration de constituants atmosphériques depuis 1984. Le TOMS (*Total Ozone Mapping Spectrometer*), qui mesure les colonnes intégrées des constituants atmosphériques, est une des exceptions : ses mesures ont du être étalonnées afin de corriger les erreurs liées à la dégradation de la plaque diffusante (qui n'est pas la même à toutes les longueurs d'onde). La dérive avait pour conséquence l'introduction d'un biais dans les mesures, conduisant à la détermination des quantités d'ozone inférieures à celles obtenues par le réseau des spectromètres Dobson [Staehelin et al., 2001; Mégie, 1989]. L'étalonnage des mesures actuelles de TOMS est effectué à l'aide des mesures du réseau des spectromètres Dobson [Staehelin et al., 2001].

Même si les satellites sont les seuls à pouvoir fournir une vision globale des paramètres physico-chimiques de l'atmosphère, les mesures satellitaires ne sont pas immédiatement utilisables, sans campagne de validation. L'intérêt de ces validations est d'effectuer des comparaisons entre les mesures ballons et les mesures satellites avec une bonne coïncidence entitemporelle (même date, même endroit). Les LIDAR contribuent également à ces campagnes pour certains paramètres atmosphériques (profils de température, de  $O_3 \dots$ ). Une campagne de mesures englobant les instruments sol-ballon-satellite permet également une bonne complémentarité des différentes mesures pour une étude optimale des processus physico-chimiques et des phénomènes dynamiques.

Ces dernières décennies, les plates formes spatiales ont bénéficié de :

 L'amélioration des outils informatiques, permettant d'optimiser les chaînes d'acquisition et de traitement des données.

- L'évolution des techniques électroniques dans les années 80, notamment l'apparition des détecteurs à barrettes de diodes électroluminescentes et des CCD (*Charged Coupled Device*), permettant le développement des nouveaux spectromètres à larges bandes spectrales. Aujourd'hui, l'observation simultanée d'un grand nombre de longueurs d'onde dans un large domaine spectral est possible. Il n'y a plus besoin d'enregistrer la variation temporelle du signal, au cours du balayage du spectromètre. L'enregistrement du spectre se fait en une seule fois avec un détecteur CCD.

Tout système de mesure à distance est composé d'une source radiative, d'une unité de réception, d'un filtre spectral, d'un détecteur et d'un système d'acquisition et de traitement des données. Les systèmes de télédétection peuvent être divisés en deux principales catégories:

- Sys. les de télédétection actifs, dont le principe est le sondage actif du milieu par écho à l'aide d'une source lumineuse émise par l'instrument : c'est le cas des LIDAR ou des radars.
- Systèmes de télédétection passifs: c'est le car des photomètres, radiomètres, spectromètres ... Leur principe repose sur l'observation passive des sources lumineuses naturelles (soleil, lune, étoiles ...) ou des émissions de l'atmosphère ou de la Terre (télédétection infrarouge).

La technique de traitement des données, qui s'applique pour ces mesures de télédétcction passive à distance, est du type DOAS (*Differential Optical Absorption Spectroscopy*). Les concentrations (profils verticaux ou colonnes intégrées) des espèces atmosphériques, qui contribuent au spectre différentiel, sont obtenues par comparaison avec la bibliothèque des signatures spectrales de référence de ces espèces.

Les tableaux 2.1 et 2.2 récapitulent l'ensemble des principaux instruments, embarqués à bord de ballon ou à bord de plate-forme satellitaire et utilisés pour l'étude des composants stratosphériques.

## 2.3 L'absorption

## 2.3.1 Les fenêtres atmosphériques

En 1879, Cornu suggère que la coupure de la partie UV du spectre solaire reçu au sol est une conséquence de l'absorption par l'atmosphère. En 1880, Hartley, en mesurant l'absorption de l'ozone dans la région ultraviolette (dite bande Hartley), démontre que l'ozone est

57

		BALLONS			
RADIBAL	RADIOMÈTRE BALL	ON			
micro RADIBAL	IR proche	Mesures spectrales, directionnelles et polarisées : étude			
		des aérosols stratosphériques.			
AMON	Absorption par Minoritaires Ozone et NOX				
	voir chapitre 4				
SALOMON	SPECTROMÉTRIE D'ABSORPTION LUNAIRE POUR L'OBSERVATION				
	des Minoritaires Ozone et NOX				
	voir chapitre 4				
SAOZ	Système d'Analyse par Observation Zénithale				
	~ 290 - 600 nm	Occultation solaire du soleil direct			
		Méthode de reconstitution par spectrométrie différentielle			
		Espèces cibles : $O_3$ , $O_4$ , $NO_2$ et $H_2O_{vap}$			
		Instrument embarqué à bord d'un ballon			
		(11 existe une version au sol sur lumière zénithale)			
LPMA	LIMB PROFILE MONITOR OF THE ATMOSPHERE				
	Infrarouge thermique	Enregistrement du spectre par absorption			
	- proche	Espèces cibles : molécules du réservoir de chlore,			
		notamment HCl, ClNO <sub>2</sub> ,O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub> , HNO <sub>3</sub>			

TAB. 2.1 – Principaux instruments de télédétection passive à bord des ballons [Sarkissian, 1992; Ramon, 1995; CNES, 1996].

GOME	GLOBAL OZONE MO	nitoring Experiment
		Absorption différentielle (DOAS)
		Enteristrement de la colonne intégrée O1. NO2. BrO. OCIO
		at dae profile verticative d'Os
COMOS	CLOBAT OZONE MO	NITODING OCCUPATIONS DV STADE
001100	0108XD 020NB MC	Occultation stallaise
	·• 200-300 mm	Encodetroment des profile des constituents minoritaires $H_0O_{10}$
		famnérature et sérende
WATCHE	THOORN OCOURS	
INLOL	TD	Operative estates
	.430	Declination solare
** • •	ti mutane tana tan	Proius des gaz stratosphenques, aerosois, temperature
ILAS	IMPROVED LIMB AT	MOSPHERIC SPECTROMETER
	IR	Occultation solaire
	$\sim 6.21 - 11.77 \ \mu m$	Espèces cibles : $O_3$ , $HNO_3$ , $NO_2$ ,
	Vis. 753 - 784 nm	$N_2O$ , $CH_4$ , $H_2O_{vap}$ et aérosols à 780 nm
MIPAS	MICHELSON INTERF	erometric Passive Atmospheric Sounding
	IR moyen	Mesure au limbe du spectre d'émission atmosphérique
		Espèces cibles : $O_3$ , $NO_x$ , $CO_2$ , $CFCs$ , aérosols et $H_2O_{vap}$
ORA	OCCULTATION RAD	OMETER
	UV-visible	Occultation solaire
		Espèces cibles : $O_3$ , $NO_x$ , $H_2O_{vap}$ et aérosols
POAM	POLAR OZONE AND	AEROSOL MEASUREMENT
	~ 352 - 1060 nm	Occultation solaire
		Enregistrement des profils O3, NO2, H2Ovep et aérosols
SAGE	STRATOSPHERIC AE	ROSOL AND GAS EXPERIMENT voir chapitre suivant
SBUV	SOLAR BACKSCATTE	R ULTRAVIOLET
	~ 252 - 340 nm	Même principe de fonctionnement que TOMS mais
		limité à une géométrie d'observation au nadir
		permet d'obtenir le profil vertical de l' $O_3$ avec le principe Umkehr
		Problèmes de calibration absolue
SCIAMACHY	SCANNING IMAGING	ABSORPTION SPECTROMETER FOR ATMOSPHERIC CHARTOGRAPHY
		Deux géométries d'observation : Nadir et limbe
		avec deux sources lumineuses : Soleil et Lune
		Abondance des constituants stratosphériques + aérosols et PSC
TOMS	TOTAL OZONE MAP	PING SPECTROMETER
	~ 310 - 380 nm	Mesure par visée au nadir du rayonnement solaire rétrodiffusé
		par l'atmosphère et mesure du spectre solaire incident par visée
		d'un diffuseur. Cartographie journalière de la colonne intégrée d'Oa
		Des problèmes de dégradations ont conduit à la calibration
		Au antica, and some liberthan aven has manner de stanan Dakonn

TAB. 2.2 – Principaux instruments satellitaires de télédétection passive [Staehelin et al., 2001 et les références aui u sont citées].

59

le composant responsable de cette absorption dans l'UV. Chappuis (1880), Huggins (1880) et enfin, Meyer (1903) analysent l'ensemble du spectre de l'ozone et mettent en évidence le pouvoir absorbant de l'ozone pour le rayonnement UV et visible [Dobson, 1968].

Les gaz atmosphériques, notamment l'oxygène et l'ozone, absorbent fortement dans l'ultraviolet et ne laissent passer jusqu'au sol que les rayons solaires de longueur d'onde supérieure à 310 nm. Dans le visible, l'atmosphère terrestre est presque *transparente* : cette région spectrale de bonne transmission est connue sous le nom de fenêtre atmosphérique visible, et couvre le domaine spectral entre 350 et 800 nm [Lenoble, 1993]. Dans cette fenêtre, l'absorption résiduelle est principalement due aux gaz (notamment  $O_3$ ,  $NO_2$ ,  $NO_3$  ...). Dans le proche infrarouge, le rayonnement solaire est absorbé par la vapeur d'eau et le  $CO_2$ , avec leurs bandes d'absorption séparées par des fenêtres étroites. Enfin, dans la région spectrale [4-50  $\mu$ m], correspondant à l'émission du corps noir à la température tellurique. il y a des fortes structures d'absorption essentiellement dues au spectre d'absorption de la vapeur d'eau (et à son continuum), de l'ozone et du  $CO_2$ . D'où l'intérêt des méthodes des mesures optiques à distance du spectre de l'atmosphère en absorption ou en émission.

En général, les bandes d'absorption ultraviolettes et visibles sont largement dûes aux transitions électroniques. Dans l'infrarouge, les transitions de rotation et de vibration sont en grande partie responsables des bandes d'absorption observées. Le spectre d'absorption d'un gaz se compose d'une structure de raies organisées en bandes. 51 les raies individuelles ne sont pas affectées par le phénomène d'interférences entre raies, les profils individuels des raies contribuent de façon additive au cœfficient d'absorption.

## 2.3.2 Quelques remarques sur les données spectroscopiques ...

De façon générale, le cœfficient d'absorption  $\sigma_A^{abs}$  ( $cm^{-1}$  ou  $km^{-1}$ ) est le produit de la concentration des particules absorbantes et de la section efficace d'absorption moléculaire, qui dépend de la température et de la pression totale de l'échantillon, de la longueur d'onde qui le traverse et des propriétés chimiques de l'espèce moléculaire A :

$$\sigma_A^{abs} = d_A \sigma_A^{mol}(\lambda, T) \tag{2.18}$$

Où  $d_A$  est la concentration absolue (ou densité numérique) du gaz, c'est à dire le nombre de molécules par unité de volume (molecule.cm<sup>-3</sup>);  $\sigma_A^{mol}$  est la section efficace d'absorption moléculaire de l'espèce considérée A, exprimée en (cm<sup>2</sup>.molecule<sup>-1</sup>). Dans la suite,

Mesure du O3	Température (K)	Gamme de longueur d'onde	Pas
		(nm)	(nm)
Shettle et Anderson [1994]	180, 200, 220 et 240	407.1 - 1089.0	0.1
Brion et al. [1985]	298	345.0 - 830.0	0.01
Burrows et al. [1999]	202 et 221	230.91 - 793.82	de 0.2 å
	241, 273 et 293	230.79 - 793.81	0.4

TAP 2.3 – Différentes caractéristiques de mesures des sections efficaces d'absorption monochromatiques de l'ozone.

l'appellation de densité moléculaire ou de concentration est préférée au terme de densité numérique.

Les données spectroscopiques fournissent les paramètres permettant de modéliser les bandes d'absorption en fonction du nombre d'onde  $\nu$  ou en fonction de la longueur d'onde  $\lambda$ , prises soit dans le vide ( $\nu_{vide}$  ou  $\lambda_{vide}$ ) soit dans l'air ( $\lambda_{air}$ ). Pour travailler dans de bonnes conditions, les sections efficaces sont recalées aux longueurs d'onde dans le vide lorsque c'est nécessaire :

$$\lambda_{vide} = n \,\lambda_{vir} \tag{2.19}$$

Pour simplifier, l'indice de réfraction n est pris égal à l'indice de réfraction standard de l'air  $n_s \sim 1,0003$  (pour  $T_s = 15$  °C et  $p_s = 1013.25$  hPa) (équation 2.10) [Edlen, 1966].

Nous allons présenter ici les sections efficaces d'absorption moléculaires utilisées dans cette thèse. Nous nous limiterons aux régions spectrales couvertes par les expériences SAGE III, AMON et SALOMON.

## 2.3.3 Coefficient d'absorption de l'ozone

Dans l'ultraviolet, la molécule d'ozone possède une forte structure d'absorption, présentant une série de petites oscillations par rapport au continuum : cette bande, dite de Hartley, centrée autour de 250 nm, couvre la région [242-310 nm] et est prolongée par la bande de Huggins [310-400 nm]. L'ozone possède aussi une faible bande d'absorption située dans le visible, la bande de Chappuis, centrée autour de 600 nm, s'étendant dans un domaine spectral assez large [400-1000 nm]. Cette bande est particulièrement importante pour les mesures



FIG. 2.2 – Section efficace d'absorption de l'ozone dans la bande de Hartley-Huggins: les lignes proviennent des données de Burrows et al. [1999], les X proviennent de celles de Brion et al. [1985]. Les températures correspondantes sont respectivement de 221 K et de 289 K.

de SAGE III ; c'est cette bande qu'on exploitera le plus dans cette thèse pour la mesure de  $O_3$ .

La plupart des travaux sur l'absorption de  $O_3$  reposent sur des mesures de sections efficaces relatives (méthode de spectroscopie différentielle). Pour obtenir des valeurs absolues, ces mesures relatives sont normalisées par rapport à la section efficace d'absorption absolue de l'ozone à une longueur d'onde particulière, valeur qu'on suppose bien déterminée par des mesures de concentration absolue de l'ozone à une température de référence (le plus souvent à 298 K) pour des longueurs d'onde bien déterminées (Burkholder et Talukdar, 1994). Parmi celles-ci, citons la raie d'absorption du mercure à 253.7 nm ou les raies du laser He-Ne (à 632 nm, entre autres), qui servent de repère de l'échelle des longueur d'onde, notamment pour les corrections des décalages spectraux. Obtenir le spectre de O3 avec une bonne précision revient à connaître précisement la densité moléculaire dans le volume traversé par le faiseau laser : c'est assez problématique car l'ozone se tranforme assez rapidement en oxygène O2 dans la même échelle de temps que celle de l'enregistrement du spectre [Anderson et Mauersberger, 1992]. Lorsqu'on réalise des mesures sur un mélange  $O_3 + O_2$ , on peut éliminer la contribution des bandes d'absorption de l'oxygène moléculaire autour de 688 nm et de 762 nm [Burkholder et Talukdar, 1994]. Il suffit de soustraire les rales ou bandes d'absorption de  $O_2$  pour obtenir les bandes d'absorption de  $O_3$ . Il faut donc une concentration de ~  $6.10^{17}$  molecule.cm<sup>-3</sup> de  $O_3$  plongé dans le mélange de  $O_2$  pour obtenir des mesures suffisantes des plus faibles sections efficaces.

Nous disposons de plusieurs jeux de sections efficaces d'absorption de l'ozone  $\sigma_{03}^{mol}$  (Tableau 2.3, Figures 2.2 et 2.3): celles de Shettle et Anderson [1994], réalisées dans le domaine spectral [407-1089 nm], normalisées à l'aide des sections efficaces absolues d'Anderson et Mauersberger [1992], aux 5 longueurs d'ondes spécifiques du laser He-Ne, couvrant la bande de Chappuis, et lissées; les données de Brion et al. [1985], qui couvrent le domaine spectral [345-830 nm] et comblent le vide des données dans la région [360-410 nm] où il y a très peu d'absorption; et enfin, les dounées de Burrows et al. [1999], qui couvrent la région [230-793 nm]. La comparaison entre les trois jeux de sections efficaces dans la bande de Chappuis, présentée dans la figure 2.4, est obtenue en divisant chacune des sections efficaces disponibles par la moyenne des sections efficaces de Shettle et Anderson [1994] et de Burrows et al. [1999]. La précision des données est d'environ 1% à 2% autour du maximum de la bande de Chappuis mais diminue rapidement dans les ailes, pour les longueurs d'ondes extrêmes, autour de



FIG. 2.3 – Section efficace d'absorption de l'ozone (Bande de Chappuis) avec les données de Shettle et Anderson [1994], Brion et al. [1985] et Burrows et al. [1999]



FIG. 2.4 – Rapport des trois sections efficaces d'absorption du  $O_3$  par rapport à la moyenne (Shettle+Burrows)/2.



FIG. 2.5 – Différence relative en % entre les sections efficaces de Shettle et celles de Burrows: la différence relative est exprimée par 100\*(Shettle-Burrows)/((Shettle+Burrows)/2)

407 et de 1089 nm: les incertitudes proviennent essentiellement de l'incertitude de la valeur zéro du spectre de référence absolu [SAGE III ATBD, 2000]. Ce dernier document souligne également que les valeurs des sections efficaces de Burrows et al. [1999] à 298 K sont plus grandes que celles fournies par Shettle et Anderson [1994] et celles de Brion et al. [1998]. Une comparaison simple des données de Burrows et al. [1999] avec celles de Shettle et Anderson [1994] montre que les différences relatives sont de l'ordre de 4% autour du maximum à 600 nm et atteignent des valeurs supérieures à 60% aux longueurs d'onde extrêmes (Figure 2.5).

Le spectre de l'ozone dépend de la température. On peut présenter les conclusions de l'article de Burkholder et Talukdar [1994] ainsi que l'analyse des données de Burrows et al. [1999] (Figure 2.6) de la manière suivante :

Le spectre de l'ozone varie très peu autour du maximum de la bande de Chappuis (~
0.5%) lorsque la température décroît de 298 K à 202 K.

 Aux longueurs d'ondes extrêmes, la variation peut atteindre 40 % (notamment autour de 400 nm).



FIG. 2.6 – Dépendance des sections efficaces en fonction de la température dans les bandes de Chappuis: rapport des spectres d'absorption mesurés aux températures 273 K, 241 K, 221 K et 202 K par la section efficace d'absorption de O<sub>3</sub> à 293 K [Burrows et al., 1999].

- La section efficace absolue dépend donc de la température: la précision des mesures aux basses températures stratosphériques est donc limitée par celle avec laquelle sont effectuées les mesures des sections efficaces absolues à 298 K, sauf si les sections efficaces absolues sont mesurées à la bonne température.
- Les intensités des baades d'absorption de l'oxygène  $O_2$  variant avec la température, il faut les soustraire une par une pour obtenir la section efficace de l'ozone.
- Il y a une incohérence interne dans la dépendance en fonction de la température des sections efficaces de Burrows et al. [1999], incohérence relevée par le document [SAGE III ATBD, 2000].

Pour conclure, le document cité [SAGE III ATBD, 2000] confirme les besoins actuels pour l'établissement de nouvelles données spectroscopiques de  $O_3$ , plus précises, et étendu vers les basses températures, en particulier jusqu'à 180 K, afin de couvrir toute la gamme des températures stratosphériques. Dans le proche infrarouge, les données disponibles sont encore déficientes alors qu'elles sont indispensables pour *retirer* la contribution de l'ozone, en tant qu'espèce interférente dans les bandes où sont mesurées les aérosols et la vapeur d'eau.

## 2.3.4 Cœfficient d'absorption du $NO_2$

La bande d'absorption du dioxyde d'azote  $NO_2$  s'étend de 290 à 600 nm et présente un maximum vers 400 nm. Les mesures du spectre d'absorption sont délicates à cause de la présence du dimère  $N_2O_4$ , qui se forme à l'équilibre chimique à travers la réaction  $2NO_2 \rightarrow N_2O_4$ . Les bandes d'absorption du  $N_2O_4$  se superposent alors à celles du  $NO_2$  pour les longueurs  $\lambda \leq 400$  nm. La connaissance de la pression partielle du  $N_2O_4$  (et donc du rapport de mélange exact de  $NO_2$ ) est donc déterminante pour le calcul de la section efficace absolue du  $NO_2$  [Harder et al., 1997]. Mais l'estimation de la pression partielle du  $N_2O_4$  est souvent entachée d'erreurs, dues notamment à l'incertitude sur la constante d'équilibre  $K_p$  de la réaction  $2NO_2 \rightarrow N_2O_4$  [Hurtmans et al., 1993].  $K_p$  est mal déterminée, surtout aux basses températures où  $N_2O_4$  est le plus abondant. Les expérimentateurs, notamment l'équipe de Vandaele et al. [1998], cherchent à limiter la formation du  $N_2O_4$ , en diminuant la pression dans la cellule traversée par le rayonnement continue ou par le faiseau laser, pour obtenir un meilleur rapport signal au bruit. Dans l'ensemble, les travaux de Hurtmans et al. [1993] et de Vandaele et al. [1998] estiment la précision des sections efficaces du  $N_2O_4$  de 2% à 25%. Pour les mesures à température ambiante, soit 294 K, la concentration du  $N_2O_4$  est faible

Mesure du NO2	Température (K)	Gamme $\lambda$	Pas	Pression partielle	Remarques
		(um)	(nm)	NO <sub>2</sub> (mTorr)	
Schneider et al.	298	200 - 700	0.04-0.05	0.6 - 18	mauvaise calibration
[1987]				(air)	des longueurs d'onde
Mérienne et al.	220 et 240	400 - 500	0.01	10 - 30	80115-
[1995]					échantillonnage
	293	300 -700	0.01	$(N_1 \text{ ou } NO_2 \text{ pur})$	
Harder et al.	217	390.2 - 549.8	0.05	8 - 50	Dérive due
Harder et al. [1997]	217	390.2 - 549.8	0.05	8 - 50 (air)	Dérive due à des problèmes de
Harder et al. [1997]	217 230.2, 238.6	390.2 - 549.8 345.2 - 549.8	0.05 0.05	8 - 50 (air)	Dérive due à des problèmes de lampe
llarder et al. [1997]	217 230.2, 238.6 et 293.8	390.2 - 549.8 345.2 - 549.8	0.05 0.05	8 - 50 (air)	Dérive due à des problèmes de lampe
Ilarder et al. [1997] Vandaele et al.	217 230.2, 238.6 et 293.8 220	390.2 - 549.8 345.2 - 549.8 238 - 666.5	0.05	8 - 50 (air) 7 - 60	Dérive due à des problèmes de lampe Dérive constatée
Ilarder et al. [1997] Vandaele et al. [1998]	217 230.2, 238.6 et 293.8 220	390.2 - 549.8 345.2 - 549.8 238 - 666.5	0.05 0.05 0.04	8 - 50 (air) 7 - 60 (NO <sub>2</sub> pur)	Dérive due à des problèmes de lampe Dérive constatée pour λ ≥ 330 nm
Ilarder et al. [1997] Vandaele et al. [1998]	217 230.2, 238.6 et 293.8 220	390.2 - 549.8 345.2 - 549.8 238 - 666.5	0.05	8 - 50 (air) 7 - 60 (NO <sub>2</sub> pur)	Dérive due à des problèmes de lampe Dérive constatée pour λ ≥ 330 nm
Ilarder et al. [1997] Vandaele et al. [1998] Burrows et al.	217 230.2, 238.6 et 293.8 220 221, 241 et 273	390.2 - 549.8 345.2 - 549.8 238 - 666.5 230.9 - 794.0	0.05	8 - 50 (air) 7 - 60 (NO <sub>2</sub> pur) (air)	Dérive due à des problèmes de lampe Dérive constatée pour λ ≥ 330 nm

TAB. 2.4 – Différentes caractéristiques de mesures des sections efficaces d'absorption monochromatiques du  $NO_2$ 



69

FIG. 2.7 - Section efficace d'absorption du dioxyde d'azote à 221 K [Burrews et al., 1998]

pour des conditions de forte pression : la contribution du spectre d'absorption du  $N_2O_4$  ne dépasse pas 0.1% et peut être négligée. A la température stratosphérique de 220 K, il faut tenir compte de l'absorption du  $N_2O_4$  pour  $\lambda \leq 400$  nm. Les erreurs sur  $N_2O_4$  et  $NO_2$  sont alors corrélées et l'erreur standard calculée augmente de 2% (à 400 nm) à 5% (à 333 nm) et à plus de 50% pour  $\lambda \leq 295$  nm [Vandaele et al., 1998].

La littérature abonde de plusieurs jeux des sections efficaces d'absorption monochromatique du  $NO_2$  (Tableau 2.4). La figure 2.7 présente l'allure de la bande d'absorption du  $NO_2$ dans la région spectrale 300-600 nm. La comparaison entre les quatre jeux de sections efficaces est donnée dans la figure 2.8, obtenue par division de chacune des sections efficaces par la moyenne des 4 sections efficaces.

L'intercomparaison de ces données montre des divergences notables, de l'ordre de 10 % à 20 % [SAGE III ATBD, 2000]. Les protocoles expérimentaux varient d'une équipe à une autre et peuvent expliquer la divergence des résultats obtenus. Par exemple, certains expérimentateurs choississent d'utiliser l'air plutôt que l'azote pur, dans le *remplissage* de la cellule d'observation, afin de minimiser l'effet de photolyse du  $NO_2$  par la lampe (Tableau 2.4).



FIG. 2.8 – Rapport des quatres sections efficaces d'absorption du  $NO_2$  par rapport à la moyenne



FIG. 2.9 – Dépendance des sections efficaces en fonction de la température : rapport des spectres d'absorption mesurés aux températures 273 K, 241 K et 221 % par la section efficace d'absorption du NO<sub>2</sub> à 298 K [Burrows et al., 1998].

Harder et al. [1997] ont comparé les sections efficaces du  $NO_2$  actuellement disponibles (à l'exception des données publiées ou disponibles depuis) et ont mis en évidence les causes qui interviennent dans les incertitudes des sections efficaces. Ce sont notamment des problèmes de décalage de l'échelle de longueur d'onde, de calibration absolue des sections efficaces, de balayage du domaine spectral par le détecteur ou de trop forte photodissociation du  $NO_2$  dans la cellule. On se réfera à l'article de Harder et al. [1997] où sont détaillés les problèmes rencontrés par les expérimentateurs.

La section efficace du  $NO_2$  dépend de la température et de la pression. L'effet d'une diminution de la température (Figure 2.9) se traduit par une augmentation de l'absorption aux maxima des pics et une diminution aux minima [Burrows et al., 1998; Vandaele et al., 1998]. L'influence de la température s'explique par une redistribution de la population des niveaux inférieurs (diminution du nombre des niveaux vibrationnels peuplés, niveaux rotationnels peuplés moins nombreux à basse température).

Quant à la pression, son effet peut se traduire par une différence relative de 40% à 45% aux pics du spectre d'absorption en fonction de la pression partielle, variant de 0.02 à 1.0



FIG. 2.10 – Section efficace d'absorption du trioxyde d'azote à 243 K [Deters et Burrows, 1998]

Torr [Vandaele et al., 1998]. Actuellement, il n'y existe pas d'expression simple pour décrire cette dépendance en fonction de la pression.

## 2.3.5 Cœfficient d'absorption du NO<sub>3</sub>

Les bandes d'absorption du  $NO_3$  sont présentes dans la région de 640 à 680 nm. La génération du  $NO_3$  dans les conditions expérimentales se fait via la réaction  $F + HNO_3 \rightarrow$  $HF + NO_3$ , mais on peut également le produire via la réaction de OH avec  $HNO_3$ . La section efficace est calculée en prenant en compte l'augmentation du  $NO_3$  avec la diminution de la température dans la cellule [Ravishankara et Mauldin, 1986]. D'après eux, si la forme de la bande, autour de 662 nm, ne varie pas avec la température, la section efficace au pic augmente de 40% entre 298 K et 220 K.

Les questions qui se posent actuellement concernent la dépendance des sections efficaces en fonction de la température et la section efficace absolue du  $NO_3$ . Enfin, les incertitudes sont estimées à 10-15% pour la température ambiante et à 20-25% pour les températures stratosphériques [SAGE III ATBD, 2000]. Nous disposons des données de Deters et Burrows [1998], couvrant la région spectrale de 617 nm à 704.9 nm avec une résolution de 0.2 nm,



FIG. 2.11 - Section efficace d'absorption du dioxyde de chlore [Wahner et al., 1987]

pour la température de 243.15 K (Figure 2.10).

## 2.3.6 Coefficient d'absorption du OCIO

Les bandes d'absorption du OClO présentent une série de pics d'absorption entre 280 et 480 nm. Les incertitudes sur les sections efficaces proviennent de la dépendance par rapport à la température. Wahner et al. [1987] observent dans la région 380-454 nm une augmentation de l'intensité des pics de 20 à 32% lorsque la température diminue de 298 K à 204 K. Cette augmentation de l'intensité liée a la diminution de la température résulte d'une redistribution des populations des niveaux de rotation et de vibration, donnant des bandes de vibration plus intenses et plus étroites [Frost et al., 1996]. Enfin, la détermination de la section efficace absolue de OCIO est difficile à cause de la présence de  $Cl_2$  connue provenant des réactions de photolyse du OCIO dans la cellule : les spectres du  $Cl_2$  se superposent alors aux spectres du OCIO dans les mesures. La procédure de soustraction des contributions de  $Cl_2$  et des autres oxydes du chlore est expliquée dans Kromminga et al. [1999].

Nous disposons de deux banques de sections efficaces de dioxyde de chlore: les sections efficaces d'absorption de Wahner et al. [1987], couvrant la région spectrale [242.52 - 475.95
nm], avec un pas spectral de ~ 0.07 nm et les sections efficaces de Kromminga et al. [1999], plus récentes, couvrant la région spectrale [312- 450 nm] avec un pas de 0.^97 nm, déterminées pour 5 températures de 213 à 293 K. Les sections efficaces de Wahner et al. [1987] sont recommandées pour l'analyse des transmissions de SAGE III par le document [SAGE III ATBD, 2000]. L'estimation de l'incertitude des sections efficaces de Wahner et al. [1987] y est mentionnée et vaut 3 à 5 %. Mais ce document ne mentionne pas l'existence des nouvelles sections efficaces de Kromminga et al. [1999]. Pourtant, ces travaux-ci présentent l'avantage d'une meilleure résolution spectrale  $(1 cm^{-1})$  et d'un meilleur étalonnage des longueurs d'onde par utilisation d'un spectromètre FTS (*Fourier Transform Spectrometer*) dont la différence de marche est déterminée à l'aide d'un laser He-Ne stabilisé : la précision des longueurs d'onde obtenue grâce à cette technique est inférieure à 0.001 nm. L'erreur expérimentale sur les sections efficaces d'absorption absolues est largement inférieure à 10%, avec des valeurs autour de 5% [Kromminga et al., 1999].

La comparaison entre les deux jeux de sections efficaces dans la région [380 - 420 nm], utilisées dans le cadre de cette thèse est reportée sur la figure 2.12: les sections efficaces de Wahner et al. [1987] et de Kromminga et al. [1999] sont tracées avec leur différence relative, obtenue par division de chacune de ces sections efficaces par la moyenne des deux. On constate que le décalage entre les deux sections efficaces dans le domaine spectral [380 -420 nm] est de l'ordre de 0.2 à 0.5 nm. De ce fait, les différences relatives sont importantes, avec des valeurs entre 50 et 150 % (Figure 2.12). Elles augmentent dans les pics des raies d'absorption et diminuent jusqu'à des valeurs négatives de -80 % dans les ailes. Dans la suite, on préferera utiliser les sections efficaces de Kromminga et al. [1999]. prises à la température stratosphérique de 213 K. En effet, le décalage spectral des données de Wahner et al. [1987] étant supérieur à la résolution spectrale de certains des spectres atmosphériques analysés dans ce travail, leur utilisation risque de créer des erreurs supplémentaires.

### 2.3.7 Et les autres constituants ...

Oxygène moléculaire L'oxygène moléculaire  $O_2$  possède des raies d'absorption, notamment dans le domaine spectral où s'effectuent habituellement les mesures de transmission atmosphériques. Ces structures peuvent donc se superposer aux raies d'absorption des autres molécules à l'état de traces. Pour compléter les informations sur les principales raies d'absorption, on peut se référer à l'article de Greenblatt et al. [1990].



FIG. 2.12 – En haut: Sections efficaces de Wahner et al. [1987] et celles de Kromminga et al. [1999] dans le domaine spectral [380-420 nm]. En bas: Différence relative exprimée en % par 100\*(Wahner-Kromminga)/((Wahner+Kromminga)/2).

Sachant que l'oxygène est uniformément réparti autour du globe et que la concentration de l'oxygène est proportionnelle à la densité totale de l'atmosphère, l'utilisation de la loi des gaz parfaits et de l'hypothèse de l'équilibre hydrostatique permet de déduire le profil de pression et de température à partir du profil vertical de concentration de l'oxygène. Pour cela, on utilise principalement la bande de l'oxygène moléculaire, située autour de 760.8 nm, dite la Bande A de l'oxygène (*Oxygen A-Band*). Cela permet d'avoir une source indépendante des données météorologiques fournies par le NCEP (*National Center for Environmental Prediction*), qui ont été nécessaires pour permettre d'inverser l'3 mesures de SAGE I, SAGE II [SAGE III ATBD, 2000] et pour POAM II, lorsque le canal à 761.2 nm a été saturé [Ramananahérisoa, 1998].

Vapeur d'eau Les bases de données spectroscopiques de la vapeur d'eau  $H_2O_{vap}$  actuellement disponibles proviennent de HITRAN (HIgh-resolution TRANsmission molecular absorption database) ou de GEISA (Gestion et Etudes des Informations Spectroscopiques Atmosphériques). Mais elles ne sont pas encore totalement fiables à cause des inexactitudes des positions et des intensités des raies d'absorption. Les structures des raies d'absorption de la vapeur d'eau, situées dans le visible, sont faibles et sont situées dans la bande 565-605 nm avec des intensités plus fortes autour de 579 nm, dans la bande 660-680 nm, autour de 780 nm et autour de 940 nm. La vapeur d'eau absorbe fortement dans l'infrarouge. Pour complément, on se référera au document [SAGE III ATBD, 2000].

# Chapitre 3

Présentation de l'expérience satellitaire SAGE III Mise en place des algorithmes d'inversion de SAGE III

# 3.1 Présentation de l'expérience satellitaire SAGE III

# 3.1.1 L'héritage de SAGE III

Le premier instrument d'occultation solaire SAM (Stratospheric Aerosol Measurement) fut un simple photomètre portatif, sans téléobjectif, limité à un seul canal spectral vers 830 nm. SAM a été mis en place dans le cadre de la mission Apollo-Soyuz de 1975: les astronautes, à bord de la capsule Apollo, ont enregistré avec ce photomètre une série de photos des levers et des couchers du soleil à travers le limbe terrestre [Pepin et McCormick, 1976; McCormick et al., 1979]. Cette expérience a démontré la faisabilité de cette approche et ouvert de nouvelles perspectives, conduisant à la préparation des programmes SAM II et SAGE (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment).

Embarqué le 24 octobre 1978 à bord du satellite américain Nimbus 7, l'instrument SAM II a permis de mesurer l'extinction des aérosols dans la bande passante centrée à la longueur d'onde 1  $\mu$ m [McCormick et al., 1979]. Dans cette région spectrale, les absorptions par les

instrument	SAM II	SAGE	SAGE II	SAGE III (1)	SAGE III (2)	
Satellite	Nimbus 7	AEM-2	ERBS	Meteor 3M	ISS	
Altitude de l'orbite (km)	955	600	610	1020	385	
Inclinaison	99.3 °	55 °	57 °	99.53 °	57 °	
Couverture Géographique	64 - 80 °N	79 °N -	80 °N -	50 - 80 °N	70 °N -	
	64 - 80 °S	79 °S	80 °S	30 - 50 °S	70 °S	
Couverture Temporelle	Octobre 1978	Fev. 1979	Oct. 1984 -	2002?	2002?	
	- 1994	- Nov. 1981	présent			
Nombre de canaux	1	4	7	12	12	

TAB. 3.1 – Instruments d'occultation solaire SAM et SAGE [D'après SAGE III - ATBD, 2000 et les références pré-citées].

gaz atmosphériques sont négligeables, l'atténuation observée par SAM II est essentiellement liée à la diffusion par les particules d'aérosols et par les molécules (diffusion de Rayleigh).

Le 18 février 1979 est lancé à bord du satellite AEM-2 (Application Explorer Mission) le premier instrument de la série SAGE (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment), dont les mesures sont similaires à celles de SAM II. La couverture spectrale de l'instrument SAGE a été élargie par rapport à celle de SAM avec des bandes spectrales autour de 0.385, 0.45 et  $0.6 \ \mu$ m. L'orbite de SAGE a été conçue de manière à compléter la couverture géographique de SAM II (Voir tableau 3.1).

En octobre 1984 a eu lieu le lancement de SAGE II à bord du satellite ERBS (*Earth* Radiation Budget Satellite): c'est une version améliorée de SAGE, avec trois nouveaux canaux supplémentaires à 940, 525 et 448 nm, portant le nombre total de canaux à 7 [Mauldin et al., 1985]. L'instrument SAGE II a apporté des enregistrements en continu des profils d'extinction des aérosols et des densités moléculaires, notamment de  $O_3$ , de  $NO_2$  et de la vapeur d'eau  $H_2O_{vap}$ . On se référera à l'article de [Mauldin et al., 1985] pour une description complète de SAGE II.

### 3.1.2 Description du spectromètre SAGE III

SAGE III est la cinquième génération des instruments d'occultation solaire: trois exemplaires ont été construits par la NASA. Le premier prototype sera embarqué sur une orbite polaire à bord du satellite russe METEOR 3M. Un second instrument est prévu pour être embarqué à bord de la station spatiale ISS (*International Space Station*) v rs l'an 2002. Un Présentation de l'expérience satellitaire SAGE III



FIG. 3.1 - Schéma de l'instrument SAGE III [SAGE III - ATBD, 2000].

échec de lancement, ayant affecté l'environnement, est survenu le 5 Juillet 1999 au dessus de Baïkonour et a bouleversé le calendrier des lancements suivants dont celui de METEOR 3M, initialement prévu pour Octobre 1999. De plus, des problèmes techniques ont retardé la mise en place du premier instrument SAGE III sur le satellite et ont entraîné son rapatriement aux USA. Le remplacement de l'instrument défectueux par le troisième prototype a permis à la mission SAGE III d'être lancée avec succès le 10 décembre 2001 à bord de METEOR 3M.

SAGE III est une version améliorée de l'expérience SAGE II. La bande spectrale de SAGE III a été élargie par rapport à SAGE II par l'ajout de nouveaux canaux dans des longueurs d'ondes spécifiques, permettant un balayage spectral plus étendu (de 280 à 1040 nm) et par l'ajout d'une photodiode infrarouge à 1550 nm. La résolution spectrale est de 1 à 2 nm (selon les canaux considérés), devant permettre une reconstitution plus aisée des profils verticaux des différents constituants aumosphériques.

Une description détaillée de l'instrument SAGE III est disponible dans les documents [SAGE III - ATBD, 1997; 2000]. Nous allons présenter ici un résumé de ses caractéristiques. Le prototype de SAGE III consiste en trois systèmes (Figure 3.1):

Le pointeur (ou le système de visée) consiste en un miroir pivotable, permettant le balayage vertical du disque solaire (ou lunaire). Il est complété par un atténuateur solaire, repositionnable, consistant en un filtre neutre permettant une atténuation d'un facteur 100. SAGE III peut donc mesurer indifférement l'atténuation des disques solaire et lunaire à travers les couches atmosphériques augmentant ainsi sa couverture géographique.

79

Canaux	Longueur	Début Bande	Fin Bande	Nombre	Pas	Espèces	Espèces	
	d'onde centrale	Spectrale	Spectrale	de sous		Cibles	Interférentes	
	(nm)	(nm)	(nm)	-canaux	(nm)			
S1	290.3	287.5	293.1	1	5.6	Me30 (	<b>7</b> 3	
S2	384.5	382.2	386.8	1	4.6	Aérosols	NO <sub>1</sub> , O <sub>3</sub>	
S3	441.7	432.8	450.6	19	0.9	NO2, Aérosels	<i>O</i> 3	
S4	520.5	518.2	522.9	1	4.7	Vérosols, Nuages	$O_3, NO_2$	
S5	590.8	560.5	621.2	10	6.0	O3, Aérosols	$NO_2, H_2O$	
S6	675.8	673.5	678.2	1	4.7	Aérosols	<i>O</i> 3	
S7	755.6	753.3	757.9	1	4.6	Aérosols	<i>O</i> 3	
S8	764.2	757.9	770.6	14	0.9	Bande A - Oxygène		
S9	869.6	867.2	871.9	1	4.7	Aérosols	O3, H2O	
S10	946.4	<b>333.2</b>	959.6	29	0.9	Vapeur d'eau, aérosol, $O_3$		
S11	1021.6	1019.1	1024.2 6 0.8 Aérosols, Nuag		Aérosols, Nuages	<i>O</i> 3		
S12	1539.0	1524.5	1553.5	Diode	-	Aérosols, Nuages	$CO_2, H_2O$	

TAB. 3.2 - Canaux de SAGE III pour l'occultation solaire [Source : SAGE III - DPUG, 2001].

Canaux	Début Bande	Fin Bande	Pas	Espèces				
	Spectrale	Spectrale		Cibles				
	(nm)	(nm)	(nm)					
Notations des canaux lunaires 1997								
L'1	380 420 -		OCIO					
L'1/S3	430	450	-	$NO_2$ , Aérosol, $O_3$				
L'1	470	490	-	$O_3, NO_2$				
L'1	640	680	-	$NO_3$				
L'2/S8	759	771		Bandt A - Oxygène				
L'3/S10	920	960	-	Vapeur d'eau				
Notations des canaux lunaires 2001								
L1	380.3	475.0	~ 1.0	03, NO2, OCIO				
L2	475.0	679.1	~ 1.0	$O_3, NO_2, NO_3$				
L3	739.2	780.4	~ 1.9	Bande A - Oxygène				
L4	920.2	960.0	~ 1.9	Vapeur d'eau				

TAB. 3.3 – Canaux de SAGE III pour l'occultation lunaire [Source : SAGE III - DPUG, 2001 ; SAGE III - ATBD, 1997].

# Présentation de l'expérience satellitaire SAGE III



Fr. 3.2 - Schéma d'une portion du CCD de SAGE III située dans le canal S8.

- Le système optique, ou le téléscope, reproduit l'image de la cible sur le plan focal où l'on définit l'angle de vue instantané de l'instrument IFOV (*instantaneous field of view*): pour SAGE III, l'IFOV est de 30 secondes d'arc dans la direction verticale, perpendiculaire à la ligne de visée, à la verticale de la Terre. Le Soleil et la Lune sont vus sous un angle voisin de 32 minutes, supérieur à l'IFOV de SAGE III.
- Le détecteur comporte un assemblage de deux éléments: une barrette de CCD (*Charged Coupled Device*) de 10 × 809 pixels et une photodiode infrarouge *InGaAs* supplémentaire pour mesurer l'extinction des aérosols dans le canal 1550 nm. L'incorporation du détecteur CCD, dont la couverture spectrale couvre 280 à 1040 nm, va permettre l'enregistrement des multiples caractéristiques d'absorption des gaz moléculaires. L'avantage du détecteur CCD est de combiner une bonne couverture spectrale et une bonne résolution spectrale, permettant une meilleure discrimination des espèces moléculaires, notamment, entre autros, l'ozone dans la bande [560-620 nm], le dioxyde d'azote  $NO_2$ dans la bande [430-450 nm] et la vapeur d'eau  $H_2O$  dans la bande [930-960 nm]. Les 10 × 809 éléments du détecteur CCD vont fournir une information spectrale très complète; l'ensemble de plusieurs pixels du CCD alignés dans la direction horizontale, par rapport à la source lumineuse, peut être considéré comme un grand pixel unique.

Comme chaque pixel du CCD a une faible efficacité de transfert de charge, 10 seront utilisés pour l'occultation lunaire pour collecter davantage de lumière. Dans le cas de l'occultation solaire, seulement 3 éléments seront mis à contribution (Figure 3.2).

Des pixels peuvent être regroupés dans la direction verticale par rapport à la source lumineuse et constituent un sous-canal. Les sous-canaux eux-même sont regroupés dans un ensemble qu'on appelle *canal*: c'est une portion isolée de la bande spectrale permettant de mesurer les différents constituants atmosphériques. Par exemple, la bande de l'ozone S5, définie par [560 - 620 nm], est constituée de 10 sous-canaux (Tableau 3.2). L'instrument SAGE III possède 12 canaux solaires (Tableau 3.2) et 4 canaux lunaires (Tableau 3.3). Ce dernier tableau présente la connaissance des canaux lunaires au début des travaux de cette thèse (en 1997), et explique de façon claire notre choix des bandes spectrales, qu'on abordera plus loin. Les nouvelles données des canaux lunaires n'ont été disponibles que récemment (octobre 2001) et rendent le choix initial des bandes spectrales lunaires obsolètes.

Dans la configuration présentée sur le tableau 3.2, le canal S8, situé dans la bande A de l'oxygène [755-765 nm] permet une reconstitution du profil de pression/température (paragraphe 2.3.7): ils seraient directement mis à contribution dans l'inversion des espèces et des aérosols. Ainsi, l'utilisation des données météorologiques pour le calcul de la diffusion de Rayleigh ne serait plus nécessaire : un facteur supplémentaire d'erreurs disparaît. Dans la suite, on ne s'intéresse pas à cette reconstitution des profils de pression/température.

L'occultation lunaire est prévue pour l'étude, en plus de celle de l'ozone et du dioxyde d'azote et du dioxyde de chlore OClO. En effet, les espèces nocturnes, notamment  $NO_2$  et OClO, jouent un rôle essentiel dans la chimie stratosphérique dans le vortex durant l'hiver polaire, et sont impliquées dans le cycle catalytique de destruction de l'ozone stratosphérique [SAGE III - ATBD, 2001]. De plus, ces espèces moléculaires se photolysent rapidement sous l'effet du rayonnement solaire, d'où l'intérêt des mesures par occultation lunaire pour améliorer nos connaissances sur les cycles des réactions chimiques diurnes/nocturnes.

L'analyse des mesures par occultation lunaire est nettement plus compliquée que dans le cas solaire. En effet, la lune n'émet qu'un rayonnement réfléchi émis par le soleil et présente des phases différentes en fonction de la position de l'instrument : la lune est de 1 million à

82

# Présentation de l'expérience satellitaire SAG? III



FIG. 3.3 – Schéma du principe d'observation de SAGE III, à bord de Meteor 3M d'orbite 99.53°, avec le Soleil comme source lumineuse. Le pôle Nord est dénoté par PN et le pôle Sud par PS.

10 millions de fois moins lumineuse que le soleil. L'albédo lunaire est non-uniforme à cause du reflief accidenté de la lune. Ce qui fait que le calcul de la transmission lunaire est délicat comparé aux transmissions solaires. Pour pallier la faiblesse de l'intensité lumineuse reçue, l'atténuateur solaire, habituellement positionné devant le système optique, est écarté et la durée du temps d'intégration des données est allongée (62 ms au lieu de 1 à 2 ms). De plus, l'acquisition du flux lunaire est effectuée avec 10 éléments du détecteur CCD au lieu de 3 (Figure 3.2). Tous ces gains permettent l'acquisition des mesures lunaires, av c un rappo.: signal/bruit de 150 à 300, mais il est quand même 10 à 20 fois plus petit que celui des transmissions solaires [SAGE III - ATBD, 2000]. L'équipe américaine du LaRC (*Langley Research Center de la NASA*) met actuellement<sup>±</sup> au point l'algorithme de calcul de la référence mesurée hors atmosphère pour l'occultation lunaire.

83



FIG. 3.4 - Couverture géographique annuelle des mesures d'occultation solaire de SAGE III pour deux différentes plates-formes; ISS et Meteor 3M.

### Présentation de l'expérience satellitaire SAGE III

# 3.1.3 Géométrie d'observation

La géométrie d'observation de SAGE III est illustrée dans la figure 3.3. L'instrument effectue, au cours de son orbite autour de la Terre, des visées rasantes près du bord terrestre en direction de la source lumineuse. Cette *visée au limbe* consiste en un balayage des couches atmosphériques depuis le point le plus loin *au* dessus de l'atmosphère jusqu'au bord du disque terrestre. L'instrument va balayer verticalement l'atmosphère au cours du déplacement apparent de la source lumineuse (Soleil ou Lune) pendant l'occultation. Lors de la visée de la source lumineuse, le pointeur pivote du bas vers le haut et balaye verticalement le disque solaire (ou lunaire). Au fur et à mesure que la ligne de visée pénètre dans les couches atmosphériques, elles deviennent de plus en plus opaques et provoquent l'extinction totale du signal, qui dépend de la longueur d'onde. La probabilité de trouver des nuages augmente dès qu'on pénètre les plus basses couches.

La ligne de visée (*Line of Sight*, LOS) est caractérisée par l'altitude tangente, qui est l'altitude minimale du rayon lumineux par rapport au sol (Figure 3.3). Théoriquement, SAGE III balaye verticalement les couches atmosphériques de 0.5 à 120 km [SAGE III - ATBD, 2001]. L'observation de l'ozone mésophérique est alors possible dans la gamme d'altitude entre 65 et 85 km, en utilisant les canaux UV situés dans le domaine spectral [290 - 385 nm].

Le nombre d'occurence des levers et des couchers des sources lumineuses observées à travers l'atmosphère limite le nombre de mesure des profils et par conséquent, limite la couverture géographique. Mais l'observation alternative de deux sources lumineuses différentes au cours de l'orbite du satellite (Soleil et Lune) permet d'augmenter la couverture géographique de SAGE III. De plus, les latitudes d'observation de SAGE III à bord du satellite Meteor 3M s'étendent de 50 °à 80 °N pour les couchers du Soleil et de 30 °à 50 °S pour les levers. En ajoutant les mesures d'occultations de SAGE III à bord de la station spatiale ISS, complémentaires de celle de Meteor 3M, la couverture du globe terrestre par deux instruments SAGE III serait presque complète (Figure 3.4).

# 3.1.4 Calibration des transmissions

La mesure du spectre solaire hors atmosphère par SAGE III permet un étalonnage en continu des longueurs d'ondes: les raies de Fraunhofer sont parfaitement connues et fournissent des repères absolus pour les longueurs d'ondes. Cet étalonnage spectral est détaillé dans le document [SAGE - ATBD III, 2000]. Il est combiné à l'auto-calibration des intensités. L'instrument observe un spectre de référence exo-atmosphérique de la source lumineuse : lorsque les couches atmosphériques deviennent de plus en plus diluées jusqu'à ne plus atténuer la lumière provenant du soleil, la dernière mesure (au delà de 100 km) fournit donc une référence de la source lumineuse. Les données de transmission de SAGE III ont donc l'avantage d'être parfaitement étalonnées, même en cas de dégradation ou de changement de la réponse de l'instrument. Le traitement des mesures de transmissions est effectuée par l'équipe du LaRC : cette procédure regroupe les données de transmissions individuelles (jusqu'à plusieurs milliers de mesures par canal) et effectue une analyse statistique pour déterminer le profil de transmission moyen mesuré dans chaque sous-canaux. Les profils de transmissions sont alors produits, pour chaque canal, avec un échan'illonnage de 0.5 km, dans la gamme d'altitude 0.5 - 100 km [SAGE - AT BD III, 2000].

# 3.2 La modélisation : première étape avant l'inversion

# 3.2.1 Introduction

La modélisation fait intervenir tous les paramètres physiques essentiels d'une atmosphère a priori connue, ainsi que les caractéristiques instrumentales pour calculer des transmissions synthétiques. Le calcul direct des transmissions atmosphériques, pour chaque longueur d'onde, fait intervenir une intégration directe de l'équation du transfert radiatif (équation 2.1). L'intérêt de la modélisation est de pouvoir comparer les données réelles et les données simulées: cette comparaison devrait nous permettre de valider les mesures expérimentales (étalonnage, ...).

Nous avons synthétisé des profils de transmissions et nous avons mis l'accent sur les études de l'algorithme d'inversion. Ce travail de synthèse des mesures est incontournable pour démontrer les capacités de l'algorithme d'inversion à restituer les caractéristiques physiques de l'atmosphère. Pour rendre ces "mesures" réalistes, nous avons introduit un bruit aléatoire gaussien dans les simulations (Voir paragraphe 3.3.5).

### 3.2.2 Un cas idéal : une atmosphère à couches homogènes

L'algorithme d'inversion de SAGE III, comme la plupart des algorithmes d'inversion, suppose l'atmosphère formée de couches sphériques et homogènes. D'après [SAGE - ATBD III, 2000], c'est une assez bonne approximation pour la plupart des constituants stratosphériques, mais pas toujours vérifiée pour les nuages et les constituants troposphériques. En présence des nuages et des inhomogéniétés, l'instrument SAGE III va mesurer une série de transmissions

#### La modélisation : première étape avant l'inversion

différentes pour une même altitude tangente à cause du mouvement apparent du satellite qui déplace la ligne de visée. Ces changements de transmissions sont une manifestation des conditions hétérogènes existantes dans l'atmosphère: cette variabilité pourrait être introduite dans l'algorithme d'inversion. Mais ceci dépasse le cadre de ma thèse.

On suppose donc que l'atmosphère est divisée en couches concentriques et homogènes, de même épaisseur: dans cette partie, nous avons pris l'épaisseur égale à 500 m pour la simulation de tous les constituants, à l'exeption de la pression et de température où l'épaisseur est de 125 m. On suppose aussi que l'approximation de l'équilibre thermodynamique local est vérifiée, de la sorte, la loi des gaz parfaits peut s'appliquer à toutes les altitudes, permettant le calcul de la diffusion de Rayleigh.

En adaptant l'algorithme de calcul de la transmission déjà disponible au LOA, élaboré pour SAGE II, POAM II et POAM III, permettant de calculer le profil de transmission tous les kilomètres, nous avons réalisé un programme de simulation de profil de transmission tous les 0.5 km [Chu et al., 1989; Lumpe et al., 1997; Brogniez et al., 2000].

### 3.2.3 Expression de la transmission à une altitude tangente

En supposant une atmosphère découpée en couches homogènes, l'épaisseur optique  $\tau(\lambda, Z_t)$ , à l'altitude tangente  $Z_t$ , s'écrit:

$$r(\lambda, Z_t) = 2 \int_{Z_t}^{\infty} \sigma^{ext}(\lambda, Z) \frac{ds}{dz} dz$$
(3.1)

Où ds est le trajet géométrique dans la couche dz,  $\sigma^{ext}$  est le cœfficient d'extinction à l'altitude Z et pour la longueur d'onde  $\lambda$ . L'atmosphère de la Terre, depuis le sol jusqu'au sommet de l'atmosphère, noté par  $Z_{Max} + \Delta Z$ , est divisée en une série de couches concentriques d'épaisseur  $\Delta Z$ . Chaque couche  $\Delta Z$  est divisée en sous-couches  $\Delta S$  afin d'estimer précisément la réfraction des trajets lumineux à l'intérieur de chaque couche (Figure 3.5). Pour la modélisation, le choix de  $Z_{Max}$  fixé égal à 90 km est une bonne approximation : la plupart des molécules et des aérosols sont dilués au delà de cette limite [Lenoble, 1993]. On suppose alors qu'au delà de la dernière couche atmosphérique, il n'y a plus d'absorption ni de diffusion par les gaz moléculaires, soit :

$$\int_{Z_{Mux}+\Delta Z}^{\infty} \sigma^{ext}(\lambda, Z) \frac{ds}{dz} dz = 0$$
(3.2)

Donc l'intégrale 3.1 s'écrit :

$$\tau(\lambda, Z_t) \simeq 2 \int_{Z_t}^{Z_{Max}} \sigma^{ext}(\lambda, Z) \frac{ds}{dz} dz$$
(3.3)

La discrétisation de l'équation 3.3 donne, avec  $Z_t$  variant de 0 à  $Z_{Max}$ .

$$\tau(\lambda, Z_t) = 2 \sum_{Z=Z_t}^{Z_{Max}} \sigma^{ext}(\lambda, Z) \delta_{ij}(\lambda, Z, Z_t)$$
(3.4)

On calcule le chemin géométrique  $\delta_{ij}$  dans la couche j, pour chaque altitude tangente d'indice i, en tenant compte des effets de réfraction et de la courbure de l'atmosphère. On écrit l'expression de l'altitude tangente  $Z_t$  en fonction du rayon terrestre  $R_T$  et de l'épaisseur des couches  $\Delta Z$ :

$$Z_t = R_T + (i-1)\Delta Z \tag{3.5}$$

Le rayon de la Terre  $R_T$  est pris constant et égal à 6371 km. En effectuant cette hypothèse de sphéricité de la Terre, on ne prend pas en compte l'aplatissement de la Terre aux pôles. Il serait intéressant de prendre en compte la variation de  $R_T$ , mais comme nous travaillons avec des simulations, nous n'utilisons pas de paramètres de localisation géographique des mesures (latitude, longitude).

### 3.2.3.1 Chemin optique atmosphérique

Les trajets optiques, notés  $\delta_{ij}$  avec l'indice de l'altitude tangente *i* variant de 1 à l'indice  $j_{Max}$  et l'indice *j* variant de *i* à  $j_{Max}$ , désignant ainsi les différentes couches *j* traversées par le rayon lumineux.

$$\delta_{ij} = A_{ij}A_{ij+1} = (R_T + (j-1)\Delta Z) \cdot \frac{\sin\beta_{ij}}{\sin\Theta_{ij}}$$
(3.6)

Avec  $\beta_{ij} = \Theta_{ij} - \alpha_{ij}$  où  $\Theta_{ij}$  est l'angle d'incidence,  $\alpha_{ij}$ , l'angle de réfraction :

$$\sin \alpha_{ij} = \frac{R_T + (j-1)\Delta Z}{R_T + j\Delta Z} \cdot \sin \Theta_{ij}$$
(3.7)

avec la loi de Snell-Descartes :

$$n_j \sin \alpha_{ij} = n_{j+1} \sin \Theta_{i,j+1} \tag{3.8}$$

Où l'indice de réfraction  $n_j$  dépend de la pression et de la température de la couche j. La formule d'Edlen [1966] (équation 2.10) permet de relier l'indice de réfraction de l'air à la pression et la température, en fonction de  $\lambda$  en  $\mu m$ , p en hPa et T en K.

### 3.2.3.2 Epaisseur Optique

Pour simuler le profil des transmissions de SAGE III, l'épaisseur optique est calculée pour chaque altitude tangente et pour chaque longueur d'onde, simultanément avec le calcul du La modélisation : première étape avant l'inversion



FIG. 3.5 – Représentation simplifiée des trajets géométriques dans une demi-almosphère avec les grandeurs définies dans le texte.  $\Delta S$  est l'épaisseur des sous-couches,  $\Delta Z$  est l'épaisseur de la couche.

trajet géométrique  $\delta_{ij}$ . Le profil est produit avec une résolution verticale de 0.5 km, de 0.5 à 90 km, en accord avec la résolution verticale des mesures de SAGE III. Un modèle d'une atmosphère connue *a priori* est constitué à partir des profils de pression et de température fournis par les données climatologiques et des profils des densités moléculaires des gaz atmosphériques. Ainsi, pour le mode d'occultation solaire, les profils de densités moléculaires diurnes de  $O_3$ ,  $NO_2$  et du cœfficient d'extinction des aérosols proviennent des données climatologiques issues des mesures de SAGE II et POAM III. Pour le mode d'occultation lunaire, les profils des densités moléculaires nocturnes ( $O_3$ ,  $NO_2$ ,  $NO_3$  et aérosols) ont été extraits de Renard et al. [1996]. Quant au profil de densité moléculaire OClO, ils proviennent des résultats de Renard et al. [1997]. Les profils de densités de l'ozone nocturne ne seraient pas les mêmes que ceux de l'ozone diurne du fait du changement du rayonnement solaire reçu qui change l'activité catalytique des réactions chimiques dans la stratosphère et la mésophère.

Dans la mesure où rien ne nous indique quelles sections efficaces d'absorption, parmi les banques de données, sont les plus appropriées, nous avons choisi d'utiliser les données de Shettle et al. [1994] pour l'ozone, de Mérienne et al. [1995] pour  $NO_2$ , de Deters et Burrows [1998] pour  $NO_3$ , et Wahner et al. [1987] pour *OClO*. Nous avons défini 4 bandes résolues, en selectionnant 2 canaux solaires S3 et S5, et une partie de 2 canaux lunaires, L1 et L2 (données 2001) parmi les canaux disponibles de SAGE III (Tableaux 3.2 et 3.3). Ces bandes résolues sont présentées sur le tableau 3.4. La position, la longueur d'onde centrale  $\lambda_o$  et la largeur de chaque bande spectrale ont été choisies afin de déterminer chaque constituant atmosphérique clé dans leur régions spectrales respectives de forte absorption. Nous avons reporté dans le tableau 3.4 les contributions relatives des gaz minoritaires impliqués dans chaque bande par rapport à l'espèce "cible".

Dans l'équation 3.4,  $\sigma^{ext}(\lambda, Z)$  est la somme des extinctions de chaque espèce en présence dans la couche atmosphérique  $\Delta Z$ , à l'altitude Z, d'indice j, soit :

$$\sigma^{ext}(\lambda, Z) = \sigma^{diff}_{Ray}(\lambda, Z) + \sigma^{ext}_{aero}(\lambda, Z) + \sum_{k=1}^{m} \sigma^{abs}_{gaz_k}(\lambda, Z)$$
(3.9)

 $\sigma_{acro}^{ext}$  et  $\sigma_{gaz_k}^{abs}$  sont respectivement les cœfficients d'extinction des aérosols et d'absorption du gaz k à la longueur d'onde  $\lambda$ . La sommation est effectuée sur tous les gaz k à la longueur d'onde  $\lambda$ . Le cœfficient de diffusion de Rayleigh  $\sigma_{Ray}^{diff}(\lambda, Z)$  est donné par l'équation 2.13.

Le profil de transmission, tel qu'il sera fourni par SAGE III, est obtenu à partir des

La modélisation : première étape avant l'inversion

Nom	Mode d'	Domaine	Nb. de	λο	Rayleigh	Aerosol	NO2	<i>O</i> 3	NO3	0010*
de la Bande	Occult.	(nm)	sous-canaux	(nm)						
*OCIO*	Lunaire	407 - 420	9	413.5	+++	+	***	+		++
"NO2"	Solaíre	430 - 450	19	440	+++	+	≁+++++	+		
"O3"	Solaire	559 - 624	10	591,5	++	+		++++		
ou Chappuls							atomatica of			
"NO3"	Lunaire	640 - 680	25	660	++	+		+++	++	estapo en <u>e</u> n 4350 ania

TAB. 3.4 – Influence des constituants atmosphériques pour chaque canal résolu de SAGE III. L'importance de la contribution dans chaque canal est représentée par le nombre de croix ( de + à +++). S'il n'y a pas de croix, l'influence de l'espèce correspondante est négligeable. (\*) désigne les constituants nocturnes qui sont impliqués dans les canaux d'occultation lunaire. D'après [SAGE III - ATBD, 1997]

épaisseurs optiques, soit :

$$\mathbf{T}(\lambda, Z_t) = \exp\left(-\tau(\lambda, Z_t)\right) \tag{3.10}$$

Dans la suite, la grandeur épaisseur optique  $\tau$  est préférée à la grandeur transmission T. Nous évitons ainsi une étape inutile, c'est à dire qu'il n'est pas nécessaire de calculer l'exponentielle de  $\tau$  pour obtenir T. D'autre part, nous travaillons dans le cadre des expériences ballons SA-LOMON et AMON avec des épaisseurs optiques mesurées, qui nous sont communiquées.

Pour la simulation du cœfficient d'extinction des aérosols, nous avons utilisé la loi d'Ångström [Ångström, 1929] avec un cœfficient d'Ångström noté  $\alpha_i$  dans ce paragraphe:

$$\sigma_{aero}^{ext}(\lambda, Z) = \sigma_{aero}^{ext}(\lambda_{ref}, Z) \cdot \left(\frac{\lambda}{\lambda_{ref}}\right)^{-\alpha_i}$$
(3.11)

Où  $\sigma_{acro}^{ext}(\lambda_{ref}, Z)$  est le profil du cœfficient d'extinction des aérosols à une longueur d'onde de référence  $\lambda_{ref}$  (442 nm pour la simulation des aérosols de cette partie). Le cœfficient de la loi d'Ångström est déterminé principalement par la taille des aérosols et dépend aussi du type d'aérosols (indice de réfraction). Il varie avec la latitude, la saison et l'altitude. Dans l'ensemble des caractéristiques réelles des aérosols,  $\alpha_i$  peut varier de 0.5 à 3. Au delà de la limite supérieure de  $\alpha_i$ , 4 représente les particules de taille moléculaire où la diffusion de Rayleigh s'applique.  $\alpha_i$  décroît jusqu'à 0, et peut parfois présenter des petites valeurs négatives, pour les particules très grandes [Lenoble et Brogniez, 1985].

Il faut se rappeler que la loi d'Àngström n'est qu'une approximation assez grossière : elle n'est raisonnablement applicable que pour la plupart des aérosols de taille moyenne, ayant



FIG. 3.6 - Allure de l'épaisseur optique simulée de SAGE III dans le canal de Chappuis [559-624 nm] pour un modèle d'atmosphère.

une distribution granulaire monomodale. Pour les mesures de SAGE II, la valeur moyenne de  $\alpha_i$  est de ~ 1.6 1.7 pour les aérosols de fond. Pour les aérosols volcaniques, elle peut être plus faible. Dans la simulation des cœfficients d'extinction de SAGE III dans le cadre de ce paragraphe, nous avons choisi  $\alpha_i$  égal à 1 (aérosols volcaniques).

La figure 3.6 présente l'allure des épaisseurs optiques simulées dans le canal de Chappuis et la figure 3.7 présente les contributions relatives de chaque constituant atmosphérique dans le cœfficient d'extinction total à  $\lambda = 562.25$  nm.

# 3.3 L'algorithme d'inversion de SAGE III

### **3.3.1** Objectifs de l'inversion

Une fois générés les profils des épaisseurs optiques *synthétiques* avec le *calcul direct*, nous allons les *inverser*. C'est à dire analyser les profils des épaisseurs optiques pour retrouver les caractéristiques physiques de l'atmosphère: c'est ce processus que nous appellons l'*inversion*.

Dans les prochains paragraphes, nous allons décrire notre algorithme d'inversion, dit al-



FIG. 3.7 – Contribution relative des différents cœfficients d'extinction des constituants de l'atmosphère pour le modèle de la figure 3.6 à 562.25 nm.

gorlthme d'*inversion dans les bandes résolues*, que nous avons développé spécifiquement pour SAGE III. Nous compléterons ce développement par une description de la *méthode d'inversion par analyse globale.* 

Finalement, dans ce chapitre, nous allons combiner nos deux méthodes d'inversions, l'inversion par analyse globale et l'inversion dans les bandes résolues: c'est l'algorithme d'inversion combiné. Cet algorithme fera l'objet d'une description détaillée dans le dernier paragraphe du chapitre (3.5.2).

# 3.3.2 Principes de l'inversion "dans les bandes résolues"

Dans la perspective d'analyse des mesures satellitaires de SAGE III, nous avons pour la première fois, dans la série de SAM - SAGE, une résolution spectrale importante dont nous devons tirer profit pour obtenir des informations sur les espèces moléculaires. Nous travaillons avec les bandes résolues de grande résolution spectrale définies par le tableau 3.4, d'où notre algorithme d'inversion est dénommé par *inversion dans les bandes résolues*.

La première étape a été de déduire la diffusion de Rayleigh, qui est fonction du profil de densité atmosphérique, l'épaisseur optique obtenue, notée  $\bar{\tau}(\lambda, Z_t)$ , est corrigée de la contribution de Rayleigh.

$$\tilde{\tau}(\lambda, Z_t) = \tau(\lambda, Z_t) - \tau_{Rayleigh}(\lambda, Z_t)$$
(3.12)

L'expression de  $\tau(\lambda, Z_t)$  ne dépend plus que des contributions des gaz minoritaires et des aérosols:

$$\tilde{\tau}(\lambda, Z_t) = \tau_{aerosol}^{ext}(\lambda, Z_t) + \sum_{k=1}^m \tau_{gaz_k}^{abs}(\lambda, Z_t)$$
(3.13)

Sous une forme générale, nous avons:

$$\bar{\tau}(\lambda, Z_t) = \sum_{p=1}^{m'} \tau_p(\lambda, Z_t)$$
(3.14)

Nous avons une double sommation sur tous les constituants k et sur les altitudes Z:

$$\tau(\lambda, Z_t) = 2 \sum_{p=1}^{m'} \sum_{Z=Z_t}^{Z_{Max}} \bar{\sigma}_p(\lambda, Z) \,\delta_{ij}(\lambda, Z, Z_t)$$
(3.15)

Nous pouvons effectuer une permutation des sommations. Ainsi le problème de l'inversion peut se diviser en deux sous-parties indépendantes : l'inversion spectrale et l'inversion spatiale. La présentation des différentes procédures pour inverser l'équation 3.15 est détaillée dans [Kyrölä et al., 1993]. L'algorithme de l'inversion peut démarrer par l'inversion spatiale concernant la sommation sur les altitudes Z. D'autres méthodes d'inversion proposent de commencer l'inversion par l'inversion spectrale qui concerne la sommation sur k [Lumpe et al., 1997; Glaccum et al., 1996; Chu et al., 1989 pour l'algorithme d'inversion LaRC].

Nous choisissons de débuter notre inversion par l'inversion spatiale. De la sorte, l'information sur les composants atmosphériques (notamment sur les aérosols) n'est pas moyennée le long de la ligne de visée : en commençant par l'inversion spatiale, l'information fournie par les épaisseurs optiques va être décomposée sur chaque altitude. Le cœfficient d'extinction est obtenu dans chaque couche. La séparation des espèces conduit à caractériser les constituants dans chaque couche, alors que l'inversion spectrale effectuée sur les épaisseurs optiques tangentes conduirait à des informations moyennées sur un grand trajet. Dans le cas où il existe des inhomogénités, l'information moyenne n'est pas représentative de l'information dans chaque couche. L'effet est très important si les sections efficaces d'absorption varient beaucoup sur la ligne de visée (en fraction de la température).

Une fois obtenus les profils du cœfficient d'extinction corrigé de la diffusion Rayleigh, nous réalisons l'inversion spectrale conduisant à la séparation des espèces : le processus fait appel à la théorie de la régression linéaire multiple qui utilise une formulation matricielle du problème.

### **3.3.3** Inversion spatiale

### 3.3.3.1 La méthode de pelure d'oignon

Notre première étape est d'inverser le profil des épaisseurs optiques corrigées pour obtenir une fonction de cœfficients d'extinction corrigé de la diffusion de Rayleigh  $\bar{\sigma}_{cor}(\lambda, \zeta)$ . Où  $\zeta$ est la nouvelle variable altitude telle que :

$$\zeta_k = Z_k + \frac{\Delta Z}{2} \tag{3.16}$$

L'atmosphère étant divisée en couches concentriques et homogènes, la première observation effectuée dans la dernière couche atmosphérique va donner directement l'information sur cette couche. La deuxième observation, effectuée dans la couche immédiatement en dessous et corrigée de la contribution de la couche supérieure, va fournir des informations dans cette nouvelle couche. Le processus de *pelure d'oignon* se répète de la même manière pour les couches inférieures jusqu'au sol. La méthode consiste donc à éplucher l'atmosphère, couche par couche, en partant de l'altitude  $Z_{tangte} = Z_{Max}$  jusqu'au sol  $Z_{tangte} = 0$ . En connaissant le trajet géométrique  $\delta_{ij}$ , on déduit le cœfficient d'extinction total approximativement au milieu de chaque couche [Tallamaraju, 1975]. Le décalage de l'altitude des cœfficients par rapport à celui des épaisseurs optiques, correspondant environ à une demi-couche, se traduit par le changement de variable dans l'équation 3.16.

Le profil du cœfficient d'extinction sans la contribution Rayleigh est ainsi reconstitué, couche par couche:

- En partant de la dernière couche supérieure, Z<sub>Max</sub>:

$$\bar{\sigma}_{cor}(\lambda,\zeta_{Max}) = \frac{\bar{\tau}(\lambda,Z_{Max})}{2\cdot\delta_{i_{Max}i_{Max}}}$$
(3.17)

Où  $\bar{\sigma}_{cor}(\zeta_{Max}, \lambda)$  est le coefficient d'absorption corrigé de la diffusion de Rayleigh dans la couche à l'altitude  $\zeta_{Max} = Z_{Max} + \frac{\Delta Z}{2}$ .

- A l'altitude tangente Z<sub>i</sub>, nous avons :

ĩ

$$P(\lambda, Z_i) = 2 \cdot \left( \sum_{k=i+1}^{Z_{Max}} \delta_{ik} \cdot \bar{\sigma}_{cor}(\lambda, \zeta_k) \right) + 2 \cdot \delta_{ii} \cdot \bar{\sigma}_{cor}(\lambda, \zeta_i)$$
(3.18)

D'où:

$$\bar{\sigma}_{cor}(\lambda,\zeta_i) = \frac{\bar{\tau}(\lambda,Z_i) - 2 \cdot \sum_{\substack{k=i+1\\2 \cdot \delta_{ii}}}^{Z_{Max}} \delta_{ik} \cdot \bar{\sigma}_{cor}(\lambda,\zeta_k)}{2 \cdot \delta_{ii}}$$
(3.19)

Nous obtenons alors un profil du cœfficient d'extinction corrigé de la diffusion Rayleigh.



FIG. 3.8 – Schéma de l'inversion spatiale. Les coefficients d'extinction totale  $\sigma(Z_i, \lambda)$  correspondent au centre de chaque couche, c'est à dire à l'altitude  $Z_i + \Delta Z/2$  (la réfraction n'y est pas représentée).

#### 3.3.3.2 La méthode d'inversion spatiale de Chahine

Chahine [1972] propose une méthode itérative, permettant de retrouver le profil du cœfficient d'extinction total. Cette méthode est utilisée dans les algorithmes d'inversion spatiale du LOA de SAGE II [Chu et al., 1989], de POAM II [Ramananahérisoa, 1998] et POAM III [Brogniez et al., 2000].

- Nous partons d'un profil initial par exemple :

$$\hat{\sigma}_{cor}^{w=0}(\lambda,\zeta_i) = 0.01 \, km^{-1} \tag{3.20}$$

En utilisant une approche dite relaxation généralisée, la solution  $\hat{\sigma}_{cor}^{w}(\zeta_{i}, \lambda)$  est obtenue à partir de la solution w - 1.

$$\bar{\sigma}_{cor}^{w}(\lambda,\zeta_{i}) = \frac{\bar{\sigma}_{cor}^{w-1}(\lambda,\zeta_{i}) \cdot \hat{\tau}(\lambda,Z_{i})}{2 \cdot \sum_{k=i+1}^{Z_{Max}} \bar{\sigma}_{cor}^{w-1}(\lambda,\zeta_{i})\delta_{ik}}$$
(3.21)

- Après un certain nombre d'itérations, il y a convergence de  $\bar{\sigma}_{cor}^w(\lambda,\zeta)$  vers le profil recherché  $\bar{\sigma}_{cor}(\lambda,\zeta)$ .

#### 3.3.3.3 Comparaison entre les deux méthodes d'inversions

Nous avons mené une étude comparative des deux méthodes en utilisant le même profil des épaisseurs optiques, avcc une altitude tangente maximale de 90 km. L'inversion de Chahine

a été menée pour 3 valeurs différentes du nombre d'itérations (6, 10 et 15) conduisant à la détermination de trois profils du cœfficient d'extinction corrigé de Rayleigh pris à la longueur d'onde 562 nm. Nous avons comparé ces différents profils obtenus avec le profil initial qui a servi à la modélisation (Figure 3.9). Une comparaison avec le profil obtenu par la méthode de pelure d'oignon est aussi présentée sur cette figure.

La comparaison entre le profil initial du cœfficient d'extinction corrigé de Rayleigh avec les profils obtenu par inversion spatiale, l'un avec la pelure d'oignon et l'autre avec la méthode de Chahine, montre que la pelure d'oignon restitue correctement le profil initial avec une différence relative inférieure à 0.05 % sur toute la gamme des altitudes tandis que la méthode de Chahine (15 itérations) restitue le profil initial avec une incertitude entre 0.05 et 0.15 %. Pour les autres valeurs d'itérations, nous constatons des pics supérieurs à 4% pour les altitudes inférieures à 20 km. La différence entre la méthode de Chahine et le profil initial du cœfficient d'extinction diminue avec le nombre d'itérations (Figure 3.9). Il apparaît qu'il faut au moins 10 itérations pour se rapprocher du profil du cœfficient d'extinction total et 15 itérations pour obtenir une différence relative inférieure à 0.15%: la méthode de Chahine achoppe notamment autour des changements de pente du profil du coefficient d'extinction, corrigé de la diffusion Rayleigh (entre 5 et 15 km).

Pour l'inversion spatiale des mesures de SAGE III, c'est la méthode de la pelure d'oignon qui a été selectionnée de prime abord car elle est plus fiable et plus robuste que la méthode de Chahine. De plus, elle a l'avantage d'être simple et peu coûteuse en temps de calcul machine. Nous allons analyser dans la prochaine section (paragraphe 3.4) les différences entre les solutions obtenues par les deux méthodes d'inversion spatiale au terme de l'inversion *dans les bandes résolues* et en prenant en compte les incertitudes sur les épaisseurs optiques.

# **3.3.4** Inversion spectrale

A partir du profil du cœfficient d'extinction pour chaque  $\lambda_i$ , ca reconstitue le profil des densités moléculaires et du cœfficient d'extinction des aérosols  $\sigma_{acro,\lambda_o}^{ext}$ .  $\lambda_o$  est la longueur d'onde centrale de la bande résolue (Voir Tableau 3.4).

Nous avons utilisé la loi d'Àngström pour la modélisation des aérosols (équation 3.11). Nous avons donc un terme aérosol  $\sigma_{acro,\lambda_0}^{cxt}(\frac{\lambda}{\lambda_0})^{-\alpha}$  avec, comme inconnue,  $\alpha$  le coefficient d'Àngström. Dans la suite, l'altitude Z est sous-entendue pour simplifier les notations.



FIG. 3.9 – En haut: profil initial du cœfficient d'extinction corrigé de Rayleigh pour  $\lambda = 562$ nm avec les profils résultant de l'inversion spatiale, l'un avec la méthode de pelure d'oignon et l'autre avec la méthode de Chahine pour trois valeurs du nombre d'itérations (k=6, 10 et 15). En bas: les différences relatives (en %) calculées pour chaque profil inversé par rapport au profil initial.

Pour pouvoir appliquer la méthode de régression linéaire, nous nous proposons de linéariser le terme des aérosols. Comme nous travaillons dans des bandes résolues de petite largeur spectrale (de 20 nm, pour la bande "NO2" à 60 nm, pour la bande "O3"), à l'intérieur de chaque canal, le terme  $(\lambda_i - \lambda_o) = \Delta \lambda_i$  est très petit comparé à  $\lambda_o$ . Le terme  $\sigma_{aero,\lambda_o}^{ext}(\frac{\lambda}{\lambda_o})^{-\alpha}$ peut donc être développé jusqu'au deuxième ordre :

$$\sigma_{aero,\lambda_o}^{exi} \left(\frac{\lambda_o + \Delta\lambda_i}{\lambda_o}\right)^{-\alpha} \simeq \sigma_{aero,\lambda_o}^{exi} \left(1 - \alpha \cdot \frac{\Delta\lambda_i}{\lambda_o} + \frac{\alpha(\alpha+1)}{2} \cdot \left(\frac{\Delta\lambda_i}{\lambda_o}\right)^2\right)$$
(3.22)

L'équation de  $\bar{\sigma}_{cor}(\lambda_i)$  se réduit à l'expression :

$$\bar{\sigma}_{cor}(\lambda_i) \simeq \sum_{k=1}^m d_{gaz_k} \sigma_{gaz_k}^{mol}(\lambda_i) + \sigma_{acro_i\lambda_o}^{ext} \left(1 - \alpha \cdot \frac{\Delta\lambda_i}{\lambda_o} + \frac{\alpha(\alpha+1)}{2} \cdot \left(\frac{\Delta\lambda_i}{\lambda_o}\right)^2\right)$$
(3.23)

La sommation est conduite sur tous les gaz k considérés dans chaque canal. L'ensemble des équations précédentes, pour chaque longueur d'onde  $\lambda_i$  de la bande spectrale, peut être réecrite sous forme matricielle :

$$\Sigma^{ext} = \mathcal{X} \cdot \boldsymbol{\beta} \tag{3.24}$$

avec

et

$$\Sigma^{ext} = \begin{pmatrix} \overline{\sigma}_{cor}(\lambda_1) \\ \vdots \\ \overline{\sigma}_{cor}(\lambda_i) \\ \vdots \\ \overline{\sigma}_{cor}(\lambda_{n_{pix}}) \end{pmatrix} \text{ et } \beta = \begin{pmatrix} d_{gaz_1} \\ \vdots \\ d_{gaz_m} \\ \sigma^{ext}_{aero,\lambda_o} \\ \gamma \\ \eta \end{pmatrix}$$
(3.25)

$$\mathcal{X} = \begin{pmatrix} \sigma_{mol}^{gaz_1}(\lambda_1) & \cdots & \sigma_{mol}^{gaz_m}(\lambda_1) & 1 & \Delta\lambda_1 & \Delta\lambda_1^2 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \sigma_{mol}^{gaz_1}(\lambda_i) & \cdots & \sigma_{mol}^{gaz_m}(\lambda_i) & 1 & \Delta\lambda_i & \Delta\lambda_i^2 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \sigma_{mol}^{gaz_1}(\lambda_{npix}) & \cdots & \sigma_{mol}^{gaz_m}(\lambda_{npix}) & 1 & \Delta\lambda_{npix} & \Delta\lambda_{npix}^2 \end{pmatrix}$$
(3.26)

Où  $n_{pix}$  est le nombre de pixels dans le canal considéré (Voir Tableau 3.4).  $\beta$  est un vecteur de dimension (m+3), m étant le nombre de gaz moléculaires à quantifier. Les inconnues à déterminer sont les cœfficients de  $\beta$ :  $d_{gaz_k}$ ,  $\sigma_{aero,\lambda_0}^{ext}$ ,  $\gamma$  et  $\eta$ . Les variables  $\gamma$  et  $\eta$  sont respectivement définies par:

$$\gamma = -\sigma_{aero,\lambda o}^{e\pm i} \cdot \frac{\alpha}{\lambda_o}$$
$$\eta = \sigma_{aero,\lambda o}^{e\pm i} \cdot \frac{\alpha(\alpha+1)}{2\lambda_o^2}$$

La matrice de dimension  $\mathcal{X}$  est simple à construire : les cœfficients  $x_{ij}$  sont les sections efficaces des gaz moléculaires pris en considération dans le canal et des multiples de  $\Delta \lambda_i$ . La méthode des noindres carrés permettant de retrouver les coefficients du vecteur  $\beta$  est résumée dans l'équation de Moore-Penrose pour l'inversion matricielle [Saporta, 1990; Pelat, 1998]:

$$\hat{\beta} = (\mathcal{X}'\mathcal{X})^{-1}\mathcal{X}' \cdot \Sigma^{ext}$$
(3.27)

où  $\hat{\beta}$  est le meilleur estimateur<sup>1</sup> linéaire pour  $\beta$ , et où  $\mathcal{X}'$  est la matrice transposée de  $\mathcal{X}$ . Les résultats de l'inversion spectrale sont sensibles au bruit associé au vecteur  $\Sigma^{ext}$ , en prenant par exemple une distribution gaussienne aléatoire sur le profil des épaisseurs optiques avant le calcul de  $\bar{\sigma}_{cor}(\lambda_i)$ , et au choix des coefficients qui constituent le vecteur  $\mathcal{X}$ .

### 3.3.5 Estimation des incertitudes

En général, l'inversion des mesures satellitaires est entachée par deux types d'incertitudes de mesures : les incertitudes systématiques et les incertitudes aléatoires. D'après le document [SAGE III - ATBD, 2000], les incertitudes systématiques sont secondaires. Les incertitudes systématiques de mesures concernent surtout la mauvaise connaissance des caractéristiques de l'instrument (performance, étalonnage des longueurs d'ondes ...), l'incertitude sur l'éphéméride du satellite, et enfin, l'incertitude des données des sections efficaces d'absorption des constituants. Parmi les sources des erreurs aléatoires, citons les quatre plus importantes : l'incertitude sur l'épaisseur optique, l'incertitude sur l'estimation de la composante Rayleigh, l'incertitude liée à la séparation des espèces interférentes parmi les espèces cibles et l'incertitude sur l'altitude tangente. De manière générale, les bruits aléatoires peuvent être simulés par une distribution gaussienne, caractérisée par la largeur  $\sigma$ . En étudiant le comportement de l'algorithme d'inversion dans les bandes résolues en fonction des bruits aléatoires par le calcul des variances des profils des constituants, une estimation de la précision que nous pouvons attendre de cet algorithme peut être donnée. Ceci fera l'objet d'une étude poussée au paragraphe 3.5. Dans la suite, l'incertitude expérimentale sur les profils des épaisseurs optiques est estimée à 3 %, d'après les mesures réelles de SAGE II.

Une fois simulés les profils nominaux d'épaisseurs optiques  $\tau(\lambda, Z)$ , nous nous donnons un espace de mesures déterminé par l'incertitude  $\Delta \tau$  sur  $\tau$ . L'incertitude est représentée par l'écart-type sur  $\tau$ . Ens te, nous explorons de manière systématique toutes les valeurs des

<sup>1.</sup> Notation :  $\hat{X}$  est l'estimateur de la grandeur physique réelle X.



FIG. 3.10 - Schéma de l'algorithme d'inversion dans les bandes résolues.

.

épaisseurs optiques possibles  $\tau^{(k)}(\lambda, Z)$ . Au fur et à mesure de cette exploration, nous calculons la solution  $\beta^{(k)}(Z)$  pour chaque profil  $\tau^{(k)}(\lambda, Z)$  obtenu.

Cette exploration systématique de l'espace des mesures peut être remplacée par une exploration aléatoire en utilisant la méthode de Monte Carlo. Cette méthode utilise un générateur de variables aléatoires pour synthétiser des modèles à l'intérieur de la région (équation ??) et nous calculons pour chaque modèle  $\tau^{(k)}(\lambda, Z)$ , la valeur prédite correspondante  $\beta^{(k)}(Z)$ . Le calcul s'arrête lorsque l'espace des modèles  $\tau^{(k)}(\lambda, Z)$  a été bien exploré [Tarantola, 1994]. La méthode d'inversion dans les bandes résolues est donc combinée à l'analyse de l'espace des mesures au sens de Monte Carlo. Le schéma 3.10 résume l'algorithme dans sa configuration finale.

Le nombre d'itérations  $N_{MC}$  pour l'exploration de l'espace des modèles doit être suffisant, sans que cela devienne coûteux en temps de calcul *machine* : nous avons testé plusieurs valeurs de  $N_{MC}$  (voir paragraphe 3.4.4).

Une fois l'exploration dans l'espace des modèles terminée, nous calculons la moyenne des résultats obtenus, pour chaque composante du vecteur  $\hat{\beta}(i)$ :

$$\hat{\beta}(i) = \frac{1}{N_{MC}} \sum_{k=1}^{N_{MC}} \hat{\beta}^{(k)}(i)$$
(3.28)

Plus le nombre de générations  $N_{MC}$  est grand, meilleur est l'estimateur  $\hat{\beta}(i)$ .

L'écart-type  $ET\hat{\beta}(\mathbf{i})$  sur chaque composante  $\hat{\beta}(\mathbf{i})$  est défini par :

$$\mathbf{ET}\hat{\beta}(\mathbf{i}) = \sqrt{\frac{1}{N_{MC}} \sum_{k=1}^{N_{MC}} \left(\hat{\beta}^{(k)}(i) - \hat{\beta}(i)\right)^2}$$
(3.29)

D'où l'intervalle de confiance des résultats inversés :

$$\hat{\beta}(i) - \mathbf{ET}\hat{\beta}(\mathbf{i}) \le \beta(i) \le \hat{\beta}(i) + \mathbf{ET}\hat{\beta}(\mathbf{i})$$
(3.30)

#### 3.3.5.1 Estimation de la qualité des résultats

La comparaison entre les données qui ont servi à la simulation,  $\beta(i)$ , avec les résultats obtenus après inversion  $\hat{\beta}(i)$  (équation 3.28), se fait par l'ans<sup>1</sup>yse des erreurs systématiques et des erreurs aléatoires. L'erreur systématique (ou *biais*) est en général indépendante des erreurs sur les mesures. Elle est définie (en %) par:

$$\mathbf{E}_{syst} = 100 \times \frac{\beta(i) - \hat{\beta}(i)}{\beta(i)}$$
(3.31)

L'erreur aléatoire (ou dispersion) est définie par (en %):

$$\mathbf{E}_{alea} = 100 \times \frac{\mathbf{ET}\hat{\beta}(\mathbf{i})}{\hat{\beta}(\mathbf{i})}$$
(3.32)

### 3.3.6 Présentation de la méthode d'inversion globale

La méthode d'inversion *par analyse globale* s'inspire de l'inversion qui a été mise au point par le LOA pour les profils de transmissions de SAGE II [Chu et al., 1989], de POAM II [Lumpe et al., 1997; Ramananahérisoa, 1998] et de POAM III [Brogniez et al., 2000]. L'algorithme a été adapté pour le cas des mesures de SAGE III.

L'inversion spatiale, dont le principe a été détaillé dans le paragraphe 3.3.3, est déjà appliquée sur les profils d'épaisseurs optiques simulées. Nous avons déterminé les profils du coefficient d'extinction corrigé de la diffusion Rayleigh dans 10 canaux: 0.385, 0.442, 0.525, 0.6, 0.67, 0.757, 0.872, 0.945, 1.02 et 1.55  $\mu$ m. Ils sont définis par:

$$\bar{\sigma}_{cor}(\lambda, Z) = \sigma_{tot}(\lambda, Z) - \sigma_{Ray}^{diff}(\lambda, Z)$$
(3.33)

Soit

$$\bar{\sigma}_{cor}(\lambda, Z) = \sum_{k=1}^{m} d_{gaz_k} \sigma_{gaz_k}^{mol}(\lambda, Z) + \sigma_{aero}^{ext}(Z, \lambda)$$
(3.34)

Nous allons procéder à l'inversion spectrale des profils des cœfficients d'extinction : cette inversion, dite *par analyse globale* utilise tous les canaux et procéde par itération, conduisant à la séparation des espères. Le processus de cette inversion est schématisé sur la figure 3.11. Nous allons donner ici une explication détaillée :

1. Le cœfficient d'extinction à 1.55  $\mu$ m, canal où ne contribuent que les aérosols, puisque la diffusion de Rayleigh a été ôtée, donne le cœfficient d'extinction des aérosols à 1.55  $\mu$ m,  $\sigma_{aero}^{ext}(1.55)$ :

$$\bar{\sigma}_{cor}(1.55) = \sigma_{aero}^{ext}(1.55)$$
 (3.35)

2. De même, à  $1.02 \mu m$ , nous avons

$$\bar{\sigma}_{cor}(1.02) = \sigma_{aero}^{ext}(1.02) + \sigma_{O3}^{abs}(1.02)$$
(3.36)

Mais comme  $\sigma_{O3}^{abs}(1.02)$  est négligeable, nous faisons l'approximation  $\bar{\sigma}_{cor}(1.02) \sim \sigma_{aero}^{ext}(1.02)$ . Les deux valeurs  $\sigma_{aero}^{ext}(1.55)$  et  $\sigma_{aero}^{ext}(1.02)$  vont servir à estimer

$$\alpha_{i} = -\frac{\ln\left(\frac{\sigma_{est_{o}}^{est_{o}}(1.55)}{\sigma_{est_{o}}^{est_{o}}(1.02)}\right)}{\ln\left(\frac{1.55}{1.02}\right)}$$
(3.37)



FIG. 3.11 - Schéma de l'algorithme d'inversion par analyse globale.

3. Une fois  $\alpha_i$  calculé, nous extrapolons suivant la loi d'Àngström pour obtenir les coefficients d'extinction des aérosols dans les autres canaux:

$$\sigma_{aero}^{ext}(\lambda) = \sigma_{aero}^{ext}(1.55) \cdot \left(\frac{\lambda}{1.55}\right)^{-\alpha},\tag{3.38}$$

L'extrapolation jusqu'aux longueurs d'onde dans la bande de Chappuis conduit notamment à  $\sigma_{aero}^{ext}(0.6)$ .

4. Nous ôtons la contribution des aérosols dans la bande de Chappuis pour en tirer une première estimation du cœfficient d'absorption de l'ozone  $\sigma_{O3}^{abs}(0.6)$ , en négligeant  $\sigma_{NO2}^{ext}(0.6)$ .

$$\sigma_{O3}^{abs}(0.6) = \bar{\sigma}_{cor}(0.6) - \sigma_{aero}^{ext}(0.6)$$
(3.39)

Nous en déduisons ensuite la densité moléculaire de  $O_3$ .

5. Nous calculons les cœfficients d'absorption de  $O_3$  dans les canaux 0.439 et 0.442, que nous allons soustraire des cœfficients d'extinction corrigés de Rayleigh :

$$\bar{\sigma}_{cor}(0.439) - \sigma_{O3}^{abs}(0.439) = \sigma_{acro}^{ext}(0.439) + \sigma_{NO2}^{abs}(0.439)$$
(3.40)

$$\bar{\sigma}_{cor}(0.442) - \sigma_{O3}^{abs}(0.442) = \sigma_{aero}^{ext}(0.442) + \sigma_{NO2}^{abs}(0.442)$$
(3.41)

En supposant que les coefficients d'extinction des aérosols  $\sigma_{aero}^{ext}(0.439)$  et  $\sigma_{aero}^{ext}(0.442)$ sont identiques, la différence entre les équations 3.40 et 3.41 donne le coefficient d'absorption de  $NO_2$  aux longueurs d'onde respectives 0.439 et 0.442  $\mu$ m et, ensuite, la densité du  $NO_2$ .

- 6. La contribution du  $NO_2$  est calculée dans le canal de Chappuis pour affiner l'estimation de la densité de l'ozone. Nous reprenons l'équation 3.36 pour une nouvelle estimation de  $\sigma_{aero}^{ext}(1.02)$
- Nous répètons l'opération des étapes 2 à 5, en réinjectant individuellement les nouvelles informations sur O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub> et des aérosols.
- 8. Une nouvelle itération est menée pour améliorer l'estimation de la contribution des espèces moléculaires en introduisant un polynôme du 2eme degré pour la variation spectrale des coefficients d'extinction des aérosols [Brogniez et Lenoble, 1988]:

$$\ln \sigma_{aero}(\lambda) = \ln \sigma_{aero}(1.55) - \alpha_i \ln \left(\frac{\lambda}{1.55}\right) - \beta_i \ln \left(\frac{\lambda}{1.55}\right)^2 \qquad (3.42)$$

9. Nous re: uons les étapes  $4 \ge 6$  pour recalculer les nouvelles valeurs obtenues pour l' $O_3$  et les autres espèces moléculaires. Nous extrayons les profils des densités moléculaires des constituants et des coefficients d'extinction des aérosols.

# 3.4 Résultats

### **3.4.1** Application de l'inversion dans les bandes résolues

Nous inversons le profil des épaisseurs optiques simulées avec un pas vertical de 0.5 km, dans 4 bandes résolues (définies par le Tableau 3.4) appellées respectivement canaux "O3", "NO2", "NO3" et "OClO", avec les mêmes sections efficaces que celles qui ont servi à leur modélisation (paragraphe 3.2.3.2).

Comme le rapport signal/bruit des mesures réelles de SAGE III est 10 à 20 fois plus faible pour les mesures de transmission lunaire par rapport à celles effectuées par occultation solaire (paragraphe 3.1.2), nous devons introduire deux valeurs différentes de l'incertitude sur les épaisseurs optiques simulées en fonction du cas solaire ou du cas lunaire. Nous avons donc fixé cette incertitude à 3% pour le cas solaire et à 9% pour le cas lunaire (d'après les erreurs de mesures de SAGE II) [Bazureau et al., 2000].

Comme nous allons avoir une incertitude de 2 K sur les mesures des profils de température et de 2% sur celles des profils de pression [SAGE III - ATBD, 2000], une incertitude de 1% sur les trajets géométriques est fixée afin de prendre en compte l'erreur du calcul de la réfraction atmosphérique, qui dépend de celle de la pression et de la température. Mais nous n'avons pas pris en compte l'incertitude sur les températures pour l'utilisation des sections efficaces, car l'écart en température entre les banques de données des sections efficaces pour deux températures différentes est largement supérieur à l'incertitude sur la température: par exemple, les sections efficaces de Shettle et al. [1994] sont données pour 4 températures, de 180 à 240 K avec un pas de 20 K.

L'analyse est complétée par un calcul des erreurs systématiques (Equation 3.31) et des erreurs aléatoires (Equation 3.32).

Les figures 3.12 à 3.15 présentent les profils obtenus dans chaque canal, ne présentant que le composant atmosphérique principal (dans la gamme d'altitude 10 - 60 km) et le coefficient d'extinction des aérosols à la longueur d'onde centrale  $\lambda_o$  de chaque canal respectif (dans la gamme d'altitude 0 - 40 km). Nous présentons ici que les premiers résultats préliminaires (où seule l'incertitude sur les épaisseurs optiques est prise en compte) qui nous ont conduit à un développement plus complet mené dans la partie 3.5.

Les coefficients d'extinction des gaz étant proportionnels à leur densité dans l'atmosphère, nous nous intéressons aux contributions relatives dans les quatre canaux. Les contributions relatives de chaque constituant par rapport au coefficient d'extinction totale sont reportées



FIG. 3.12 - Résultats obtenus par inversion dans les bandes résolues dans le canal "O3" [559-620 nm] avec les barres d'erreurs correspondantes. A gauche : Profils de densité moléculaire de O<sub>3</sub> (en haut) et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_o = 591.5$  nm (en bas). A droite : Profil des erreurs systématiques (Equation 3.31) et des erreurs aléatoires (Equation 3.32).



FIG. 3.13 – Résultats obtenus par inversion dans les bandes résolues dans le canal "NO2" [430-450 nm] avec les barres d'erreurs correspondantes. A gauche : Profils de densité moléculaire de NO<sub>2</sub> (en haut) et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_p = 440$  nm (en bas). A droite : Profil des erreurs systématiques (Equation 3.31) et des erreurs aléatoires (Equation 3.32).



FIG. 3.14 – Résultats obtenus par inversion dans les bundet résolues dans le canal "NO3" [640-680 nm] avec les barres d'erreurs correspondantes. A gauche : Profils de densité moléculaire de NO3 (en haut) et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_0 = 660$  nm (en bas). A droite : Profil des erreurs systématiques (Equation 3.31) et des erreurs aléatoires (Equation 8.32).


FIG. 3.15 – Résultats obtenus par inversion dans les bandes résolues dans le canal "OClO" [407-420 nm] avec les barres d'erreurs correspondantes. A gauche : Profils de densité moléculaire de OClO (en haut) et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_o = 413.5$  nm (en bas). A droite : Profil des erreurs systématiques (Equation 3.31) et des erreurs aléatoires (Equation 9.32).



FIG. 3.16 – Contributions relatives des cæfficients d'extinction des différents constituants à la longueur d'onde  $\lambda = 562.25$  nm du canal de Chappuis [559 - 620 nm],  $\lambda = 433.4$  nm du canal de NO2 [430-450 nm],  $\lambda = 640.7$  nm du canal de NO3 [640-680 nm] et  $\lambda = 407.7$  nm du canal de OCIO [407-420 nm].

dans la figure 3.16.

- Canal O3 L'inversion dans les bandes résolues menée sur le profil des épaisseurs optiques simulées du canal "O3" permet de restituer le profil initial ( ne différence relative (ou erreur systématique) de 0.2 à 0.5 % pour les altitum res à 10 km. En dessous de 10 km, quelques écarts de 6% ont été observés. L'erreur aléatoire (ou dispersion) présente des valeurs entre 4 et 20 %. Le coefficient d'extinction des aérosols à la longueur d'onde centrale du canal "O3",  $\lambda_o = 591.5$  nm, est retrouvé avec une incertitude entre 0.2 et 0.4% pour les altitudes inférieures à 20 km, où sa contribution relative par rapport au coefficient d'extinction total dépasse 10% et est supérieure à la contribution relative de l'ozone (Figure 3.16). L'erreur aléatoire obtenue pour les aérosols est inférieure à 8% dans la gamme d'altitude entre 5 - 40 km.
- Canal NO2 Le profil du  $NO_2$  est restitué avec une erreur systématique de 0.4 à 0.8 % dans la gamme d'altitude entre 15 et 60 km. Dans la même gamme d'altitude, l'erreur aléatoire présente des valeurs autour de 5% à 12 %. Quant aux aérosols, le profil du cœfficient d'extinction à 440 nm est restitué avec une erreur systématique inférieure à 0.5 % sur toute la gamme d'altitude (0-40 km), et avec une erreur aléatoire entre 4 et 10 %.
- Canal NO3 La différence relative du profil  $NO_3$  par rapport au profil initial est de 1-2% entre 10 et 50 km, mais les valeurs du profil des erreurs aléatoires sont élevées, entre 10 et 75% dans la gamme d'altitude 25-60 km. Les aérosols (à  $\lambda_o = 660$  nm) sont retrouvés avec une erreur systématique autour de 1% et avec une erreur aléatoire inférieure a 30% pour les altitudes entre 0 et 25 km. La différence relative augmente avec la diminution de la contribution relative des aérosols, en deçà du seuil de 10%.
- Canal OCIO Enfin, l'inversion menée dans le canal "OCLO" permet de restituer le profil du OCIO entre 15 et 60 km avec une erreur systématique entre 1 et 2 % et une erreur aléatoire inférieure à 50%. Il permet également de restituer le profil du cœfficient d'extinction des aérosols à 413.5 nm, avec un biais inférieur à 1% pour les altitudes inférieures à 25 km. Dans la même région, les valeurs des erreurs aléatoires sont inférieures à 30%.

#### Résultats

### 3.4.2 Analyse des résultats pour les constituants minoritaires

L'algorithme d'inversion dans les bandes résolues peut restituer avec une bonne précision les constituants minoritaires autres que le constituant "cible" (comme  $O_3$  dans les canaux "NO2", "NO3" et "OCLO"). La figure 3.17 présente les profils de densité moléculaire  $O_3$ diurne, résultant de l'inversion dans les canaux "O3" et "NO2", où les épaisseurs optiques ont été simulées dans le cas solaire avec une incertitude de 3%. Les profils de densité moléculaire de  $O_3$  nocturne, obtenus par inversion dans les bandes résolues "NO3" et "OCLO", où les épaisseurs optiques ont été simulées pour le cas lunaire avec une incertitude de 9% (Figure 3.17).

Pour le cas solaire, la comparaison montre que l'erreur systématique des profils obtenus dans le canal "O3", dont le domaine spectral correspond aux maxima de la bande de Chappuis de  $O_3$ , est améliorée de 10 - 80 % pour les altitudes au dessous de 10 km et de 0.2 à 2 % pour les altitudes supérieures à 10 km, comparé au canal "NO2" (Figure 3.17). Nous pouvons faire le même constat pour les profils nocturnes : la bande d'absorption de  $O_3$  est 100 fois plus importante dans le domaine spectral du canal "NO3" que dans celui du canal "OCLO", la contribution de l'ozone est alors plus importante dans le canal "NO3" que dans le canal "OCLO" (Figure 3.16). Nous obtenons alors des erreurs systématiques pour le profil de  $O_3$  plus importantes dans le canal "OCLO" que dans le canal "NO3" (Figure 3.17). Dans l'ensemble, le profil de  $O_3$  comme constituant minoritaire, est particulièrement bien restitué dans les canaux "NO3" et "NO2".

L'inversion dans les bandes résolues permet de restituer avec une faible erreur systématique les composantes principales comme les constituants minoritaires dont les signatures spectrales sont présentes dans les bandes correspondantes. La qualité de la restitution ne dépend que des erreurs de mesures (erreurs aléatoires). Mais plus l'absorption par les constituants atmosphériques est importante dans la bande résolue et plus leur contribution relative par rapport au coefficient d'extinction total est grande, meilleure est la restitution de ceux-ci. Si la contribution relative du constituant est supérieure à 10 %, celui-ci peut être restitué avec une erreur systématique inférieure à 1% et avec une erreur . fatoire inférieure à 20%. La limite de cette contribution "minimale" dépend de l'incertitude des mesures.

### 3.4.3 Choix de l'inversion spatiale

Afin d'étudier l'influence du choix de l'inversion spatiale sur les résultats, nous avons utilisé la méthode de pelure d'oignon puis la méthode d'itération de Chahine dans l'inversion



FIG. 3.17 – Profils de densité moléculaire de  $O_3$  résultant de l'inversion dans les bandes résolues. A droite : Profils obtenus par inversion dans les canaux solaires "O3" et "NO2" (en haut) et dans les canaux lunaires "NO3" et "OClO" (en bas). A gauche : profils des différences relatives pour chaque cas.

#### Résultats

spatiale. Par manque de temps, nous nous sommes limités à l'inversion dans le canal "O3" qui correspond à la bande spectrale de  $O_3$ . Comparé à la partie concernant la comparaison entre les deux méthodes d'inversion (Paragraphe 3.3.3.3), nous utilisons maintenant la procédur de Monte Carlo, qui, en générant plusieurs profils des épaisseurs optiques corrigées de Rayleigh, conduit à plusieurs profils du cœfficient d'extinction corrigé de Rayleigh (obtenus avec l'une ou l'autre méthode d'inversion spatiale).

La figure 3.18 présente les profils de l'ozone, l'un obtenu par inversion spatiale avec la pelure d'oignon et l'autre avec la méthode de Chahine, l'inversion spectrale étant la même pour les deux cas de figure : la comparaison des erreurs systématiques montre que les résultats obtenus par la méthode. Chahine sont proches de ceux obtenus par la pelure d'oignon pour les altitudes supérieures à 20 km. Mais, nous constatons des oscillations indésirables pour les altitudes inférieures à 10 km, correspondant aux altitudes où la méthode de Chahine achoppe (Figure 3.9). Les solutions obtenues par la méthode de pelure d'oignon sont plus stables pour les altitudes inférieures à 15 km. Elles sont inférieures à 5% dans toute la gamme des altitudes.

Nous obtenons des oscillations des erreurs systématiques de l'ordre de 0.2 à 0.5%: l'explication de ces oscillations observées sur les figures précédentes provient de la procédure d'inversion spatiale qui propage les incertitudes des épaisseurs optiques simulées dans le calcul du cœfficient d'extinction dans les couches inférieures.

La méthode de pelure d'oignon présente l'avantage d'être plus rapide que celle de Chahine en considérant l'ensemble de l'inversion *dans les bandes résolues* avec la boucle de Monte Carlo: au terme de  $N_{MC} = 1000$  (Monte Carlo), la pelure d'oignon est 3 fois plus rapide que la méthode de Chahine (15 itérations). Notre choix initial de prendre la pelure d'oignon est bien justifié.

#### 3.4.4 Exploration de l'espace

Afin de tester l'impact du choix de  $N_{MG}$  sur la qualité de l'algorithme d'inversion dans les bandes résolues, une étude a été menée avec une inversion avec la technique de Monte Carlo dans le canal de Chappuis, avec 3 différentes valeurs de  $N_{MC}$ ; 250, 500 et 1000. La qualité de l'inversion est estimée en comparant les profils retrouvés avec les profils initiaux pour chaque constituant. La figure 3.19 représente les erreurs systématiques (en pointillés) ainsi que les erreurs aléatoires (en traits pleins) pour l'ozone et pour le cœfficient d'extinction des aérosols; plus l'exploration de l'espace des modèles est importante, plus le profil vertical des erreurs aléatoires est "lissé". Le constat est le même pour le profil des erreurs systéma-



FIG. 3.18 - En haut: Profils de densité moléculaire de  $O_3$  obtenu dans le canal "O3". Les deux profils retrouvés, l'un obtenu en utilisant la méthode de pelure d'oignon et l'autre avec celle de Chahine, sont comparés avec le profil initial qui a servi à la modélisation. En bas: les profils des différences relatives pour chaque cas.

tiques. Mais on n'observe pas de différences supérieures à 1% en comparant les profils des erreurs aléatoires pour des valeurs de  $N_{MC}$  différentes. C'est aussi le cas pour les profils des erreurs systématiques. Dans la suite, pour un meilleur rapport qualité / vitesse d'exécution du programme de l'algorithme d'inversion,  $N_{MC}$  a éte pris égal à 1000.

## 3.5 Application à des modèles d'atmosphères variés

Faute de mesures réciles de SAGE III, une simulation est menée avec deux profils d'ozone différents et avec plusieurs types d'aérosols de distribution verticale et de granulométrie différente afin de tester l'algorithme d'inversion dans les *bandes résolues* de SAGE III (Paragraphe 3.3.2). Une comparaison est effectuée avec l'algorithme d'inversion *par analyse globale* (paragraphe 3.3.6).

## 3.5.1 Modélisation des huit atmosphères

Huit profils de transmission sont synthétisés à partir de huit modèles d'atmosphère représentant une large palette de compositions atmosphériques typiques : chaque modèle est caractérisé par des profils des densités moléculaires de  $O_3$ , de  $NO_2$  et du cœfficient d'extinction des aérosols pris à une longueur d'onde de référence  $\lambda_{ref}$ . Ces huit modèles d'atmosphère sont récapitulés dans le tableau 3.5 et numérotés de 0 à 7.

Le profil de densité de l' $O_3$  est l'un des deux profils (Figure 3.20) représentant de manière approchée le cas normal et le cas trou d'ozone, ce dernier caractérisant l'état de la stratosphère lors de la destruction massive des molécules d'ozone. Le profil de  $NO_2$  est identique pour les huit modèles d'atmosphère et provient d'une des mesures de POAM située à haute latitude (Figure 3.22). Nous choisissons de décrire les aérosols par une distribution log-normale (LND) (équation 1.1). Les coefficients d'extinction des aérosols sont générés à partir d'un profil initial, pris à une longueur d'onde de référence  $\lambda_{ref}$ , avec une dépendance parabolique de la variation spectrale estimée par [Brogniez et Lenoble, 1988] rappelée ici (équation 3.42):

$$\ln \sigma_{aero}^{ext}(\lambda) = \ln \sigma_{aero}(\lambda_{ref}) - \alpha_i \ln \left(\frac{\lambda}{\lambda_{ref}}\right) - \beta_i \ln^2 \left(\frac{\lambda}{\lambda_{ref}}\right)$$
(3.43)

où  $\alpha_i$  et  $\beta_i$  sont les coefficients du polynôme du 2eme degré pour la variation spectrale des aérosols. Comme les profils des constituants sont issus des données réelles de SAGE II et de POAM III, le canal à 1.02  $\mu m$  étant commun à ces deux expériences, nous avons choisi de prendre  $\lambda_{ref} = 1.02 \ \mu m$ . Un facteur supplémentaire, dit facteur d'amplification  $F_{\alpha}$ , est



FIG. 3.19 – En haut : profil des erreurs systèmatiques (en pointillés) et des erreurs aléatoires (en traits pleins) pour l'inversion de  $O_3$  avec trois valeurs de  $N_{MC}$  différentes (voir texte). En bas : même chose, pour le cœfficient d'extinction des aérosols à 591.5 nm.



FIG. 3.20 – Profil de densité moléculaire d'ozone : le trait en pointillés représente le cas où il y a déficit d'O<sub>3</sub>, le trait plein le cas normal.

introduit pour faire varier l'influence du cœfficient d'extinction (Voir Figure 3.21). Pour compléter cette description des caractéristiques de la composition atmosphérique, nous avons choisi deux profils *types* de pression et de température, identiques pour les modèles.

La modélisation, avec ces huit modèles d'atmosphère, ne se veut pas complète mais est représentative des différents états possibles de la stratosphère terrestre. Les modèles 0 et 1 représentent des aérosols de fond, dont les coefficients d'extinction sont modélisés en utilisant la loi d'Ångström ( $\beta_i = 0$ ) et en considérant deux facteurs d'amplification  $F_a$  différents; le modèle 2 est une transposition du modèle 1, cette fois avec une dépendance parabolique pour le modèle des aérosols, avec  $\alpha_i$  et  $\beta_i$  non nuls, caractérisant toujours des aérosols de fond; le modèle 3 représente l'état de la stratosphère après une éruption volcanique, les aérosols possèdent une variation spectrale parabolique avec  $\alpha_i=1.5$  et  $\beta_i=1.0$ ; le modèle 4 représente l'état de la stratosphère en présence d'un déficit d'ozone et les petites particules d'aérosols y sont représentées par une dépendance parabolique de la variation spectrale avec  $\alpha_i = 2.7$  et  $\beta_i = 0.7$ ; le modèle 5 est une transposition du modèle 3 et représente l'état de la stratosphère appauvrie en ozone après une éruption volcanique majeure; enfin, les modèles 6 et 7 sont relatifs à une stratosphère polaire, appauvrie en ozone, en présence des particules de PSC



FIG. 3.21 – Profil du cœfficient d'extinction des aérosols à 562.25 nm, englobant tous les modèles du tableau 3.5, avec les caractéristiques de la distribution spectrale  $(\alpha_i, \beta_i)$ . Le facteur d'amplification correspondant est dénoté par  $F_a$ .



FIG. 3.22 – Profil de densité du dioxyde d'azote utilisé dans la simulation.

Numéro		Représentation des Aérosols				Modèle Article
đu	Profil de	Facteur d'	Epaisseur Optique			[Brogniez et al., 2001]
Modèle	O3	Amplification $F_a$	$\lambda = 1.02 \ \mu \mathrm{m}$	ai	$\beta_{i}$	
0	normal	1	0.016	2	0	
1	normal	0.2	0.0032	2	0	
2	normal	0.2	0.0032	2	0.7	
3	normal	1	0.016	1.5	1	2
4	trou	0.2	0.0032	2.7	0.7	
5	trou	1	0.016	1.5	1	3
6	trou	0.2	0.0032	2.7	0.7	4
			+ PSC	1.5	1	
7	trou	$\mathbf{t}$	0.016	2.7	0.7	
			+ PSC	1.5	1	

TAB. 3.5 – Huit profils d'atmosphères pour la simulation, avec les caractéristiques des profils d'ozone et du cœfficient d'extinction des aérosols.

( $\alpha_i=1.5$  et  $\beta_i=1.0$ ) superposées à des petites particules d'>érosols de fond ( $\alpha_i=2.7$  et  $\beta_i=0.5$ ), en quantité plus ou moins grande.

Pour l'inversion dans les bandes résolues, on se limite à deux canaux pour la simulation des épaisseurs optiques de SAGE III, le canal de  $O_3$  dans le domaine spectral [559-624], divisé en 10 sous-canaux, et le canal du dioxyde d'azote dans le domaine [433-450], divisé en 19 sous-canaux. Pour le choix des sections efficaces d'absorption moléculaire, nous avons choisi d'utiliser les sections efficaces récentes de Burrows et al. [1999] pour l'ozone et celles de Burrows et al. [1998] pour le dioxyde d'azote.

Les contributions relatives de chaque constituant par rapport au cœfficient d'extinction totale sont reportées dans la figure 3.23, pour le canal de Chappuis, et dans la figure 3.24 pour le canal du  $NO_2$ . Les contributions des aérosols pour les 8 modèles ne deviennent importantes qu'au dessous de 30 km. Elles dépendent du facteur d'amplification  $F_a$ . La contribution de l'ozone est, comme attendu, plus importante dans le canal de Chappuis : elle reste supérieure à 30% au dessus de 10 km pour les 4 premiers modèles. En présence du "trou", la part de l'ozone est inférieure à 10% au dessous de 20 km, avec des creux jusqu'à moins de 1% autour de 15 km coïncidant avec l'altitude du "creux" dans le profil vertical d'ozone. Dans le canal  $NO_2$ , la contribution du  $NO_2$  est comprise entre 1 et 10% dans la gamme d'altitude 20 - 45



FIG. 3.23 – Contributions relatives des cœfficients d'extinction des différents constituants pour chaque modèle d'atmosphère à la longueur d'onde centrale  $\lambda_o = 594.75$  nm du canal de Chappuis [559-624].



FIG. 3.24 – Contributions relatives des cœfficients d'extinction des différents constituants pour chaque modèle d'atmosphère à la longueur d'onde centrale  $\lambda_o = 441.5$  nm du canal de dioxyde d'azote [483-450].

km. Au dessus de 70 km, la contribution de  $NO_2$  est négligeable. On remarque que les contributions du  $NO_2$  et du  $O_3$  sont voisines pour les 4 premiers modèles au dessous de 40 km. Pour les autres modèles, la proportion  $O_3/NO_2$  diminue avec la présence du déficit d'ozone. Par contre, dans le canal  $O_3$ , le pic de la contribution du  $NO_2$  est inférieur à 0.5% sur toute la gamme d'altitude pour tous les modèles. Au dessus de 60 km, il n'y a pratiquement pas de contribution de  $NO_2$ . A cause de sa dépendance spectrale, la contribution de la diffusion de Rayleigh est plus importante pour les courtes longueurs d'ondes (canal  $NO_2$ ) que pour les grandes longueurs d'ondes (canal  $O_3$ ).

#### 3.5.2 Résultats de l'inversion sans les incertitudes

L'inversion est réalisée, sans prendre en compte les erreurs de mesure, afin d'établir la stabilité des algorithmes eux-même. La comparaison est complétée par un calcul des différences relatives (équation 3.31).

Les figures 3.25 à 3.32 présentent, en traits pleins noirs, les résultats issus de l'inversion dans les bandes résolues et, en traits pleins rouges, les résultats issus de l'inversion globale : les erreurs systématiques des profils de  $O_3$ , de  $NO_2$  et des coefficients d'extinction des aérosols aux longueurs d'onde centrales, autour de 600 nm et autour de 442 nm, y sont reportées. S'ajoutent à ces résultats, les erreurs systématiques des profils des coefficients d'extinction des aérosols à 945 et 1550 um, issus de l'inversion globale.

Ces huit figures montrent que les profils des densités moléculaires sont bien reconstitués par l'algorithme d'inversion dans les bandes résolues avec des erreurs systématiques inférieures à 0.1% pour l'econe entre 20 et 90 km. Les modèles 4 à 6 montrent un pic autour de 15 km, entre 0.4 et 0.8 % en présence d'un déficit d'ozone, la valeur du pic est de 4% pour le modèle 7 (présence de PSC et épaisseur optique des aérosols très faible). L'algorithme d'inversion globale restitue bien les aérosols entre 30 et 90 km avec une erreur systématique inférieure à 0.1%. Mais pour les modèles 2 à 7, il y a une bosse inexplicable autour de 80 km où nous obtenons des pics entre 0.2 et 0.4 % : cette bizarrerie est actuellement à l'étude. De plus, nous observons ur biais de 1 à 2% pour le profil de  $O_3$  issu de l'inversion globale, pour les altitudes inférieures à 20 km, pour les modèles 2 à 7 (Figures 3.27 à 3.32). Pour le modèles 0, 1 et 7 (Figures 3.25, 3.26 et 3.32), le profil de  $O_3$  est moins bien reconstitué pour les altitudes au dessous de 20 km avec l'inversion dans les bandes résolues par rapport à l'inversion globale. Le modèle 7, en particulier, montre que la présence du PSC parasite l'obtention de la densité



Modèle 0:

FIG. 3.25 – Résultats pour le modèle 0: profils des erreurs systématiques pour  $O_3$ ,  $NO_2$  et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_o = 442$ , 600, 945 et 1550 nm, issus des trois méthodes d'inversion; "Bandes résolues" (traits pleins noirs), "Inversion Globale" (traits pleins rouge) et "Inversion Combinée" (croix).

Modèle 1 :



FIG. 3.26 - Identique à la figure 3.25 mais pour le modèle d'atmosphère 1.



FIG. 3.27 - Identique à la figure 3.25 mais pour le modèle d'atmosphère 2.

Modèle 3 :



FIG. 3.28 - Identique à la figure 3.25 mais pour le modèle d'atmosphère 3.



Modèle 4 :

FIG. 3.29 - Identique à la figure 3.25 mais pour le modèle d'atmosphère 4.

Modèle 5 :



FIG. 3.30 - Identique à la figure 3.25 mais pour le modèle d'atmosphère 5.



Modèle 6 :

FIG. 3.31 - Identique à la figure 3.25 mais pour le modèle d'atmosphère 6.

Modèle 7 :



FIG. 3.32 - Identique à la figure 3.25 mais pour le modèle d'atmosphère 7.

moléculaire de O3 dont la contribution relative chute au dessous de 0.1%.

Les profils de  $NO_2$  sont restitués par l'inversion dans les bandes résolues avec une erreur systématique inférieure à 0.2% entre 0 et 60 km, quelque soit le modèle. Avec l'inversion globale, les modèles 0 et 1 sont correctement restitués mais les modèles 2 à 7 montrent une biais entre 0.2 et 1% pour les altitudes inférieures à 30 km. Au dessus de 70 km, les différences relatives entre le profil nominal et le profil retrouvé pour le  $NO_2$  deviennent plus importantes, quelque soit l'algorithme d'inversion utilisé, car la contribution du  $NO_2$  est négligeable dans ce domaine d'altitude.

Quant aux erreurs systématiques du profil des cœfficients d'extinction des aérosols, à 442 et 600 nm, elles sont respectivement inférieures à 0.01% et 0.05% pour toute la gamme d'altitude 0 - 90 km et pour tous les modèles (sauf les modèles 0 et 1 pour  $\lambda_o = 600 nm$ ). Pour les modèles 0 et 1 (Figures 3.25 et 3.26), les profils des coefficients d'extinction à 600 nm, issus de l'inversion dans les *bandes résolues*, sont restitués avec un biais constant inférieur à 0.1 % pour toute la gamme d'altitude : l'algorithme est en cours de révision afin de comprendre ce comportement. Parallèlement, nous observons que l'inversion globale restitue les aérosols à 442 et 660 nm avec un biais constant entre 0.1 et 0.2 % pour les altitudes entre 10 et 80 km. Ce comportement bizarre, observé pour les modèles 2 à 7, est en cours de correction.

L'inversion globale e sites poin les coefficients d'extinction des aérosols à 945 et 1550 nm, avec une erreur sys' soul que inférieure à 0.01% pour tous les modèles.

<sup>7</sup>. comparais a avec les résultats de l'inversion globale montre que l'inversion dans les bandes résultats restitue mieux les profils des densités moléculaires, ce qui signifie que la séparatare, des espèces est menée à bien avec l'inversion dans les bandes résolues. La comparaison des profils obtenus pour chacun des modèles avec les contributions relatives permettent d'estimer le seuil de détection pour l'algorithme d'inversion dans les bandes résolues, en l'absence d'incertitudes sur les mesures. Si la contribution relative de l'ozone est supérieure à 10%, nous obtenons une erreur systématique inférieure à 1%: nous constatons plus loin que la restitution de l'ozone est parasitée par la présence des aérosols. Concernant le  $NO_2$ , si la contribution relative est supérieure à 0.1%, on peut s'attendre à un profil retrouvé avec une erreur systématique inférieure à 1%. Globalement, les deux algorithmes ont un excellant comportement en l'absence des incertitudes ; les différences relatives dues à l'inversion sont très faibles.

Puisqu'avec les canaux résens, on a une meilleure séparation des espèces, il est intéressant de tirer profit de cette configuration en extrayant les profils des densités moléculaires, obtenus par la méthode d'inversion dans les *bandes résolues*, pour une meilleure séparation des aérosols dans les autres canaux de SAGE III. Par la suite, nous avons donc combiné les deux algorithmes d'inversion ; l'algorithme dans les *bandes résolues* et l'algorithme par *analyse globale*, pour établir un nouvel algorithme : l'algorithme *combiné*, permettant de restituer les cœfficients d'extinction des aérosols en dehors des bandes résolues. Sa description détaillée est disponible dans l'article de [Brogniez et al., 2001] dans l'annexe.

#### 3.5.3 Influence de l'incertitude sur les profils de transmission

Tout algorithme d'inversion doit être stable en présence d'erreurs aléatoires de mesure. Pour cela, une estimation *a priori* des erreurs de mesure doit être comprise dans l'inversion. Dans la suite, les incertitudes sur les profils de transmission sont modélisées par une distribution aléatoire gaussienne, pour chaque altitude et pour chaque longueur d'onde, avec une incertitude sur les valeurs de transmission. Cette incertitude est estimée d'après le document [SAGE III - ATBD, 2000] à:

$$\frac{\Delta \mathbf{T}}{\mathbf{T}} = 0.05\% \tag{3.44}$$

L'estimation de la qualité de l'inversion est effectuée par une comparaison entre les profils nominaux et les profils retrouvés: cette analyse repose sur le calcul des erreurs systématiques (équation 3.31) et des erreurs aléatoires (équation 3.32) pour chaque constituant, pour tous les modèles atmosphériques.

Les Figures 3.33 à 3.48 présentent les 8 modèles: nous avons reporté les erreurs systématiques (en traits pleins) et les erreurs aléatoires (en pointillés) des résultats issus de deux méthodes d'inversion; "Inversion Globale" (paragraphe 3.3.6) et "Inversion Combinée", décrite dans le paragraphe précédent.

Un premier constat montre que les profils des composants ne sont pas bien restitués pour les altitudes supérieures à 50 km (non montré sur les figures): les biais dépassent 100% et les erreurs aléatoires résultant des algorithmes d'inversion dans les bandes résoluce sont, pour la plupart des modèles, comprises entre 70 et 100%. Une analyse du profil de transmission entre 50 km et l'altitude maximale de la simulation (90 km) montre que les valeurs de la transmission le long de la ligne de visée sont proches de l'unité. La différence entre les gammes des altitudes restituées dans le canal  $O_3$  et le canal  $NO_2$  s'explique aussi par l'examen des



FIG. 3.33 – Résultats pour le modèle 0: Comparaison des erreurs systématiques (traits pleins) et aléatoires (en pointillés) pour chaque profil de  $O_3$ , de  $NO_2$  et des cœfficients d'extinction des aérosols à  $\lambda_o = 385$ , 442, 525 et 600 nm, issus des deux méthodes d'inversion: "Inversion Glabale" (traits rouges) et "Inversion Combinée" (traits verts) (voir texte).



F1G. 3.34 – Résultats pour le modèle 0: Comparaison des erreurs systématiques (traits pleins) et aléatoires (en pointillés) pour chaque profil des cœfficients d'extinction des aérosols à  $\lambda_o$ = 670, 757, 872, 945, 1020 et 1550 nm, issus des deux méthodes d'inversion: "Inversiou. Globale" (traits rouges) et "Inversion Combinée" (traits verts) (voir texte).



FIG. 3.35 – Identique à la figure 3.33 mais pour le modèle d'atmosphère 1.



FIG. 3.36 - Identique à la figure 3.84 mais pour le modèle d'atmosphère 1.



FIG. 3.37 - Identique à la figure 3.33 mais pour le modèle d'atmosphère 2.



FIG. 3.38 - Identique à la figure 3.84 mais pour le modèle d'atmosphère 2.



FIG. 3.39 - Identique à la figure 3.33 mais pour le modèle d'atmosphère 3.



FIG. 3.40 - Identique à la figure 3.34 mais pour le modèle d'atmosphère 3.



F1G. 3.41 - Identique à la figure 3.33 mais pour le modèle d'atmosphère 4.



FIG. 3.42 - Identique à la figure 3.94 mais pour le modèle d'atmosphère 4.



FIG. 3.43 – Identique à la figure 3.33 mais pour le modèle d'atmosphère 5.


FIG. 3.44 - Identique à la figure 9.34 mais pour le modèle d'atmosphère 5.

# Application à des modèles d'atmosphères variés



FIG. 3.45 - Identique à la figure 3.33 mais pour le modèle d'atmosphère 6.



FIG. 3.46 - Identique à la figure 3.34 mais pour le modèle d'atmosphère 6.

# Application à des modèles d'atmosphères variés



FIG. 3.47 – Identique à la figure 3.33 mais pour le modèle d'atmosphère 7.



FIG. 3.48 - Identique à la figure 3.34 mais pour le modèle d'atmosphère 7.

#### Application à des modèles d'atmosphères variés

transmissions : elle dépend de la longueur d'onde. Une constatation peut être dégagée à partir de ces simulations : lorsque les valeurs de transmission sont proches de l'unité (le seuil dépend de l'incertitude sur les mesures), il est impossible de restituer correctement les profils de tous les constituants pour l'algorithme d'inversion.

Dans l'ensemble, pour les modèles présentés ici, les erreurs systématiques obtenues pour les profils des densités moléculaires de  $O_3$  et de  $NO_2$  sont en général inférieures à 5% sur la gamme d'altitude 0 - 40 km, à l'exception des cas où il y a déficit de l'ozone.

Pour les profils obtenus avec l'inversion globale, on observe un léger biais au dessous de 10 km. La comparaison entre les différentes méthodes d'inversion montre que le profil de  $O_3$  issu de l'inversion globale est blen retrouvé jusqu'à 50 km, avec une erreur systématique inférieure à 4% pour tous les modèles. Mais cette méthode laisse apparaître une "bosse" inexpliquée entre 25 et 40 km de 4 à 8% pour les modèles 0 à 3. Pour les modèles où il y a déficit d'ozone, ces écarts augmentent jusqu'à 15-20% (Figures 3.41 à 3.48). Pour certains modèles (3 à 7), un biais constant de 1.5 à 2 % est observé pour les altitudes inférieures à 20 km. Quant aux profils de  $O_3$  obtenus par inversion combinée, l'erreur systématique est inférieure à 0.3% entre 10 et 35 km, avec un écart de 2% (modèles 4, 5 et 6) à 5 % (modèle 7) autour de 15 km. Pour les modèles 0 et 1, les erreurs systématiques sont inférieures à 0.1% entre 10 et 25 km (Figure 3.35). Les profils des erreurs aléatoires de  $O_3$  restent inférieures à 20% entre 0 et 40 km quel que soit le modèle. Elles augmentent jusqu'à 80% au dessus de 40 km, lorsque le profil de transmission se rapproche de l'unité.

Pour les valeurs retrouvées de  $NO_2$ , en dessous de 35 km, la méthode d'inversion *combinée* montre un léger avantage sur l'inversion globale : pour tous les modèles, on constate des biais inférieurs à 0.5 - 1 % entre 0 et 35 km, à comparer aux valeurs de 1 - 2 % entre 0 et 30 km, obtenues par l'inversion globale. Grâce à la méthode d'inversion *combinée*, la limite supérieure de la reconstitution du profil de  $NO_2$  est améliorée de quelques kilomètres. Pour tous l'modèles, les erreurs aléatoires obtenues par ces deux méthodes sont inférieures à 20 % pour les altitudes au dessous de 30 % tandis que l'erreur aléatoire issue de l'inversion "globale" varie — 15 et 30 %.

Pour les aérosols obtenus pour les 2 inversions, nous avons montré, dans les figures 3.33 à 3.48, les erreurs systématiques et les erreurs aléatoires des profils des cœfficients d'extinction à 10 longueurs d'onde (385, 442, 525, 600, 670, 757, 872, 945, 1020 et 1550 nm). Pour les cœfficients d'extinction des aérosols à 442 nm, les erreurs sytématiques pour l'inversion combinée sont inférieures d'environ 0.5 % pour tous les modèles entre 25 et 0 km. Pour tous les modèles, la limite supérieure de la reconstitution du profil des coefficients d'extinction est améliorée de quelques kilomètres grâce à l'inversion *combinée*, notamment aux longueurs d'onde où la contribution de l'ozone est importante (de 385 à 757 nm, sauf pour 600 nm). Ailleurs, ce résultat est mitigé car l'inversion combinée augmente les erreurs relatives (à 525, 600 et 670 nm) d'un facteur 2 à 3. La restitution des cœfficients d'extinction des aérosols à 945, 1020 et 1550 ne montre pas d'améliorations intéressantes: les méthodes d'inversions se valent toutes les deux. L'inversion globale permet une bonne détermination des profils des coefficients d'extinction des aérosols avec une erreur systématique inférieure à 0.2% au dessous de 20 km. Les erreurs aléatoires des cœfficients d'extinction des aérosols sont inférieures à 10% au dessous de 20 km pour tous les modèles. Autour 10 km, on observe une petite bosse dans le profil des erreurs aléatoires pour les tous modèles : la contribution du cœfficient d'extinction des aérosols y est faible. Le constat est le même que dans le paragraphe 3.5.2: la restitution de l'ozone parasite la restitution des aérosols et vice-versa.

Ces premiers constats montrent l'avantage de l'inversion *combinée* pour la reconstitution des profils de densités moléculaires, à condition que la contribution des constituants soit supérieure à 5% pour obtenir des erreurs systématiques inférieures à 1%. Faute de temps, nous ne pouvons pas faire de constat définitif: ces deux algorithmes méritent encore de nouvelles études comparatives plus approfondies que celles jusqu'ici menées.

#### 3.5.4 Influence de l'incertitude sur le profil de température

Afin d'estimer l'influence de la température, on introduit un biais sur le profil de température. Le calcul de la contribution Rayleigh dépend du calcul des trajets géométriques où le profil de température intervient. On a étudié l'impact d'un biais constant de 2% dans le profil de température sur les résultats de l'inversion dans les *bandes résolues*.

Comme les sections efficaces moléculaires sont dépendantes de la température (voir Chapitre 2), le blais dans le profil de température devrait conduire à considérer également un blais sur les sections efficaces. Or, les données actuelles des sections efficaces, notamment sur leur dépendance en fonction de la température, sont insuffisantes. Pour tenir compte d'un blais de 2% sur le profil de température, une interpolation entre deux séries de sections ef-

#### Conclusions

ficaces pourrait être envisagée. Mais une telle interpolation pourrait entraîner des erreurs supplémentaires car on ne connaît pas bien la dépendance en fonction de la température des structures différentielles des sections efficaces, notamment pour le  $NO_2$ . Ces considérations nous conduisent à employer les valeurs des sections efficaces, qui ont servi à la modélisation (Burrows et al. [1999] pour  $O_3$  et Burrows et al. [1998] pour  $NO_2$ ). Nous avons effectué une première approche de cette dépendance mais elle ne fera pas l'objet, faute de temps, d'une présentation dans le cadre de cette thèse.

Nous avons constaté qu'en introduisant un biais constant sur le profil de température, nous dégradons un peu la qualité de la restitution des aérosols là où l'information sur les aérosols est faible [Brogniez et al., 2001]. Le comportement de l'algorithme d'inversion dans les *bandes résolues* en fonction de la température mérite une étude plus approfondie pour les autres bandes résolues, en considérant d'autres espèces moléculaires et en tenant compte de façon explicite de la dépendance en température des sections efficaces.

# 3.6 Conclusions

Ce chapitre a présenté le principe d'inversion des mesures spectrales de SAGE III, obtenues par occultation solaire ou lunaire: l'acquisition des profils des épaisseurs optiques (ou des transmissions) conduit à une reconstitution des profils verticaux des constituants atmosphériques.

Le développement de cette méthode d'inversion pour les mesures de SAGE III permet de tirer profit de l'amélioration de la résolution spectrale des canaux de SAGE III par rapport à ses prédecesseurs. Les premiers résultats de cette méthode d'inversion, qu'on appelle inversion dans les *bandes résolues*, montrent qu'en l'utilisant, nous sommes capables de retrouver les profils des constituants moléculaires avec un blais inférieur à 1% dans le cas solaire. Le cas lunaire où l'incertitude sur les épaisseurs optiques est plus importante, du fait d'un rapport signal sur bruit plus faible, ne permet d'obtenir que des informations sur les espèces nocturnes avec un biais inférieur à 2%. Ces valeurs sont estimées d'après une simulation des incertitudes sur les mesures des épaisseurs optiques.

Une analyse a été menée avec des simulations d'une large palette de modèles atmosphériques, soit 8 états les plus représentatifs de la stratosphère, afin de comparer la méthode d'inversion dans les *bandes résolues* avec une autre méthode, initialement destinée à l'inversion des profils de transmission de SAGE II et de POAM II et III, qu'on appelle inversion globale. Cette inversion a été adaptée aux canaux de SAGE III. Une première comparaison des profils moléculaires a montré l'avantage de l'algorithme dans les bandes résolues par rapport à l'inversion globale, en ce qui concerne  $O_3$ ,  $NO_2$  et les aérosols aux longueurs d'ondes centrales 442 et 600 nm. Ces deux méthodes d'inversion ont alors été combinées dans un nouvel algorithme d'inversion, dénommé inversion combinée, afin d'améliorer l'estimation des cœfficients d'extinction des aérosols en dehors des canaux résolus de SAGE III, notamment dans les canaux, où il existe une absorption non négligeable par les espèces moléculaires (notamment l'ozone, entre 345 et 757 nm). Nous avons mené une étude de l'impact d'une incertitude de 0.05% sur les mesures des profils de transmissions simulées : lorsque les valeurs de transmission sont proches de l'unité, on peut s'attendre à une mauvait reconstitution dans les couches supérieures.

Un blais introduit sur le profil de température et l'ajout d'une incertitude sur les altitudes tangentes sur les incertitudes sur les transmissions, ont fait l'objet d'une étude préliminaire : on se réferera à l'article de Brogniez et al. [2002] pour plus de détails. Il en ressort que l'incertitude sur la température influe sur la qualité de restitution des profils d'aérosol au dessus de 35 km.

Pour finaliser l'étude du comportement de l'algorithme d'inversion dans les bandes résolues, il est prévu de transposer cette étude au cas lunaire, impliquant des profils verticaux des densités moléculaires  $NO_2$ ,  $O_3$ , OClO et  $NO_3$ .

# Chapitre 4

# Application aux mesures ballon AMON et SALOMON

Dans l'attente des mesures de SAGE III, nous avons en une opportunité de tester notre algorithme d'inversion dans les bandes résolues avec des mesures réelles, effectuées par une méthode d'occultation stellaire depuis une plate forme embarquée sous un ballon stratosphérique : cette expérience, menée par l'équipe du Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement (LPCE) d'Orléans, s'appelle AMON (Absorption par Minoritaires Ozone et Nox). Une autre expérience ballon similaire, appellée SALOMON (Spectroscopie d'Absorption Lunaire pour l'Observation des Minoritaires Ozone et Nox), également conduite par le LPCE, utilise une méthode d'occultation avec une autre source lumineuse : la Lune. Ce type de mesure par visée au limbe est similaire à celui de SAGE III, néanmoins, il a fallu élaborer une version "ballon" de l'algorithme d'inversion de SAGE III sur les épaisseurs optiques mesurées par les deux expériences AMON et SALOMON.

Ce dernier chapitre est divisé en deux parties, chacune étant consacrée à une des expériences "ballon" citées ci-dessus. La première comporte une étude préliminaire de l'inversion des profils d'épaisseurs optiques simulés, qui permet de valider l'adaptation de l'algorithme d'inversion dans les bandes résolues de SAGE III aux mesures réelles des épaisseurs optiques de AMON. On y présente également une comparaison succinte des deux méthodes d'inversion : l'inversion dans les bandes résolues, dite du "LOA" pour simplifier et l'inversion dite du "LPCE". On analysera dans cette partie la qualité de l'inversion "LOA" suivie d'une étude de la granulométrie des aérosols par une analyse spectrale des cœfficients d'extinction des aérosols.

Avec la même démarche que dans la première partie, la deuxième partie expose l'inversion des mesures des épaisseurs optiques réelles de SALOMON. Le développement de cette partie termine par une comparaison des dépendances spectrales des cœfficients d'extinction des aérosols déterminés par les deux méthodes d'inversion et par une analyse critique des caractéristiques des aérosols qu'on peut en déduire.

# 4.1 Application aux mesures AMON

L'instrument AMON (*Absorption par Minoritaires Ozone et Nox*) est destiné à étudier la répartition verticale des constituants minoritaires de l'atmosphère impliqués dans le cycle de destruction de l'ozone. Il a été conçu sur le même modèle que l'instrument CMS (*Composés Minoritaires Stratosphériques*) développé dans les années 1980 par P. Rigaud et J.P. Naudet, au Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement [CNES, 1996]. Le premier vol de AMON a eu lieu à Aire sur l'Adour, le 4 Octobre 1991.

#### 4.1.1 Description de l'instrument AMON

AMON est composé d'un téléscope Cassegrain, de diamètre 20 cm et de distance focale de 1 m, associé à un spectromètre à réseau et un détecteur CCD (385 x 578 pixels). Les caractéristiques du détecteur lui permettent d'observer l'occultation d'une étoile à travers les couches atmosphériques sur 5 bandes, situées dans la partie visible et UV du spectre électromagnétique; [300-400 nm], [400-475 nm], [475-550 nm], [550-625 nm] et [625-700 nm] [Renard et al., 1996]. Pour chaque vol, l'instrument est placé à bord d'une nacelle sous un ballon stratosphérique [CNES, 1996]. La conception de cette nacelle stabilisable résulte de l'expérience acquise par l'Observatoire de Genève dans le domaine et permet d'obtenir un pointage fin avec une précision de 3" vers l'étoile visée. La résolution verticale des mesures est meilleure que 1 km [Renard et al., 2000]. Du fait de son poids total de 500 kg, AMON ne peut être embarqué qu'à bord de ballons stratosphériques de grande taille, de volume égal ou supérieur à 100 000  $m^3$ . Cette contrainte limite les opportunités de lancement.

Lorsque le ballon atteint le plafond, le détecteur observe le coucher d'une étoile: la visée atmosphérique utile se fait au dessous de l'horizon de la nacelle lorsque la distance zénithale (SZA, *Star Zenith Angle*) est supérieure à 90 °(Figure 4.1). L'observation dure approxima-



FIG. 4.1 – Géométrie d'observation de l'atténuation de l'étoile (Rigel) par les couches atmosphériques : on y a noté la distance zénithale SZA. La mesure du spectre de référence de l'étoile s'effectue lorsqu'elle est au dessus de l'horizon de la nacelle, lorsque SZA  $\leq$  90 °.

tivement une heure et s'arrête lorsque les couches atmosphériques deviennent opaques. Pour obtenir l'épaisseur optique tangente, ces spectres sont divisés par le *spectre de référence* obtenu en moyennant les spectres mesurés lorsque la distance zénithale de l'étoile est à son minimum, i.e. lorsque l'étoile se trouve au dessus de l'horizon de la nacelle : on peut considérer que ces spectres, spectres dits "hors atmosphère", ne sont pas altérés par l'atmosphère située au dessus de la nacelle, ce qui n'est bien sûr qu'une approximation.

Enfin, l'utilisation d'un détecteur CCD permet de réduire l'effet des bruits spectraux liés à la scintillation atmosphérique en réalisant une mesure simultanée à toutes les longueurs d'ondes [Roscoe et al., 1994]. De la sorte, les variations d'intensité affecterent également chaque longueur d'onde et la structure du spectre reste inchangée durant la scintillation. Mais d'après [Renard et al., 2001], la scintillation affecte aussi les intensités dont les fluctuations dépendent de la longueur d'onde : nous allons détailler le phénomène de scintillation dans le paragraphe 4.1.5.1.

#### 4.1.2 Campagne de mesures AMON du 27 Février 1997

Le vol de l'instrument AMON, dont l'inversion des épaisseurs optiques est le sujet de ce chapitre, a eu lieu le 27 Février 1997 à partir de Kiruna (Suède) à l'intérieur du vortex polaire



FIG. 4.2 - Vol du 27 Février 1997. En haut : Allure de l'altitude tangente et de l'altitude du ballon. En bas : Allure de la distance zénithale de l'étoile Rigel durant le vol

Nom de la bande	Constituants	Domaine	Nombre	Résolution
	majeurs	de longueur d'onde	de pixels	
"NO2"	NO2, O3 et Aérosol	404.0 - 475.4 nm	471 pixels	~ 0.14 nm
"O3"	O3 et Aérosol	553.1 - 628.9 nm	439 pixels	~ 0.14 nm
"NO3"	NO3, O3 et Aérosol	649.1 - 675.4 nm	105 pixels	~ 0.14 nm

#### TAB. 4.1 - Canaux AMON disponibles

[Payan et al., 1999]. Les figures 4.2 donnent les caractéristiques du vol de l'instrument AMON en fonction du temps TU; altitude tangente, altitude du ballon et distance zénithale de l'étoile observée, Rigel. Le ballon est stabilisé à une altitude moyenne de 31.5 km. L'équipe du LPCE nous a fourni les profils des épaisseurs optiques. L'acquisition des spectres est effectuée avec un pas temporel constant, de l'ordre de la minute, ce qui fait que le pas spatial des altitudes tangentes n'est pas linéaire au fur et à mesure que l'étoile se couche. La résolution verticale moyenne de ce profil est de 0.5 km (Figure 4.2). Les spectres ont été enregistrés à chaque altitude tangente, dans cinq bandes d'absorption simultanément, avec une résolution spectrale de 0.14 nm. On ne traitera au LOA que trois de ces bandes (Tableau 4.1).

#### 4.1.3 Présentation succincte de l'algorithme d'inversion du LPCE

Développé par le LPCE pour l'inversion des mesures des épaisseurs optiques de AMON et de SALOMON. le principe de l'algorithme d'"inversion LPCE" est détaillé dans les articles de Renard et al. [1996; 2000]. Il se décompose en 2 étapes: la première consiste en une inversion spectrale conduisant à la séparation des espèces, qui fournit les quantités intégrées des constituants (gaz et aérosols) le long de la ligne de visée, et la deuxième, une inversion spatiale conduisant à la détermination des profils verticaux des concentrations moléculaires (ou densités moléculaires).

Le principe de l'inversion spectrale, grâce à une régression linéaire, est résumé ici de manière succincte. Pour des compléments sur cette méthode, on se réferera aux articles de Naudet et al. [1989], Renard et al. [1996; 1999; 2000].

Nous avons donc, pour chaque altitude, un spectre des épaisseurs optiques tangentes:

 La contribution de la diffusion de Rayleigh, dont les sections efficaces spectrales sont calculées en utilisant un profil de pression et de température [Bucholtz, 1995], est d'abord ôtée du spectre. Pour l'expérience ballon SALOMOI: du 22 Février 2000, les mesures de pression et de température ont été effectuées par une sonde embarquée à bord du ballon mais pour l'expérience AMON du 27 Février 1997, le vol de la sonde est indépendant de celui du ballon transportant l'instrument AMON.

 Les quantités intégrées des constituants sont calculées, l'une après l'autre, en utilisant une méthode de régression linéaire entre le spectre observé et le spectre calculé en utilisant les sections efficaces connues.

On soustrait la contribution de chaque constituant du signal et on recommence l'étape 2 pour les autres constituants.

- (a) Ozone : la contribution de l'ozone est ôtée en filtrant le signal par sa section efficace. Les sections efficaces utilisées par le LPCE sont celles de Brion et al. [1985] prises à la température de 293 K pouz les mesures AMON, et celles de Burrows et al. [1999] prises à la température de 223 K pour les mesures SALOMON.
- (b)  $NO_2$ : la quantité intégrée de  $NO_2$  est calculée par une méthode différentielle, en utilisant un filtre passe-haut permettant d'ôter la contribution des aérosols et de  $O_3$ , puis en utilisant les sections efficaces de  $NO_2$ . Les sections efficaces du  $NO_2$  utilisées dans l'inversion LPCE sont celles de Harder et al. [1997], prises à la température de 217 K pour les deux expériences AMON et SALOMON. D'après l'article de [Payan et al., 1999], l'équipe du LPCE a aussi utilisé les sections efficaces de Burrows et al. [1998] pour les mesures de AMON.
- (c)  $NO_3$ : le calcul de  $NO_3$  est restreint à la bande [645-680 nm], afin d'éviter une interférence avec une bande d'absorption de l'oxygène à 623 nm. Pour  $NO_3$ , le LPCE a utilisé les sections efficaces de Deters et Burrows [1998].
- 3. Aérosols: Un spectre résiduel est obtenu en soustrayant du spectre des épaisseurs optiques tangentes, les contributions de toutes les espèces  $(O_3, OClO, NO_2, NO_3 \dots)$ : ce spectre est attribué aux aérosols [Rivière et al., 2000]. La contribution des aérosols est alors calculée en ajustant ce spectre résiduel par une lei polynômiale du 2e degré [Renard et al., 2000]. Dans Berthet et al. [2001], le calcul des contributions des aérosols est amélioré en introduisant un polynôme du 3e degré (pour les mesures SALOMON).
- En soustrayant la contribution des aérosols du spectre résiduel, le résidu final doit être du même ordre de grandeur que le bruit de mesure.

Une fois obtenues les quantités intégrées des constituants, la dernière étape fait appel à une



FIG. 4.3 – Géométrie d'observation de AMON. L'altitude tangente y est dénotée par  $Z_t$ , l'altitude plafond du ballon par  $Z_b$ , l'altitude maximale de l'atmosphère par  $Z_{Max}$ .

méthode de pelure d'oignon modifiée, conduisant aux profils des concentrations moléculaires et du cœfficient d'extinction des aérosols [Renard et al., 1996; 2000; Naudet et al., 1989].

# 4.1.4 Adaptation de l'algorithme de SAGE III pour les mesures ballons

Le programme de modélisation des épaisseurs optiques de SAGE III a été adapté au cas des mesures ballons.

#### 4.1.4.1 Modélisation des mesures ballons

Cette étape de simulation est nécessaire pour tester si l'algorithme d'inversion adapté au cas "ballon" est capable de retrouver les puntités physiques initiales utilisées dans le modèle direct. On considère une atmosphère à couches concentriques et homogènes, d'une épaisseur de 0.5 km. Afin d'affiner le calcul des trajets géométriques, permettant aussi d'effectuer le calcul précis des épaisseurs optiques associées à la diffusion de Rayleigh  $\tau_{Rayleigh}$ , les trajets géométriques sont calculés depuis l'altitude tangente minimale mesurée par le ballon jusqu'à l'altitude maximale des couches atmosphériques  $Z_{Max}$ , fixée à 60 km : pour tenir compte de la réfraction du trajet lumineux à l'intérieur de chaque couche de 0.5 km, nous avons divisé ces couches en sous-couches d'épaisseur 125 m. Le trajet géométrique total s'obtient donc, couche par couche, par sommation des trajets géométriques élémentaires des sous-couches. Pour cela, une interpolation des mesures de pression et de température est effectuée pour obtenir leurs valeurs au milieu de chaque sous-couche. Les épaisseurs optiques sont obtenues,

avec un pas vertical de 0.5 km, en sommant les contributions des différentes espèces gazeuses à l'intérieur de chaque couche. Enfin, nous avons pris comme altitude tangente maximale des simulations l'altitude maximale du ballon  $Z_b$ .

En accord avec la géométrie présentée dans la Figure 4.3, le calcul des épaisseurs optiques s'obtient par sommation, du côté de l'étoile, sur toutes les couches atmosphériques jusqu'à l'altitude maximale  $Z_{Max}$ , et du côté du ballon, sur toutes les couches atmosphériques jusqu'au détecteur, à l'altitude  $Z_b$ . Le trajet géométrique  $\delta_{ij}$  est donc compté 1 fois pour les couches *au dessus* du ballon, et 2 fois pour les couches *au dessous* du ballon, ce qui est un peu différent du cas d'une géométrie d'observation satellitaire.

Nous avons modélisé les épaisseurs optiques tangentes des mesures ballon à partir d'une atmosphère a priori connue. Les profils climatologiques des densités moléculaires nocturnes  $(O_3, NO_2 \text{ ct } NO_3)$  et des cœfficients d'extinction des aérosols proviennent des mesures AMON effectuées à Aire sur l'Adour, le 16 Octobre 1993 [Renard et al., 1996]. Toutefois, la modélisation des épaisseurs optiques avec des données obtenues à moyenne latitude ne tient pas compte des conditions rencontrées dans le vortex polaire : elle sert à la validation de l'algorithme d'inversion.

Pour la modélisation du cœfficient d'extinction des aérosols, nous avons utilisé la loi d'Ângström (équation 3.11) avec le cœfficient d'Ângström fixé à 1 en utilisant le profil de cœfficient d'ex inction des aérosols pris à  $\lambda_{ref} = 532$  nm. Les valeurs de pression et de température sont mesurées par deux lancements d'une sonde PTU quelques heures avant le vol d'AMON du 27 février 1997. Deux sondes GPS (*Global Positioning System*), embarquées sur la même nacelle que l'instrument AMGN lors de ce vol, permettent le relèvement de la position (latitude, longitude et altitude) des mesures effectuées [Renard et al., 1996].

Dans la mesure où rien ne nous indique quelles sections efficaces d'absorption, parmi les banques de données, sont les plus appropriées, nous avons choisi de travailler avec les mêmes sections efficaces que dans les premières simulations des épaisseurs optiques de SAGE III. Il s'agit de données de Shettle et al. [1994] pour l'ozone, de Mérienne et al. [1995] pour  $NO_2$ , et de Deters et Burrows [1998] pour  $NO_3$ . Nous travaillons dans des régions spectrales définies par le tableau 4.2. Pour ne pas alourdir les calculs de l'inversion *dans les bandes résolues* avec un nombre trop important de sous-canaux, nous avons lissé le profil des épaisseurs optiques sur 5 pixels dans les 3 bandes spectrales de l'instrument AMON et acus n'avons sélectionné qu'un pixel sur 4 (Tableau 4.2).

Nom de la bande	Domaine	Nombre	Constituants	Longueur d'onde
	de longueur d'onde	de pixels	en jeu	centrale
*O3"	559 - 620 nm	110 pixels	O3 et Aérosol	575
"NO2"	409 - 475 nm	118 pixels	NO2, O3 et Aérosol	450
"NO3"	649 - 675 nm	195 pixels	NO3, O3 et Aérosol	675

#### TAB. 4.2 - Canaux (MON utilisés pour la modélisation

#### 4.1.4.2 Résultats des simulations

Comme nous nous attendions à ce que la qualité de l'inversion dépende de l'altitude du ballon, nous avons modélisé deux profils d'épaisseurs optiques avec un pas vertical de 0.5 km pour deux altitudes plafond différentes: 45 km et 31.5 km. La deuxième valeur correspond à l'altitude de plafond de AMON lors du vol étudié, la première correspond à une altitude qui nous paraissait a priori souhaitable pour avoir un profil d'ozone complet. L'étude a été menée dans le canal "O3" situé dans le domaine spectral [559-620 nm], avec 110 sub-canaux (Figure 4.4).

Inversion avec deux altitudes de plafond du ballon différentes Comme attendu, plus l'altitude du ballon est élévée, c'est à dire plus l'altitude tangente maximale est élévée, meilleur est le résultat de l'inversion (avec les plus petites erreurs systématiques). Pour le cas de l'altitude du ballon à 31.5 km, le profil de a nuité moléculaire de  $O_3$  ne devient bon qu'en dessous de 27 km. Le résultat est meilleur pour l'altitude de 45 km où on obtient un blais inférieur à 1 % au dessous de 30 km. Pour le profil du cœfficient d'extinction des aérosols, on constate des extrema dans l'allure des erreurs systématiques aux alentours de 34 km et de 26 km, correspondant à des valeurs très faibles du cœfficient d'extinction des aérosols. Dans l'ensemble, les erreurs systématiques sur les aérosols sont élevées au dessus de 25 km, où les



FIG. 4.4 – Résultats de l'inversion dans le canal O3 [559-620 nm]. A gauche : les profils de densité moléculaire de  $O_3$  et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_o = 587.5$  nm pour les deux différentes altitudes simulées du ballon, avec les barres d'erreurs correspondantes, conjointemes au profil initial qui a servi à la modélisation. A droite : le profil des différences relatives pour chaque cas.



FIG. 4.5 – Contributions relatives des cæfficients d'extinction des différents constituants à la longueur d'onde centrale  $\lambda_0 = 587.5$  nm du canal de Chappuis [559 - 620 nm].

contributions de  $Q_3$  sont suppérieures d'un facteur 4 à 8 à celles des aérosols. En dessous de 25 km, la contribution du cœfficient d'extinction des aérosols devient plus importante et nous obtenons alors une erreur systématique inférieure à 5% (Figure 4.5).

Inversion avec deux résolutions verticales différentes Le pas de l'échantillonnage vertical des épaisseurs optiques réelles de AMON est variable : les distances entre deux points tangents consécutifs varient de 0.1 à 1 km, avec une moyenne autour de 0.48 km. Elles sont plus resserrées pour les élévations proches de l'horizon de la nacelle que pour les élévations négatives (au dessous de -3 °). Pour pouvoir inverser ces mesures avec notre algorithme d'inversion dans les *bandes résolues*, nous devons discrétizer le profil des épaisseurs optiques avec un pas de valeur entière ou demi-entière. Une procédure d'interpolation est alors mise en place, avant la procédure de soustraction de la contribution de Rayleigh : cette interpolation s'effectue avec un pas fixé  $\Delta Z$ .

La discrétisation des mesures réelles pour obtenir des altitudes demi-entières, nécessaire pour la mise en œuvre de l'inversion, risque de supprimer des informations intéressantes entre deux couches. Afin de ne p s négliger ces informations, nous effectuerons systématiquement



FIG. 4.6 – Résultats de l'inversion dans le canal O3 [559-620]. A gauche : les profils de densité moléculaire de O<sub>3</sub> et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_o$  du centre de la bande (587.5 nm) pour deux pas d'échantillonnage verticaux différents : 0.5 et 1 km. Les barres d'erreurs correspondantes sont affichées, de même que le profil initial qui a servi à la modélisation. A droite : les profils des différences relatives pour chaque cas.

une moyenne glissante sur les épaisseurs optiques réelles avant la discrétisation :

$$\tau_{lisse}(\lambda, Z_{t}) = \frac{\tau(\lambda, Z_{i-1}) + \tau(\lambda, Z_{i}) + \tau(\lambda, Z_{i+1})}{3}$$
(4.1)

Dans cette équation,  $Z_t$  est la nouvelle altitude tangente, calculée par une moyenne glissante sur les altitudes impliquées dans le lissage :

$$Z_t = \frac{Z_{i-1} + Z_i + Z_{i+1}}{3} \tag{4.2}$$

Comme la résolution verticale des mesures AMON est variable, la valeur de  $Z_t$  est différente de  $Z_i$ . Une fois les altitudes tangentes  $Z_t$  recalées, les épaisseurs optiques lissées sont alors discrétisées avec un pas  $\Delta Z$ , grâce à une interpolation.

Nous avons étudié l'effet du choix du pas d'échantillonnage vertical sur l'inversion des mesures réelles. Soit un profil des épaisseurs optiques simulé, toujours dans le même canal "O3", avec un pas  $\Delta Z$  de 0.5 km. On inverse ce profil avec deux pas verticaux différents : 0.5 km et 1.0 km. On constate que les résultats de l'inversion sont meilleurs our le pas le plus faible (Figure 4.6). L'effet est notable sur le profil des cœfficients d'extinction des aérosols, dont l'orreur systématique diminue avec 10 pas d'échantillonnage vertical. Pour le profil de densité moléculaire de  $O_3$ , on observe peu de changement notable pour toute la gamme d'altitude.

Inversion dans les canaux "NO2" et "NO3" Nous avons transposé les améliorations du programme d'inversion du canal "O3" pour la simulation des mesures dans les canaux "NO2" et "NO3". Les figures 4.7 et 4.8 présentent les résultats de l'inversion menée, avec un pas d'échantillonnage vertical de 0.5 km. Comme attendu, le profil de densité moléculaire de  $O_3$  est moins bon dans ces autres canaux que dans le canal "O3", où le profil des erreurs systématiques est plus régulier, sans les *bosses* entre 16 et 22 km rencontrées dans les canaux "NO2" et "NO3". Le profil de densité moléculaire de  $NO_2$  est retrouvé avec une erreur systématique inférieure à 10% au dessous de 20 km. Le profil de  $NO_3$  est moins bien restitué. La présence du *pic* dans le profil des densités moléculaires de  $NO_3$  autour de 22 km, conduit à une contribution plus importante de  $NO_3$ , et l'erreur systématique pour les altitudes tangentes correspondantes tombe de 70% à moins de 10%.

#### 4.1.5 Application aux mesures réelles de AMON

Nous allons maintenant appliquer notre algorithme d'inversion modifié sur les mesures réelles de AMON.



FIG. 4.7 – Résultats de l'inversion dans le canal NO2 [409-475 nm]. A gauche : les profils de densité moléculaire de NO<sub>2</sub> et de O<sub>3</sub> et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_0 = 450$  nm, avec les barres d'erreurs correspondantes. A droite : les profils des différences relatives pour chaque cas.



FIG. 4.8 – Résultats de l'inversion dans le canal NO3 [649-675 nm]. A gauche : les profils de densité moléculaire de NO<sub>3</sub> et de O<sub>3</sub> et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_o = -5$  nm, avec les barres d'erreurs correspondantes. A droite : les profils des différences relatives pour chaque cas.

#### 4.1.5.1 Traitement de la scintillation

Les mesures des épaisseurs optiques d'une source ponctuelle (une étoile par exemple) après traversée des couches atmosphériques montrent des fluctuations d'intensité qui dépendent de la longueur d'onde : ce phénomène est appelé scintillation chromatique, il résulte principalement des fluctuations de la réfractivité<sup>1</sup> de la densité atmosphérique, produites par des turbulences à petite échelle [Renard et al., 2001]. De façon générale, la réfraction atmosphérique est responsable des fluctuations d'intensité (dilution et scintillation) des étoiles occultées par l'atmosphère terrestre, reçues par l'instrument [Dalaudier et al., 2001]. Nous allons présenter ici un bref aperçu des effets de réfraction atmosphériques pour mieux faire ressortir le phénomène de scintillation parmi ces effets. On se réferrera aux articles de [Dalaudier et al., 2001; Renard et al., 2001; Roscoe et al., 1994] pour une description détaillée des effets de la réfraction atmosphérique.

La réfraction a pour effet de courber les trajets lumineux vers le bas par rapport à la Terre : la courbure augmente avec les altitudes tangentes décroissantes de la ligne de visée. Cette courbure des trajets a été abordée dans le paragraphe 3.2.3 pour le calcul des trajets "géométriques" dans la modélisation.

De plus, l'atmosphère est un milieu dispersif pour la luminère visible. L'indice de réfraction, donné par la formule d'Edlen (Equation 2.10), est inversement proportionnel à la longueur d'onde. Par conséquent, dans le domaine du visible, les rayons bleus (autour de 450 nm) sont plus réfractés que les rouges (autour de 675 nm) lors de la traversée de l'atmosphère. En d'autres termes, l'altitude tangente de la ligne de visée dépend de la longueur d'onde [Dalaudier et al., 2001]. Plus le trajet à l'intérieur des couches atmosphériques est long, plus les rayons lumineux parallèles, venant d'une même direction, vont diverger au niveau de l'instrument.

Des effets de réfraction aléatoires s'ajoutent aux effets décrits ci-dessus : ce sont des fluctuations de réfractivité produites par les variations thermiques à petite échelle et par les fluctuations de densité de l'air (ondes de gravité, turbulences). Comme la scintillation chromatique est produite à une petite échelle, on peut considérer que cet effet de scintillation est transporté par les rayons lumineux réfractés [Renard et al., 2001].

<sup>1.</sup> La réfractivité est définie par N = n - 1 où n est l'indice de réfraction de l'air.

La correction de la scintillation chromatique est nécessaire et doit être effectuée avant l'inversion spectrale par un *lissage chromatique* sur les mesures des épaisseurs optiques de AMON. C'est à dire que nous "lissons" les données des épaisseurs optiques avec une moyenne glissante sur trois valeurs : cette méthode a été également employée par Renard et al. [1996] pour réduire l'effet de scintillation chromatique des mesures AMON.

$$n_{\text{lisse}}(\lambda, Z) = \frac{\tau(\lambda - \Delta\lambda, Z) + \tau(\lambda, Z) + \tau(\lambda + \Delta\lambda, Z)}{3}$$
(4.3)

Après ce lissage chromatique, nous effectuons des interpolations pour obtenir un profil des épaisseurs optiques avec un pas vertical constant. Le choix du pas vertical dépend des conditions avec lesquelles sont mesurées les altitudes tangentes: si la résolution verticale de 0.5 km est trop faible pour les basses altitudes, nous choisirons de prendre une résolution plus grande (1 km). Dans le cadre de l'inversion des mesures AMON, la résolution verticale est fixée égale à 0.5 km : le problème du choix de la résolution sera abordé dans la prochaine section avec les mesures SALOMON.

Cette correction est spécifique aux occultations stellaires. Dans le cas d'une occultation solaire ou lunaire (source étendue), la scintillation chromatique est négligeable.

#### 4.1.5.2 Résultats

Les sections efficaces sont choisies identiques à celles qui ont servi à l'inversion des mesures par le LPCE. Il s'agissait de celles de Brion et al. [1985] pour  $O_3$ , de celles de Harder et al. [1997] pour  $NO_2$  et de celles de Deters et Burrows [1998] pour  $NO_3$ . Comme les sections efficaces de Brion et al. sont prises à la température ambiante (298K), nous utiliserons également les sections efficaces de Burrows et al. [1999], plus récentes, prises à la température de 221 K (température stratosphérique moyenne), afin d'évaluer l'impact d'une incertitude sur les sections efficaces.

Le calcul du profil de densité moléculaire de  $O_3$  a été aisé (Figure 4.9), contrairement aux autres canaux où nous avons rencontré des difficultés : nous avons donc injecté les valeurs retrouvées du profil de densité moléculaire de  $O_3$  issu du canal "O3" dans l'inversion menée dans les autres canaux "NO2" et "NO3". On calcule les cœfficients d'absorption de  $O_3$  avec les sections efficaces de Burrows et al. [1999] dans les canaux "NO2" et "NO3", et on les retire du profil du cœfficient d'extinction total, corrigé de la diffusion Rayleigh :

$$\bar{\sigma}_{cor}("NO2") - \sigma_{O3}^{abs}("NO2") = \sigma_{aero}^{ext}("NO2") + \sigma_{NO2}^{abs}("NO2")$$
(4.4)



FIG. 4.9 – Résultats obtenus avec deux méthodes d'inversion ("LOA" et "LPCE") dans le canal O3 [559-620 nm]. A gauche: Profil vertical de O<sub>3</sub> et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_{\nu} = 575$  nm avec les barres d'erreurs correspondantes. A droite: Profils des différences relatives correspondantes.



FIG. 4.10 – Résultats obtenus avec deux méthodes d'inversion ("LOA" et "LPCE") dans le ranal NO2 [409-475 nm]. A gauche: Profil vertical de NO<sub>2</sub> et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_o = 450$  nm avec les barres d'erreurs correspondantes. A droite: Profils des différences relatives correspondantes.



FIG. 4.11 – Résultats obtenus avec deux méthodes d'inversion ("LOA" et "LPCE") dans le canal NOS [649-675 nm]. A gauche : Profil vertical de NO<sub>3</sub> et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_o = 675$  nm avec les barres d'erreurs correspondantes. A droite : Profils des différences relatives correspondantes.

$$\bar{\sigma}_{cor}("NO3") - \sigma_{O3}^{abs}("NO3") = \sigma_{aero}^{ext}("NO3") + \sigma_{NO3}^{abs}("NO3")$$
(4.5)

Il ne reste plus alors qu'à retrouver les profils de  $NO_2$ ,  $NO_3$  et des cœfficients d'extinction des aérosols à la longueur d'onde 450 et 675 nm afin de pouvoir les comparer avec les résultats du LPCE. Les résultats des deux méthodes d'inversion sont reportés sur les figures 4.9 à 4.11 avec les différences relatives correspondantes, calculées par

$$D_{rel} = 100 \cdot \frac{X_{LPCE} - X_{LOA}}{\frac{1}{2}(X_{LPCE} - X_{LOA})}$$
(4.6)

Nous rencontrons encore des problèmes de détermination des cœfficients d'extinction des aérosols à 450 nm, entre 21 et 22.5 km, où nous obtenons des valeurs négatives; nous avons donc laissé de côté les valeurs correspondantes de  $NO_2$ . Le profil de densité moléculaire  $NO_2$ passe d'un minimum à 22.5 km à un maximum à 24 km pour "LOA". Pour le profil "LPCE", le minimum du profil de  $NO_2$  passe par un minimum à 20 km avant de passer par le maximum à 24 km. Dans l'ensemble, les valeurs de  $NO_2$  pour l'inversion "LOA" sont inférieures à celles obtenues par l'inversion "LPCE" (Figure 4.10). Dans la même région d'altitude, on observe une brutale décroissance de la densité moléculaire de  $O_3$ , résultant de l'inversion dans les bandes résolues, entre 20 km et 22 km avec un deuxième pic à 24 km. Comparé à cette variation brutale révélant une destruction de  $O_3$  dans cette région, le profil du LPCE ne montre qu'un faible ressaut (Figure 4.9). Dans la figure 4.11, le profil de  $NO_3$  issu de l'inversion "LOA" est blen déterminé jusqu'aux altitudes inférieures à 16 km, comparé au profil issu de l'inversion "LPCE" qui décroit brutalement après le maximum autour de 21 km et s'arrête au dessus de 19 km. Dans cette région, le profil du cœfficient d'extinction des aérosols "LPCE" est obtenu jusqu'aux altitudes inférieures à 15 km (Figure 4.11).

#### 4.1.5.3 Variation spectrale des cœfficients d'extinction des aérosols

Le LPCE a obtenu un ensemble de profils des cœfficients d'extinction des aérosols, de 375 à 700 nm, avec un pas de 25 nm (Figure 4.12). Nous allons en tirer profit pour effectue*t* une analyse de la variation spectrale des cœfficients d'extinction des aérosols.

L'intérêt d'étudier ces variations spectrales est de permettre la détermination de la distribution en taille et des caractéristiques physiques des particules d'aérosols. Les dépendances spectrales des cœfficients d'extinction des aérosols peuvent être ajustées par un modèle de distribution monomodale (ou bi-modale) des aérosols issu de la théorie de Mie (voir explications dans le paragraphe 4.2.4). Dans notre approche, nous nous limitons seulement à l'étude



FIG. 4.12 – Profil des cæfficient d'extinction des aérosols AMON du 26 Février 1997 duns le domaine UV-visible de 375 à 700 nm obtenus par inversion LPCE [Rivière et al., 2000]



FIG. 4.13 – Variation spectrale des cœfficients d'extinction des aérosols des mesures AMON obtenus par les deux méthodes d'inversion "LOA" (traits pleins) et "LPCE" (en pointillés). En haut: dans la région d'altitude 21 à 22 km. En bas: dans la région d'altitude 23 à 24 km.

de la variation spectrale, afin de comparer les cœfficients d'extinction des aérosols obtenus par les deux algorithmes d'inversion, en nous limitant aux altitudes entre 21 et 24 km, où l'on a observé un comportement spectral très variable (Figures 4.9 à 4.11).

Ici, la dépendance spectrale des cœfficients d'extinction des aérosols est calculée en normalisant les profils des cœfficients d'extinction des aérosols par rapport au profil du cœfficient d'extinction à 450 nm. Le choix de 450 nm comme longueur d'onde de référence est justifié par le fait qu'elle est commune aux deux méthodes d'inversion différentes.

La figure 4.13 montre la comparaison des différentes variations spectrales entre 21 et 22 km, et entre 23 et 24 km. La détermination de la variation spectrale est insuffisante pour les mesures "LOA" car elle repose sur 3 profils de cœfficient d'extinction des aérosols (450, 575 et 675 nm), contrairement aux variations spectrales des mesures "LPCE" où les cœfficients d'extinction des aérosols sont au nombre de 13, de 375 à 675 nm (le profil à 700 nm n'est pas pris en compte car il présente des valeurs négatives). Néanmoins, la figure 4.13 nous donne un aperçu intéressant des aérosols dans la couche autour de 22 km : leur dépendance spectrale passe par un maximum pour les longueurs d'ondes 575 - 625 nm pour les altitudes, elle est à son minimum. Le pic obtenu par le LOA est de moitié inférieur au pic obtenu par le LPCE aux altitudes voisines dans la couche entre 22 et 23 km. D'après Rivière et al. [2000], l'hypothèse de la sphéricité des aérosols, condition nécessaire pour le calcul de la théorie de Mie, ne convient pas pour représenter ces particules d'aérosols entre 21 et 23 km.

D'après les conclusions de Rivière et al. [2000], une "forte scintillation chromatique" des épaisseurs optiques est observée dans la couche autour de 22 km : ce fait serait lié à la présence des particules solides d'aérosols d'acide sulfurique, trace d'une occurrence PSC quelques jours avant l'expérience.

#### 4.1.6 Conclusion des résultats préliminaires des mesures AMON

Les résultats préliminaires des simulations des épaisseurs optiques des mesures d'occultation "ballon" ont montré que leur inversion est plus délicate que dans le cas des mesures à partir d'un satellite. La performance de l'algorithme d'inversion dans les *bandes résolues* adapté aux mesures ballon est limitée par l'altitude de plafond du ballon. Il est donc intéressant, pour affiner les résultats, de mener une extrapolation du profil du cœfficient d'extinction

afin de corriger la contribution des couches situées au dessus du ballon : l'étude d'une telle extrapolation sera abordée dans la prochaine section, c'est à dire, seulement pour les mesures SALOMON.

La comparaison entre les profils issus de l'inversion "LPCE" et ceux issus de notre inversion est peu satisfaisante. On peut tenter de comprendre les différences entre les deux algorithmes, en étudiant les différentes méthodes d'inversion spectrales et d'inversion spatiale. Ce sujet mérite d'être développé de manière plus approfondie, ce qui n'a pas été fait jusqu'ici, faute de temps.

Comme les mesures sont fortement perturbées par la scintillation dans les canaux "NO2" et "NO3", on a introduit un lissage sur les longueurs d'onde (équation 4.3). Mais lorsqu'on "lisse" trop, c'est à dire lorsque qu'on effectue une moyenne glissante sur un trop grand nombre de valeurs, on risque de gommer les structures spectrales intéressantes des épaisseurs optiques : les structures particulières de la section efficace du  $NO_2$  risquent d'êtres perdues par le lissage.

Nous avons aussi un problème de discrétisation du profil des épaisseurs optiques réelles. Pour pouvoir inverser correctement, nous devons faire le choix d'un pas d'échantillonnage vertical de 0.5 km, du même ordre de grandeur que la résolutio ale moyenne des mesures réelles AMON. Afin de ne pas négliger les informations intermantes "entre les couches" et pour tenir compte de l'incertitude sur l'altitude tangente des mesures, nous avons introduit un lissage (en altitude) sur les épaisseurs optiques, par moyenne glissante sur 3 valeurs (équation 4.1). Les premiers résultats montrent une différence notable entre les profils issus de deux algorithmes différents appliqués aux mêmes données expérimentales, pour des paramètres quasiment identiques : mêmes sections efficaces, mêmes lissages chromatique ...

# 4.2 Application aux mesures SALOMON

# 4.2.1 Présentation de l'expérience SALOMON

Les premiers résultats de AMON ont démontré l'importance de la famille des composés chlorés et bromés dans les réactions hétérogènes [Renard et al., 2000]. Une meilleure compréhension de ces réactions nécessite donc des mesures nocturnes à différentes saisons et latitudes. Le flux lumineux reçu par l'étoile est faible et nécessite un système de pointage de précision, donc un lourd système instrumental, qui limite les opportunités de lancement de AMON à cause de l'utilisation de grands ballons stratosphériques (100 000  $m^3$  ou plus). Il est apparu nécessaire de développer un nouvel instrument d'occultation lunaire appellé SALOMON (*Spectroscopie d'Absorption Lunaire pour l'Observation des Minoritaires Ozone et Nox*). Cet instrument léger, d'un poids total de 80 kg, peut être embarqué sous des ballons stratosphériques de petite taille [Renard et al., 1999; 2000].

L'observation de la Lune offre de nombreux avantages, notamment un plus grand rapport signal au bruit comparé aux étoiles. Les quartiers de Lune permettent un flux entrant dans le système optique de SALOMON suffisant pour permettre des conditions d'obervations plusieurs fois par mois. Ces occasions se présentent 10 jours en moyenne chaque mois [Renard et al., 2000]. Les périodes de pleine Lune ne sont pas comprises car le lever et le coucher de la Lune sont trop proches du lever ou du coucher du Soleit [Renard et al., 2000]. L'utilisation de la Lune comme source lumineuse demande un système de pointage moins performant que celui de AMON. Son utilisation fréquente à n'importe quelle saison ou latitude est possible. Les mesures de SALOMON par la méthode d'occultation lunaire permettent d'accroître nos connaissances sur la chimie stratosphérique des différentes espèces moléculaires minoritaires nocturnes (notamment  $NO_2$ ,  $NO_3$  et OClO).

L'instrument SALOMON est constitué d'un système de visée, qui homogénéise le flux lunaire reçu, éliminant les variations liées à l'albédo lunaire [Renard et al., 2000]. Le spectromètre, le détecteur et la chaîne d'acquisition sont identiques à ceux de SAOZ (voir Tableau 2.1). Une description détaillée de l'instrument SALOMON est disponible dans les articles de Renard et al. [1999; 2000]. La résolution du système de pointage est de 30 secondes d'arc lorsque le ballon est au plafond [Renard et al., 2000]. L'acquisition du spectre est identique à celle de AMON et elle s'effectue avec un pas temporel constant d'une minute : les altitudes tangentes de la ligne de visée sont obtenues avec une résolution de 1 km pour les petites élévations de la Lune, et de 3 km pour les élévations négatives inférieures à - 3 °. Enfin, l'utilisation du spectre d'absorption de la Lune (raies de Ca, H et Na) permet de calibrer l'échelle des longueurs d'ondes et d'obtenir des mesures des épaisseurs optiques avec une résolution spectrale de 0.01 nm.

#### 4.2.2 Campagne de mesures SALOMON du 22 Février 2000

Le vol de l'instrument SALOMON, dont l'inversion des épaisseurs optiques est le sujet de ce chapitre, a eu lieu le 22 Février 2000 à partir de Kiruna, à la limite du vortex polaire



FIG. 4.14 – Vol SALOMON du 22 Février 2000. En haut : Allure de l'altitude tangente et de l'altitude du ballon. En bas : Allure de la distance zénithale de la Lune durant le vol
[Berthet et al., 2000]. Les figures 4.14 donnent les caractéristiques du vol, en fonction du temps TU; altitude tangente, altitude du ballon et distance zénithale de la lune (fonction MZA, *Moon Zenith Angle*). Le ballon est stabilisé au plafond à une altitude moyenne de 30 km. Comparé aux mesures AMON, la gamme des altitudes tangentes de SALOMON est réduite car le ballon est stabilisé à une altitude plus basse : l'altitude tangente maximale est de 30 km, l'altitude tangente minimale de 17.35 km.

Comme l'acquisition du spectre est effectuée avec un pas temporel constant, le pas spatial entre deux point tangents consécutifs est plus resserré pour les plus hautes élévations que pour les basses. Le pas vertical des mesures est variable de 0.1 km, pour les altitudes suérieures à 26 km, à 1 km à plus faible altitude tangente (Figure 4.14). Durant ce vol, 30 spectres ont été enregistrés dans le domaine spectral [350-700 nm], avec un pas spectral moyen de 0.35 nm, pour chaque altitude tangente. La normalisation du profil des épaisseurs optiques est obtenue en calculant la moyenne des 5 spectres enregistrés à la distance zénithale lunaire minimum fournissant ainsi un spectre de référence "hors atmosphère". Ce travail a été entièrement effectué par l'équipe du LPCE.

Il a été constaté que, durant le vol de SALOMON du 22 Février, le gradient de température rencontré par la ligne de visée de l'instrument pendant la mesure des épaisseurs optiques est élevé. La figure 4.15 caractérise l'état dynamique de l'atmosphère pendant l'expérience SALOMON nportement dynamique atmosphérique peut être diagnostiqué par le champ de vorticité potentielle, que l'on appelle PV, à toutes les altitudes. Cette quantité PV est considérée comme un traceur passif des mouvements des masses d'air et permet d'étudier les transports méridionaux vortex / latitudes moyennes [Hauchecorne, 1998]. Cette analyse PV effectuée par le LPCE qu'une partie de la ligne de visée est située à l'intérieur du vortex, l'autre partie à l'extérieur [Berthet et al., 2000]. Comme les gradients de températures rencontrés au cours du vol étaient très importants, l'hypothèse des couches atmosphériques homogènes n'est plus rigoureusement valable : pour l'application de la procédure d'inversion, nous allons quand même supposer que ces couches sont homogènes tout en sachant que c'est une première approximation.



FIG. 4.15 – Analyse du champ PV (Vorticité Potentielle) le 22 Février 2000 au dessus de Kiruna [Source: G. Berthet]: le déplacement du ballon à bord duquel est embarqué SALOMON y est reporté à l'aide des triangles blancs et des croix.

Nom	Domaine de	Nombre	Longueur	Résolution	Espèces	Espèces
de la bande	longueur d'onde	de pixels	centrale $\lambda_o$	(nm)	cibles	interférentes
"NO2"	409 - 473 nm	169 pixels	440 et 450 nm	~ 0.35 nm	NO2, aérosol	<i>O</i> 3
"O3"	559 - 620 nm	180 pixels	585.5 et 600 nm	~ 0.35 nm	O3, aérosol	
"NO3"	649 - 675 ліп	71 pixels	660 nm	~ 0.35 nm	NO3, aérosol	<i>O</i> 3
"OCLO"	380 - 400 nm	36 pixels	400 nm	~ 0.35 nm	OCIO, aérosol	$O_3, NO_2$

#### TAB. 4.3 - Canaux SALOMON en jeu

# 4.2.3 Résultats

#### 4.2.3.1 Application aux mesures réelles de SALOMON

L'algorithme d'inversion dans les bandes résolues a été adapté aux mesures ballon SA-LOMON. Les sections efficaces sont choisies identiques à celles qui ont servi à l'inversion des mesures par le LPCE. Il s'agissait de Burrows et al. [1999] pour  $O_3$ , de Harder et al. [1997] pour  $NO_2$ , de Deters et Burrows [1998] pour  $NO_3$  et de Wahner et al. [1987] pour OClO. Comme l'utilisation des sections efficaces de Wahner et al. dans la détermination du profil du OClO ne conduit pas à des solutions positives, nous avons utilisé les sections efficaces de Kro.aminga et al. [1999], plus récentes, prises à la température de 213 K.

Afin de pouvoir travailler avec les mesures SALOMON, nous avons divisé le spectre des épaisseurs optiques dans 4 bandes spectrales définies dans le tableau 4.3. Les spectres des épaisseurs optiques sont lissés par une moyenne glissante sur trois valeurs (Equation 4.3). Enfin, nous avons effectué une interpolation sur le profil des épaisseurs optiques, avec deux pas verticaux constants de 1 et 2 km, à cause de la variation de la résolution verticale des mesures SALOMON au cours de l'occultation lunaire.

Dans l'inversion, nous avons pris en compte une incertitude sur les épaisseurs optiques (3%) et sur les trajets géométriques (1%) dans les canaux, à l'exception du canal "OCLO", où nous avons mené une inversion *simple*, sans les incertitudes. Cette condition s'est revelée nécessaire pour pouvoir déterminer des quantités faibles et positives de la densité moléculaire *OCHO* dans ce canal. Nos résultats (notation "LOA") sont reportés avec les résultats de l'inversion menée par le LPCE (notation "LPCE") sur les figures 4.16 à 4.19.

Résultats des canaux canal "NO2" et "NO3" Le calcul du profil de densité moléculaire de  $O_3$  a été aisé (Figure 4.16), contrairement aux autres canaux où nous avons rencontré des difficultés : nous avons donc injecté les valeurs retrouvées du profil de densité moléculaire

de  $O_3$  issu du canal "O3" dans l'inversion menée dans les autres canaux "NO2" et "NO3". Nous calculons les cœfficients d'absorption de  $O_3$  avec les sections efficaces de Burrows et al. [1999] dans les canaux "NO2" et "NO3", et nous les retirons du profil des cœfficients d'extinction total, corrigé de la diffusion Rayleigh:

$$\bar{\sigma}_{cor}("NO2") - \sigma_{O3}^{abs}("NO2") = \sigma_{acro}^{ext}("NO2") + \sigma_{NO2}^{abs}("NO2")$$

$$(4.7)$$

$$\bar{\sigma}_{cor}("NO3") - \sigma_{O3}^{abs}("NO3") = \sigma_{aero}^{ext}("NO3") + \sigma_{NO3}^{abs}("NO3")$$
(4.8)

Il reste alors à retrouver les profils de  $NO_2$ ,  $NO_3$  et des cœfficients d'extinction des aérosols à la longueur d'onde centrale située au milieu de chaque canal : ainsi, dans les canaux "NO2" et "NO3", ces valeurs sont respectivement égales à 440 et à 660 nm. Les résultats des deux méthodes d'inversion sont reportés sur les figures 4.17 à 4.18 avec les différences relatives correspondantes (Equation 4.6).

Résultats du canal "OCLO" Pour compléter les résultats des canaux "NO2", "O3" et "NO3", nous allons maintenant examiner l'inversion des épaisseurs optiques dans le canal "OCLO" (Tableau 4.3) pour en déduire, entre autres, le profil vertical de dioxyde de chlore OClO. Nous avons choisi le domaine spectral [387 - 400 nm] (36 pixels) de résolution spectrale 0.3 nm comme domaine d'analyse car les données des sections efficaces de l' $O_3$  sont très faibles, voire même non disponibles, dans l'intervalle 360 - 390 nm (voir Figure 2.2).

Des difficultés d'inversion nous ont amené à choisir les sections efficaces de Kromminga et al. [1999], les résultats obtenus avec celles de Wahner et al. [1987] n'ont donné que des solutions négatives. De plus, les contributions de  $O_3$  et de  $NO_2$  étant très faibles, le calcul simultané de ces deux densités moléculaires parasite l'obtention de la densité moléculaire de OCIO.

Afin de pallier ce problème, nous avons procédé à deux inversions différentes.

Nous supposons tout d'abord que la contribution du  $NO_2$  est négligeable et nous ne considérons dans le canal "OCLO" que deux inconnues à quantifier : OCIO et le cœfficient d'extinction des aérosols. Tout en sachant que ce choix est peut être discutable, nous injectons directement dans le processus d'inversion les valeurs retrouvées pour  $O_3$  dans le canal correspondant : le cœfficient d'absorption de  $O_3$  avec les sections efficaces de Burrows et al. [1999] est retiré du profil des cœfficients d'extinction corrigé de la diffusion Rayleigh :

$$\bar{\sigma}_{cor}("OCIO") - d_{O_3}\sigma_{mol}^{O_3}("OCIO") = \sigma_{aero}^{ext}("OCIO") + d_{OCIO}\sigma_{mol}^{OCIO}$$
(4.9)



FIG. 4.16 – Résultats obtenus par les deux méthodes d'inversion ("LOA" et "LPCE") dans le canal "O3" [559-620 nm] avec les barres d'erreurs correspondantes. En haut : Profils de densité moléculaire de O3 (gauche) avec, à droite, le profil de différence relative obtenu par l'équation 4.6. En bas : Profil du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_o = 585.5$  nm (inversion "LOA") et à  $\lambda_o = 575$  et 500 m (inversion "LPCE").







FIG. 4.18 – Résultats obtenus par les deux méthodes d'inversion ("LOA" et "LPCE") dans le canal "NO3" [649-675 nm] avec les barres d'erreurs correspondantes. En haut : Profils de densité moléculaire de NO3 (gauche) av+c, à droite, le profil de différence relative obtenu par l'équation 4.6. En bas : Profil du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_o = 660$  nm (inversion "LOA") et  $\lambda_o = 650$  nm (inversion "LPCE").



FIG. 4.19 – Résultcis obtenus par les deux méthodes d'inversion ("LOA" et "LPCE") dans le canal "OCLO" [987-400 nm]. En haut : Profils de densité moléculaire de OClO (gauche) avec à droite, le profil de différence relative obtenu par l'équation 4.6. En bas : Profil du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_0 = 400$  nm (inversion "LOA") et à  $\lambda_0 = 400$  nm (inversion "LOA").

De la même manière, en supposant que la contribution de l'ozone est négligeable, nous injectons les valeurs retrouvées du profil de densité moléculaire de  $NO_2$  issu du canal "NO2" dans l'inversion. Le coefficient d'absorption du  $NO_2$  calculé avec les sections efficares de Harder et al. [1997] est ôté du profil du coefficient d'extinction total, corrigé de la diffusion Rayleigh :

$$\tilde{\sigma}_{eor}("OClO") - d_{NO2}\sigma_{mol}^{NO2}("OClO") = \sigma_{acro}^{ext}("OClO") + d_{OCiO}\sigma_{mol}^{OClO}$$
(4.10)

Les profils de OClO et du coefficient d'extinction des aérosols à 460 nm sont tracés sur la figure 4.19. Nous avons choisi la longueur d'onde centrale  $\lambda_o$  à 400 nm afin de pouvoir faire des comparaisons avec les résulats de l'inversion "LPCE" (Figure 4.19).

Sans faire ces approximations, nous n'obtiendrions pas de solutions positives pour les valeurs de densité moléculaire de OCIO, c'est à dire que le seuil de "détection" de l'espèce OCIO par inversion dans les *bandes résolues* n'aurait pas été atteint.

L'équipe du LPCE a mené une étude comparative avec un modèle de chimie straiosphérique, le modèle Langrangien MiPLaSMO (*Microphysical and Photochemical Langrangian Stratospheric Model of Ozone*), pour les espèces moléculaires  $NO_2$  et  $OC_*O$  [Rivière et al., 2000; Berthet et al., 2000]. Nous avons retracé les données de Berthet et al. [2000] (Figure 4.20) en comparaison avec les nôtres. La comparaison des profils verticaux expérimentaux des densités moléculaires de  $NO_2$  montre un assez bon accord avec la modélisation. Quant au profil de OCIO, nous avons reporté sur la figure les profils obtenus avec les deux hypothèses: les valeurs de OCIO issues de l'inversion "LPCE" sont supérieures à celles du modèle MiPLaSMO. Les densités de OCIO obtenues avec notre inversion sont un peu éparpillées à droite et à gauche de la courbe du modèle MiPLaSMO...

Cœfficients d'extinction des aérosols Le LPCE a obtenu un ensemble de profils des rœfficients d'extinction des aérosols, de 375 à 700 nm, avec un pas de 25 nm (Figure 4.21). Or ces valeurs de longueur d'onde ne correspondent pas aux valeurs du "milieu" des canaux que nous avons définis dans le tableau 4.3. Pour pouvoir comparer nos résultate avec ceux du LPCE, nous avons inversé dans le canal "O3" et "NO2" en fixant une nouvelle valeur de la longueur d'onde représentative de chaque canal : elles sont prises égales à 600 nm pour le canal "O3" et à 450 nm pour le canal "NO2" (ce sera détaillé plus loin dans le paragraphe 4.2.4).



FIG. 4.20 – En haut: Profil vertical de  $NO_2$  en ppbv. Les  $\triangle$  proviennent de l'inversion "LPCE", et les • résultent de l'inversion dans les "bandes résolues". Les résultats du modèle MiPLaSMO sont représentés par une ligne continue et des carrés. En bas: Profil vertical du OCIO en pptv.



FIG. 4.21 – Profil des cœfficients d'extinction des aérosols SALOMON du 22 Février 2000 dans le domaine UV-visible. En haut: obtenus par inversion LPCE de 375 à 700 nm avec un pas de 25 nm [Source: J.-B. Renard, LPCE]. En bas: obtenus par inversion dans les bandes résolues de 400 à 660 nm.

# 4.2.3.2 Analyse avec des simulations d'épaisseurs optiques

Inver 'on avec utilisation d'une extrapolation Pour corriger la perte de précision dûe à la limitation de l'altitude tangente me simale (Paragraphe 4.1.4.2), nous avons utilisé le cœfficient d'extinction corrigé de la diffusion de Rayleigh, de la dernière couche atmosphérique atin d'obtenir une information globale sur les couches situées au dessus du ballon jusqu'au sommet de l'atmosphère. Nous corrigeons donc la contribution de ces couches supérieures dans la procédure d'inversion spatiale. Pour calculer le profil des cœfficients d'extinction  $\bar{\sigma}_{cor}(\lambda, Z)$ , nous réalisons d'abord une première inversion spatiale. Nous estimons <sup>1</sup>... paramètres : altitude de référence  $Z_{ref}$  et échelle de hauteur H. Il est préférable de ch . . . paramètre  $Z_{ref}$  en dessous de l'altitude tangente maximale  $Zt_{max}$  pour éviter que l'extrapolation soit faussée par les valeurs erronnées des cœfficients. Le cœfficient d'extinction est ensuite extrapolé en suivant une loi exponentielle :

$$\bar{\sigma}_{cor}^{extrap}(\lambda, Z \ge Z_{ref}) = \bar{\sigma}_{cor}(\lambda, Z_{ref}) \exp\left[-\frac{Z - Z_{ref}}{H}\right]$$
(4.11)

Une fois l'extrapolation pour les alti udes  $Z \ge Z_{ref}$  effectuée, on effectue une deuxième inversion spatiale avec les nouvelles valeurs de  $\bar{\sigma}_{cor}^{extrap}(\lambda, Z)$  avant de passer à l'inversion spectrale. Afin de déterminer  $Z_{ref}$  et l'échelle de hauteur H, des tests ont été effectués: nous avons finalement opté pour les valeurs  $Z_{ref} = Zt_{max} - 6$  km et H = 3 km.

Les résultats de l'inversion obtenus, pour une altitude du ballon de 30 km, sont reportés sur la figure 4.22, l'un "sans extrapolation" donc avec un profil limité à l'altitude de 30 km et l'autre où u e extrapolation est effectuée jusqu'à l'altitude de 60 km. Les premiers résultats montrent une amélioration de 2 - 10 % de l'erreur systématique pour le profil de densité moléculaire de  $O_3$ . La même amélioration est obtenue pour les cœfficients d'extinction des aérosols sur toutes les altitudes, sauf pour les altitudes supérieures à 26 km. Au dessous de 20 km, le profil obtenu pour les aérosols par l'inversion spectrale avec le profil  $\sigma_{cor}^{extrap}(\lambda, Z)$ extrapolé est plus régulier que ceux obtenus par inversion spectrale avec le profil de  $\bar{\sigma}_{cor}(\lambda, Z)$ : les extrema dans les différences relatives sont lissés.

Dans la suite, nous avons choisi de ne pas effectuer d'extrapolation des cœfficients d'extinction. En effet, l'estimation de l'échelle de hauteur H se fait de manière assez empirique : il semble que ce choix puisse ne pas être judicieux qu'il affecte de façon significative l'extrapolation dans les couches supérieures, lesquelles participent de manière non négligeable dans l'inversion spatiale dans les couches inférieures. En fait, nous n'avons aucune connaissance a priori des cœfficients d'extinction des couches au dessus du ballon et nous sommes donc conscients que les hypothèses effectuées peuvent être à double tranchant: si l'extrapolation



FIG. 4.22 — Résultats de l'inversion dans le canal O3 [559-620]. A gauche : les profils de densité moléculaire de  $O_3$  et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_0 = 587.5$  nm, avec les barres d'erreurs correspondantes, pour le cas normal et pour le cas où une extrapolation est appliquée pour le profil du cœfficient d'extinction obtenu après une 1<sup>ere</sup> inversion spatiale. A droite : les profils des différences relatives pour chaque cas.

est bonne, on améliore les profils dans les couches inférieures, mais lorsqu'elle est inexacte, le remède peut être pire que le mal.

Impact du choix des sections efficaces sur la qualité de l'inversion Le choix des sections efficaces moléculaires est a priori important pour la qualité de l'inversion. Nom avons à notre disposition d'autres données de sections efficaces: Shettle et Anderson [1994] pour  $O_3$  et Vandaele et al. [1998] pour  $NO_2$ . Comme rien ne nous indique laquelle de ces sections efficaces est la plus appropriée, nous avons étudié l'influence des sections efficaces sur les simulations. Nous avons simulé les profils des épaisseurs optiques pour une altitude ballon de 30 km, avec les sections efficaces de "Shettle". Nous avons pris des profils climatologiques de  $O_3$ , de  $NO_2$  et du cœfficient d'extinction des aérosols pris à la longueur d'onde de référence  $\lambda_{ref} = 442$  nm, tirés des données de POAM III.

Ensuite, deux inversions sont menées sur les profils des épaisseurs optiques simulées : l'une est menée en utilisant les sections efficaces de "Shettle" [Shettle et Anderson, 1994] et l'autre avec les sections efficaces de "E arrows" [Burrows et al., 1999]. Les lifférences relatives entre ces deux jeux de sections efficaces sont de l'ordre de 4% dans le domaine spectral [559 - 620 nm] (Figure 4.24). Les résultats (Figure 4.23) montrent les profils retrouvés pour la densité moléculaire de  $O_3$  et pour le coefficient d'extinction des aérosols à la longueur d'onde centrale  $\lambda_{\alpha} = 587.5$  nm, l'un par inversion avec les sections efficaces de "Shettle" et l'autre avec les sections efficaces de "Burrows". Cette figure montre qu'il y - peu d'influence du choix des sections efficaces sur le profil de la densité moléculaire de  $O_3$  tandis que cette influence est très importante pour le profil du coefficient d'extinction des aérosols: les différences relatives des solutions de l'inversion menée avec les sections efficaces de "Burrows" donnent des erreurs systématiques de 20 - 40 %, tandis que ceux utilisant les sections efficaces de "Shettle", donnent des erreurs systématiques inférieures à 1% avec un pic à 15% autour de 13 km.

Ce résultat est plutôt attendu puisque la simulation est effectuée avec des spectres d'entrée de "Shettle" : la différence des sections efficaces influe sur la qualité de restitution des profils des cœfficients d'extinction des aérosols.

La même étude a été réalisée dans le canal "NO2", c'est à dire le domaine spectral [409 - 473 nm]. Nous avons simulé les profils des épaisseurs optiques pour le même modèle d'atmosphère que précedemment : pour le calcul des contributions de  $NO_2$  et de  $O_3$ , nous avons utilisé respectivement les sections efficaces de "Harder" [Harder et al., 1997] et celles



FIG. 4.23 – Résultats de l'inversion dans le canal O3 [559 - 620 nm]. A gauche : les profils de densité moléculaire de O<sub>3</sub> et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_0 = 587.5$  nm. Les deux profils retrouvés, l'un obtenu avec les sections efficaces de "Shettle" et l'autre avec celles de "Burrows", sont comparés avec le profil initial qui a servi à la modélisation. A droite : les profils des différences relatives pour chaque cas.



FIG. 4.24 – Différence relative entre les sections efficaces de Shettle et al. [1994] et celles de Burrows et al. [1999] obtenues en calculant 100\*("Shettle"-"Burrows")/(("Shettle"+"Burrows")/2) dans le domaine spectral [559 - 620 nm].



FIG. 4.25 - Résultats de l'inversion dans le canal NO2 [409 - 473 nm]. A gauche : les profils de densité me alaire de NO<sub>2</sub> et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_o = 440$  nm. Les deux profils retrouvés, l'un obtenu avec les sections efficaces de "Harder" et l'autre avec celles de "Vandaele", sont comparés avec le profil initial qui a servi à la modélisation. A droite : les profils des différences relatives pour chaque cas.



FIG. 4.26 – Différence relative entre les sections efficaces de Harder et al. [1997] et celles de Vandaele et al. [1998] obtenues en calculant 100\*("Harder"-"Vandasle")/(("Harder"+"Vandaele")/2) dans le domaine spectral [409 - 473 nm].

de "Burrows" [Burrows et al., 1999]. Ensuite, nous avons mené deux inversions sur les profils des épaisseurs optiques simulées, en utilisant les sections efficaces de "Harder" [Harder et al., 1997] et les sections efficaces de "Vandaele" [Vandaele et al., 1998]. Les différences relatives entre ces deux jeux de données sont de l'ordre de 5 à 20%, avec des maxima à 30% dans le domaine spectral [409 - 473 nm] (Figure 4.26). Les résultats (Figure 4.25) montrent les profils retrouvés pour la densité moléculaire de  $NO_2$  et pour le coefficient d'extinction des aérosols à la longueur d'onde centrale  $\lambda_o = 440$  nm, l'un par inversion avec les sections efficaces de "Harder" et l'autre avec les sections efficaces de "Vandaele". Le profil de  $NO_2$  obtenu par inversion avec la section efficace de Vandaele et al. [1998], différente de celle qui a servi à la modélisation des épaisseurs optiques, présente un biais presque constant d'environ 10%, alors que le profil calculé en utilisant la section efficace de "Harder" dans l'inversion est retrouvé avec une erreur systématique de 2 - 5 %. De même, le profil du coefficient d'extinction de aérosols, par inversion avec les sections efficaces de "Vandaele", est retrouvé avec une erreur systématique plus grande, comprise entre 2 et 20 % par ra<sub>x</sub> port au profil obtenu en utilisant les sections efficaces de "Harder" (Figure 4.25). L'écart entre les deux profils augmente avec l'altitude du fait de la diminution de la contribution relative des aérosols.

L'incertitude sur les sections efficaces a donc un impact important sur la détermination du profil du coefficient d'extinction des aérosols: plus la contribution des aérosols est faible, plus l'écart augmente entre le profil obtenu avec la "bonne" section efficace et l'autre avec la "mauvaise" section efficace. Pour les densités moléculaires, l'incidence est moins importante pour  $O_3$  que pour  $NO_2$ : les différences relatives sont plus importantes entre les sections efficaces de  $NO_2$  que pour celles de  $O_3$  utilisées dans l'inversion (Figures 4.24 et 4.26),

Cette simulation nous a permis de vérifier la sensibilité de l'algorithme d'inversion dans les bandes résolues au choix de la section efficace. Cette étude, jusqu'ici menée sur des simulations, va être transposée aux mesures réelles de SALOMON dans la prochaine section.

#### 4.2.3.3 Influence des paramètres

Dans ce paragraphe, une analyse poussée des performances et des limites de l'algorithme d'inversion est menée avec les mesures réelles, contrairement aux analyses effectuées sur les mesures simulées dans la partie précédente. Nous effectuons une étude de l'influence de chaque paramètre (sections efficaces, choix du domaine, lissage ...) sur les résultats obtenus. Sauf mention contraire, l'inversion dans les *bandes résolues* est limitée aux canaux "O3" et "NO2" (Tableau 4.3). Un lissage spectral sur les épaisseurs optiques (équation 4.3) par moyenne glissante sur 3 valeurs est effectué, dans les 2 canaux. Dans l'inversion, l'incertitude sur les épaisseurs optiques (3%) et l'incertitude sur les trajets géométriques (1%) sont prises en compte dans le calcul des barres d'erreur.

L'analyse est complétée par un calcul des différences relatives: lorsque nous avons affaire à deux grandeurs physiques  $\hat{\beta}_1(i)$  et  $\hat{\beta}_2(i)$ , la différence relative (en %) est donnée par l'équation:

$$\mathbf{D}_{rel} = 100 \cdot \frac{\hat{\beta}_1(i) - \hat{\beta}_2(i)}{\frac{1}{2}(\hat{\beta}_1(i) + \hat{\beta}_2(i))}$$
(4.12)

Lorsque nous voulons mener une comparaison sur un ensemble de plus de deux grandeurs physiques  $\hat{\beta}_k(i)$ , avec k variant de 1 à N, nous calculons la différence relative  $\mathbf{D}_{rel}(p)$  de chacune des grandeurs individuelles  $\hat{\beta}_p(i)$  avec la moyenne de toutes les grandeurs physiques, comme suit :

$$\mathbf{D}_{rel}(p) = 100 \cdot \frac{\frac{1}{N} \sum_{k=1}^{N} \hat{\beta}_k(i) - \hat{\beta}_p(i)}{\frac{1}{N} \sum_{k=1}^{N} \hat{\beta}_k(i)}$$
(4.13)

4

Influence du lissage sur les épaisseurs optiques Un lissage supplémentaire par moyenne glissante sur les altitudes, avant discrétisation, est-il nécessaire? Le pas de la résolution verticale des épaisseurs optiques réelles de SALOMON est variable et dépend de l'angle d'élévation de la Lune par rapport à l'horizon de la nacelle : les distances entre deux points tangents consécutifs varient de 0.01 à 1.3 km, avec une moyenne autour de 0.5 km.

Dans la suite, pour la discrétisation du profil des épaisseurs optiques, nous choisissons une résolution spatiale de 1 km. Dans [Bazureau et al., 2000], nous avons choisi de présenter les résultats de l'inversion des épaisseurs optiques de SALOMON, avec deux pas verticaux de 1 et 2 km, l'un correspondant à des faibles distances zénithales de la Lune, et l'autre, à une des distances zénithales plus grandes.

Dans le canal "O3", nous avons étudié l'influence du lissage (en altitude) sur des épaisseurs optiques réelles. Nous avons comparé deux cas de figure, le premier "sans lissage", servant de référence, et le deuxième, où nous avons introduit un lissage par moyenne glissante sur trois valeurs (équation 4.1). Les profils de densité moléculaire de  $O_3$  et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda = 585.5$  nm sont alors tracés avec leur différence relative (Figure 4.27). L'analyse montre que si la différence relative entre les deux profils de densité moléculaire pour  $O_3$ est très faible (inférieur à 0.5 %), la différence relative sur les aérosols présente des valeurs entre 1% et 8%. Cette différence relative diminue avec l'importance de la contribution des aérosols.

La même étude est menée dans le canal "NO2", où trois cas de figures se présentent: les deux premiers cas reprennent la même démarche que pour le canal "O3" avec un cas "sans lissage" servant *de référence* et un cas résultant d'un lissage par moyenne glissante sur 3 valeurs (équation 4.1). Le troisième cas résulte du lissage des épaisseurs optiques par une moyenne glissante sur 5 valeurs :

$$\gamma_{isse}(\lambda, Z) = \frac{\tau(\lambda, Z - 2\Delta Z) + \tau(\lambda, Z - \Delta Z) + \tau(\lambda, Z) + \tau(\lambda, Z + \Delta Z) + \tau(\lambda, Z + 2\Delta Z)}{5}$$

$$(4.14)$$

Les profils de densités moléculaires de  $O_3$  (issu du canal "NO2") et de  $NO_2$  et du cœfficient d'extinction des aérosols à 450 nm sont tracés dans la figure 4.28 avec leur différence relative par rapport à la référence "sans lissage" (équation 4.12). Or les solutions du profil de *réfé*rence obtenues par inversion avec les épaisseurs optiques non lissées sont peu nombreuses et



FIG. 4.27 – Résultats de l'inversion dans le canal O3 [559-620 nm]. A gauche : les profils de densité moléculaire de  $O_3$  et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_o = 585.5$  nm, avec les barres d'erreurs correspondantes, pour le cas "sans lissage" et pour le cas où un lissage est effectué sur les épaisseurs optiques par moyenne glissante sur 3 valeurs (équation 4.1). A droite : les profils des différences relatives (équation 4.12).

sont limitées dans la gamme d'altitude entre 28 et 24 km. La comparaison entre les résultats du profil de *référence*, avec les résultats obtenus avec des épaisseurs optiques lissées est donc restreinte à cette région.

L'analyse de la figure 4.28 montre que, si les différences relatives entre les profils des cœfficients d'extinction des aérosols sont inférieures à 2% au dessous de 28 km, la différence relative du profil de densité moléculaire de  $O_3$ , obtenu avec un lissage sur 3 valeurs, par rapport au profil de "référence" affiche des écarts voisins de 5% avec un écart maximum de 10%. Cette différence relative augmente de 2 - 5% lorsqu'on passe d'un lissage sur 3 valeurs à un lissage sur 5 valeurs, mais des informations supplémentaires sont gagnées sur les densités en dessous de 24 km. La même analyse pour le profil de  $NO_2$  et du cœfficient d'extinction des aérosols amène au même constat: en lissant les épaisseurs optiques, l'inversion devient possible pour les couches situées au dessous de 24 km. En comparant le profil de densité moléculaire de  $NO_2$  obtenu avec un lissage sur 3 valeurs, la différence relative est élevée, variant de 10% à 100%. Elle augmente de 10 - 40% lorsqu'on passe d'un lissage sur 3 valeurs à un lissage sur 5 valeurs.

Après ce constat, le lissage par une moyenne glissante sur 3 valeurs sur les altitudes a été systématiquement appliqué car il améliore l'inversion des épaisseurs optiques dans le canal "NO2", sans incidence notable dans le canal "O3". Grâce à ce compromis, nous obtenons des profils de densité moléculaire et des coefficients d'extinction des aérosols sur une plus grande gamme d'altitude.

Influence des sections efficaces Les simulations menées dans la partie 4.2.3.2 ont montré que l'incertitude sur les sections efficaces a un impact important sur la détermination du profil du cœfficient d'extinction des aérosols dans les canaux "O3" et "NO2". Comme la qualité de l'inversion dépend du choix des sections efficaces, nous avons mené une comparaison dans les canaux "O3" et "NO2" en fonction des différents jeux de sections efficaces, avec les mesures réelles de SALOMON.

Dans le canal "O3", nous avons inversé les profils avec deux banques de sections efficaces de  $O_3$ ; celle de Shettle et Anderson [1994] et celle de Burrows et al. [1999] utilisées par le LPCE. Les profils de densité moléculaire d' $O_3$  et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_3 = 575$  nm sont alors tracés avec leur différence relative (Figure 4.29). L'analyse montre que la différence relative entre les deux profils de densité moléculaire de  $O_3$  est très faible



FIG. 4.28 – Résultats de l'inversion dans le canal NO2 [409-473 nm]. A gauche : les profils de densité moléculaire de  $O_3$ , de NO<sub>2</sub> et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_o = 440$ nm, avec les barres d'erreurs correspondantes, pour le cas "sans lissage" et pour les cas où un lissage est mené sur les épaisseurs optiques par moyenne glissante sur 3 valeurs ou sur 5 valeurs (équation 4.1). A droite : les profils des différences relatives (équation 4.12).



FIG. 4.29 – Résultats de l'inversion dans le canal O3 [559-620 nm]. A gauche : les profils de densité moléculaire de  $O_3$  et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_o = 575$  nm. "Burrows" correspond au cas où l'inversion est menée avec la section efficace de Burrows et al. [1999] pour  $O_3$  et "Shettle" au cas où les sections efficaces de Shettle et al. [1994] sont utilisées. A droite : les profils des différences relatives (équation 4.12).

(inférieure à 0.8%), avec une valeur minimum de 0.2% lorsque la contribution de l'ozone est à son maximum: nous pouvons faire le même constat que dans le cas AMON (Figure ??). L'utilisation de l'une ou de l'autre banque de données de sections efficaces de  $O_3$ n'a pas d'incidence sur le profil de densité moléculaire  $O_3$ . Par contre, la différence relative entre les deux profils de cœfficient d'extinction des aérosols affiche des valeurs largement supérieures à 50% au dessus de 20 km. Lorsque la contribution des aérosols devient importante, l'écart se réduit mais reste encore important entre 20 et 18 km, avec une valeur minimum d'environ 15%.

La différence entre les sections efficaces de Shettle et Anderson [1994] et celles de Burrows et al. [1999] varie autour 4% dans le canal "O3" [559-620] mais elle chute rapidement après 610 nm où elle atteint 7% (Figures 2.5 et n°8 dans l'article [Bazureau et al., 2000]). La répercussion du changement de la section efficace de  $O_3$  sur le profil de cœfficient d'extinction des aérosols dans notre algorithme d'inversion est très forte, alors que ce n'est pas le cas pour l' $O_3$ . Dans la suite, nous préférons travailler avec les données de Burrows et al. [1999] parce qu'elles sont plus récentes que celles de Shettle, sachant bien que cet argument n'est pas définitif.

Dans le canal "NO2", nous avons réalisé l'inversion avec deux jeux de sections efficaces différentes pour  $NO_2$ ; celles de Harder et al. [1997] (utilisées par le LPCE pour son inversion) et celles de Vandaele et al. [1998], plus récentes. Dans l'inversion des épaisseurs optiques dans le canal "NO2", nous avons rencontré des difficultés. La grande incertitude du profil retrouvé de  $O_3$  issu du canal "NO2" nous a amené à injecter directement, dans l'inversion des épaisseurs optiques du canal "NO2", les profils de  $O_3$  résultant de l'inversion du canal "O3" obtenus avec la section efficace de Burrows et al. [1998] (Equation 4.4). Une fois ôtées les contributions de la diffusion Rayleigh et de l'ozone, il ne nous reste que deux "inconnues" à quantifier :  $\sigma_{aero}^{ext}$ et  $d_{NO_2}$ .

Les résultats de l'inversion dite "partielle" sont réalisés successivement avec les deux banques de sections efficaces de  $NO_2$ : ils se présentent sous forme de deux jeux de profils de densité moléculaire  $d_{NO_2}$  et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda = 660$  nm, dénotés par "Harder" et "Vandaele" (Figure 4.30). Les différences relatives reportées dans cette figure sont toujours calculées à l'aide de l'équation 4.12.

L'analyse des profils de densité moléculaire de  $NO_2$  montre que la différence relative





FIG. 4.30 – Résultats de l'inversion dans le canal NO2 [409-478 nm]. A gauche: les profils de densité moléculaire de NO<sub>2</sub> et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_0 = 450$  nm. "Harder" correspond au cas où l'inversion est menés avec les sections efficaces de Harder et al. [1997] pour NO<sub>2</sub> et "Vandaele" au cas où les sections efficaces de Vanduele et al. [1998] sont utilisées. A droite : les profils des différences relatives (équation 4.12).

est assez grande et se chiffre à 5% en moyenne, au dessus de 24 km. La même étude pour les aérosols montre que la différence relative est inférieure à 0.5% sur toute la gamme d'altitude. Le changement de la section efficace du  $NO_2$  n'a pas de répercussion sur le profil de cœfficient d'extinction des aérosols. Pour la séparation des espèces, l'utilisation des deux sections efficaces différentes n'influe que sur le profil de densité  $NO_2$ .

Choix du domaine Avant de faire un constat définitif sur l'influence des sections efficaces, nous avons voulu examiner l'influence du choix du domaine spectral sur les résultats.

Pour le canal "O3", nous avons appliqué l'algorithme d'inversion dans deux domaines spectraux "169 Pix" correspondant à [559-620 nm] et "83 Pix" correspondant à [590-620 nm]. Le cas "169 Pix" correspond aux deux pics d'absorption de la bande de Chappuis, le cas "83 Pix" ne prend en compte qu'un seul pic, celui de plus forte amplitude. L'inversion a été menée avec les sections efficaces de Burrows et al. [1999] pour  $O_3$ . L'analyse de la figure 4.31 montre que les différences relatives pour le profil de densité moléculaire de  $O_3$  restent inférieures à 8% pour toute la gamme d'altitude, avec un minimum vers 5% pour le maximum de l'ozone à 22 km. Par contre, pour les coefficient d'extinction des aérosols, nous obtenons une différence relative de 100 à 150 % entre 22 et 28 km, où la contribution des aérosols est faible. Le minimum du profil de différence relative est de 50 %.

Pour le canal "NO2", nous avons tracé côte à côte les résultats de l'inversion obtenus en prenant trois domaines spectraux différents; "180 Pix' pour le domaine [409-473 nm], "59 Pix" pour le domaine [430-450 nm] et "87 Pix" pour le domaine [440-475 nm] (Figure 4.32). La comparaison entre ces trois résultats s'effectue par un calcul de différence relative de chacun avec la moyenne des 3.

L'analyse de la figure 4.32 montre qu'il y a une différence relative pour le profil de densité de  $NO_2$  qui peut atteindre 40 % entre les domaines spectraux : cela s'explique par les propriétés des signatures spectrales du  $NO_2$ , dont les bandes d'absorption sont fortement structurées dans ces trois domaines. Pour les aérosols, les différences relatives atteignent 5% au maximum pour tous les domaines spectraux et pour les altitudes au dessous de 26 km. Pour les altitudes supérieures à 26 km, les différences relatives pour le domaine spectral "180 Pix" augmentent jusqu'à 25% alors que bandes restent inférieures à 10%. Ceci montre que le choix du domaine spectral dans iequel nous allons inverser les mesures réelles est d'une importance capitale.



FIG. 4.31 – Résultats de l'inversion dans le canal O3 avec deux domaines spectraux différents. A gauche : les profils de densité de O3 et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_0$  = 600 nm, pour le cas \*169 Pix\*, correspondant au domaine [559-620] et pour le cas \*83 Pix\*, correspondant au domaine [590-620]. Les résultats de l'inversion "LPCE" sont reportés. A droite : les profils des différences relatives obtenues par calcul 100\*("169 Pix\*-"83 Pix")/(("169 Pix\*+"88 Pix\*)/2) (équation 4.12).

0.00

0.10

0.20

0.30

Coefficient d'extinction des sérosols à 600 nm (km<sup>3</sup>) x 10<sup>3</sup>

0.40

0.50

0.60

-500

-400

-300

Différence relative (%)

-200

-600

-100

0



FIG. 4.32 – Résultats de l'inversion dans le canal NO2 avec trois domaines spectraux différents. A gauche : les profils de densité de NO<sub>2</sub> et du cœfficient d'extinction des aérosols à  $\lambda_0 = 450$  nm, pour le cas "180 Pix", correspondant au domaine [409-473], le cas "59 Pix" correspondant au domaine [430-450] et pour le cas "87 Pix", correspondant au domaine [440-475]. Les résultats de l'inversion "LPCE" sont reportés. A droite : le profil des différences relatives obtenues (équation 4.13).

Le choix du domaine spectral et celui des sections efficaces dans l'algorithme d'inversion influent donc beaucoup sur les résultats. L'algorithme d'inversion dans les bandes résolues est très sensible à l'influence des paramètres, notamment le choix du domaine spectral. L'étude de ces influences mérite d'être transposée au cas des mesures satellitaires.

# 4.2.4 Dépendance spectrale des cœfficients d'extinction des aérosols

Les mesures spectrales des cœfficients d'extinction des aérosols permettent d'en déduire leur gravulométrie (ou distribution en taille) et leurs caractéristiques : rayon effectif, variance effective, densité de surface et densité de volume, pour connaître le rôle des aérosols dans la chimie stratosphérique (voir paragraphe 1.3.4). Les méthodes de détermination de la granulométrie des aérosols sont très nombreuses dans la littérature : on se réferrera aux travaux de [King et al., 1978 ; Heintzenberg et al., 1981 ; Brogniez et Lenoble, 1988 ; Cazler, 1998 ; Yue, 2000] pour une présentation plus complète de ces méthodes. Par manque de temps, nous n'avons pas cherché à raffiner la recherche de la granulométrie et, parmi les différentes méthodes proposées, nous avons choisi la méthode de Brogniez et Lenoble [1988] qui consiste en une estimation très simple de la granulométrie des aérosols par une analyse de la variation spectrale des profils réels des cœfficients d'extinction des aérosols, en supposant que leur distribution en taille est monomodale. Cette hypothèse ne permet qu'une estimation grossière des différences entre les résultats des deux inversions.

Comme on l'avait dit à la fin du paragraphe 4.2.3.1, pour comparer les résultats, la dépendance spectrale des cœfficients d'extinction des aérosols est calculée à partir des profils d'extinction des aérosols issus des deux méthodes d'inversion, qu'on notera dans la suite par "LOA" (inversion dans les *bandes résolues*) et "LPCE" (inversion "LPCE"). Les profils des cœfficients d'extinction sont normalisés par rapport au profil du cœfficient d'extinction à 450 nm. Nous avons choisi 450 nm comme longueur d'onde de référence car elle est commune aux deux méthodes d'inversion. De plus, le profil des cœfficients d'extinction des aérosols à 450 nm issu de l'inversion dans les *bandes récolues* s'est révelé être moins sensible aux variations des sections efficaces que les autres profils (paragraphe 4.2.3.3). Nous pouvons alors analyser la dépendance spectrale du cœfficient d'extinction des aérosols sur l'intervalle des longueurs d'onde 375 à 660 nm.

La figure 4.33 montre les comparaisons des différentes variations spectrales dans 4 régions

d'altitude. Pour certaines altitudes, entre 29.5 et 27.5 km, la dépendance spectrale est mal déterminée par les deux méthodes: nous obtenons des rapports de cœfficients d'extinction des aérosols à 650 nm (LPCE) et à 660 nm (LOA) très faibles, voire même négatifs pour l'inversion "LPCE". Pour les autres régions, le profil d'extinction des aérosols à 660 nm pour l'inversion "LOA" conduit à un rapport  $\sigma(660)/\sigma(450)$  très faible et nous constatons une dépendance spectrale très marquée.

Dans notre approche, nous assimilons les aérosols stratosphériques à des gouttelettes sphériques d'acide sulfurique hydraté [Thomason et Poole, 1993]. Ainsi le cœfficient d'extinction des aérosols  $\sigma_{Mie}^{ext}$  est donné par l'équation intégrale de Fredholm (équation 2.16). D'après [Russell et al., 1996], l'indice de réfraction des particules d'aérosols composées à 75% d'acide sulfurique ( $H_2SO_4$ ) et à 25 % d'eau, est presque constant à 223 K (- 50 °C) dans l'intervalle de longueurs d'onde 450 - 700 nm: nous avons donc pris comme indice des aérosols, m = 1.45 + 0i, dans nos simulations. La partie imaginaire varie avec la longueur d'onde: dans le visible, elle est presque nulle [Palmer et Williams, 1975]. De plus, elle n'a pas beaucoup d'incidence sur la détermination de la granulométrie [Cazier, 1998]. L'approximation de la sphéricité des particules d'aérosols n'est plus valable en présence de certains nuages stratosphériques polaires, de cendres volcaniques ou en présence de cirrus [Kent et al., 1993; Winker et Osborn, 1992; Cazier, 1998].

La dépendance spectrale théorique du cœfficient d'extinction est calculée pour un jeu de paramètres  $r_m$  et  $\sigma_g$  (ou  $\tau_{eff}$  et  $v_{eff}$ ) (Equations 1.4 et 1.5). La comparaison entre dépendances spectrales théoriques et dépendances spectrales issues des deux méthodes d'inversion ("LOA" et "LPCE") permet de déterminer le modèle d'aérosol: en comparant les variations spectrales des cœfficients d'extinction simulés  $\sigma_{Mie}^{ext}$  et les variations spectrales observées par SALOMON  $\sigma_{aero}^{ext}$ , nous pouvons déterminer le modèle d'aérosol le plus proche et ainsi, nous pouvons en tirer les valeurs de  $r_{eff}$  et de  $v_{eff}$  [Brogniez et Lenoble, 1988].

Les modèles d'aérosols sont générés par une distribution en taille monomodale LND (1.1), avec plusieurs jeux de déviation standard géométrique  $\sigma_g$  variant de 1.05 à 3., par intervalles de 0.05, et de rayons médians  $r_m$  variant de 0.005 à 3  $\mu m$  (par intervalles de 0.005  $\mu m$ , de 0.01  $\mu m$  et 0.1  $\mu m$ . pour les valeurs de  $r_m$  respectives ; inférieures à 0.05  $\mu m$ , entre 0.05 et 9.2  $\mu m$  et supérieures à 0.2  $\mu m$ ) [Berthet et al., 2001].

Pour  $e^{\prime}$  imminer la granulométrie la plus proche de celle des mesures, on cherche à mini-



FIG. 4.33 – Variation spectrale des coefficients d'extinction des aérosols des mesures SALO-MON obtenus par les deux méthodes d'inversion "LOA" (en pointillés) et "LPCE" (traits pleins).

miser la fonction distance D:

$$D = \sum_{k=1}^{n-1} \left( \frac{\sigma_{\text{Mie}}^{\text{ext}}(\lambda_k)}{\sigma_{\text{Mie}}^{\text{ext}}(450)} - \frac{\sigma_{aero}^{\text{ext}}(\lambda_k)}{\sigma_{aero}^{\text{ext}}(450)} \right)^2$$
(4.15)

Où n-1 est le nombre de cœfficients d'extinction en jeu, autres que  $\sigma^{ext}(450)$ . Nous avons obtenu quatre profils de cœfficient d'extinction des aérosols par l'inversion dans les bandes résolues, à 400, 450, 600 et 660 nm. Les profils issus de l'inversion "LPCE" utilisés pour le calcul de D sont au nombre de 6: 375, 400, 450, 575, 600 et 650 nm.

Les figures 4.34 et 4.35 présentent respectivement les variations spectrales des cœfficients d'extinctions issus de l'inversion "LPCE" et ceux issus des mesures "LOA", ajustées par des modèles monomodaux en minimisant D:

- Figure 4.34: dans la région des altitudes entre 22 et 26 km, les modèles monomodaux s'ajustent correctement avec les mesures "LPCE", contrairement aux altitudes en dessous de 20 km, où la forme de la courbe est plus proche d'un modèle de distribution bi-modal que monomodal [Berthet et al., 2001].
- Figure 4.35: l'ajustement des mesures issues de l'inversion dans les bandes résolues par des modèles monomodaux est assez délicat. Aux altitudes où l'allure de la dépendance spectrale des mesures issues de l'invers on "LOA" présente un profil atypique, nous nous limitons à trois de cœfficient d'extinction (à 400, 450 et 600 nm) dans le calcul de D, sinon le choix du modèle de distribution monomodale le mieux approprié serait ambigu.

Malgré cette simplification, notre détermination reste délicate car le calcul de *D* ne repose que sur deux points de la courbe de dépendance spectrale. La présence de la forte décroissance des coefficiente d'extinction des aérosols en fonction de la longueur d'onde indiquerait que l'utilisation d'un modèle de distribution bi-modale serait peutêtre plus appropriée. Comme nous nous limitons ici aux modèles monomodaux, nous avons choisi de ne pas prendre en compte le profil de coefficient d'extinction à 660 nm, tout en sachant que cet argument est peut-être critiquable.

Les Larres d'erreurs de  $r_{eff}$  et de  $v_{eff}$  sont estimées d'après les rayons effectifs et les variances effectives "possibles" dans un intervalle assez petit autour du minimum de D. Le calcul de la distance D ne dépend que du nombre de coefficients d'extinction n-1. Or l'ajustement des mesures "LOA" par un modèle monomodal repose sur 2 points (contrairement à



FIG. 4.34 – Variation spectrale des cœfficients d'extinction des aérosols obtenus po<sup>-</sup> SALO-MON issus de la méthode d'inversion "LPCE" et ajustés par des modèles monomodaux (traits en pointillés).



FIG. 4.35 – Variation spectrale des cœfficients d'extinction des aérosols obtenus par SALO-MON issus de la méthodes d'inversion dans les bandes résolues ("LOA") et ajustés par des modèles monomodaux (traits pleins).

5 pour les mesures "LPCE"): c'est insuffisant pour être sûr que le modèle de granulométrie pour les mesures "LOA" est approprié. Les caractéristiques des aérosols ( $r_{eff}$  et  $v_{eff}$ ) des modèles correspondants sont tracés sur la figure 4.36.

Pour les mesures "LOA": Aux altitudes supérieures à 21 km, les valeurs des rayons effectifs obtenu sont inférieures à celles obtenues par les mesures "LPCE": nous obtenons un "creux" autour de 22 km, correspondant à une population étroite de particules d'aérosols de rayon effectif  $r_{eff} = 0.09 \ \mu m$ , de variance effective très faible ( $v_{eff} = 0.002$ ). Pour les altitudes supérieures à 21 km, la détermination du modèle monomodal le plus proche des mesures "LOA" est difficile. Enfin, les valeurs des variances effectives  $v_{eff}$  pour les mesures "LOA" sont inférieures aux valeurs obtenues pour les mesures "LPCE": elles varient entre 0.002 et 0.3 à l'exception d'un pic autour de 24.5 km, où  $v_{eff}$  est égal à 1.07. Pourtant, le modèle monomodal associé, ajusté aux mesures réelles à 24.5 km, est assez bon (Figure 4.35). Nous pensons que la détermination de la variance effective y est délicate car le coefficient d'extinction des aérosols normalisé autour de 660 nm n'est pas pris en compte: les valeurs obtenues pour cette altitude sont laissées de côté dans la suite, faute d'être sûr que le choix du modèle monomodal est approprié.

Pour les mesures "LPCE": Nous obtenons au dessous de 20 km des populations à variance élevée ( $v_{eff}$ = 1.8) d'aérosols de rayons effectifs très petits, autour de 0.05  $\mu m$ . Mais les modèles associés s'ajustent assez mal aux mesures "LPCE" pour ces altitudes, comme indiqué précedemment. Les variances effectives sont difficiles à estimer (Figure 4.34). Pour les altitudes supérieures à 20 km, les modèles de distribution on taille monomodaux s'ajustent blep aux mesures "LPCE". Le profil des variances  $v_{eff}$  affiche des valeurs supérieures à celles de "LOA" (sauf autour de 24.5 km), avec des valeurs comprises entre 0.01 et 0.28. Nous obtenons donc, entre 21 et 26 km, des populations étroites ( $v_{eff} \sim 0.009$ ) de particules ú aérosols de rayon effectif entre 0.12 et 0.16  $\mu m$ .

La détermination du rayon effectif et de la variance effective conduisent à la détermination de la densité de surface S et de la densité de volume V, s'exprimant respectivement en  $\mu m^2 cm^{-3}$  et en  $\mu m^3 cm^{-3}$  (équations 1.6 et 1.7). S et V peuvent s'exprimer donc en fonction


FIG. 4.36 – Comparaison des modèles d'aérosols issus des mesures SALOMON obtenus par les deux méthodes d'inversion ("LOA" et "LPCE"). En haut: Profil du rayon effectif (en µm) des aérosols obtenus avec les barres d'erreurs correspondantes. En bas: Profil des variances effectives avec les barres d'erreurs correspondantes.



FIG. 4.37 – Comparaison des modèles d'aérosols issus des mesures SALOMON obtenus par les deux méthodes d'inversion ("LOA" et "LPCE"). En haut: Profil de densité de surface (en  $\mu m^2 cm^{-3}$ ) des aérosols obtenus par le LPCE (traits pleins) [Source: G. Berthet]. Les traits en pointillés proviennent de notre travail. Le modèle bi-modal est représenté par  $\diamond$ , les modèles monomodaux sont représentés soit par des cercles (LOA), soit par des  $\triangle$  (LPCE). En bas: Profil de densité de volume (en  $\mu m^3 cm^{-3}$ ) (notre travail).

de  $r_{eff}$  et de  $v_{eff}$  par :

$$S = N_o \cdot \frac{4\pi r_{eff}^2}{(v_{eff} + 1)^3}$$
(4.16)

$$V = N_o \cdot \frac{4}{3} \pi \frac{r_{eff}^3}{(v_{eff} + 1)^3}$$
(4.17)

Dans ces équations,  $N_o$  est la concentration totale des <sub>i</sub> articules d'aérosols, estimée par la moyenne des rapports des cœfficients d'extinction mesurés et des cœfficients d'extinction des modèles ajustés :

$$N_o = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^{a} \frac{\sigma_{aero}^{ext}(\lambda_i)}{\sigma_{Mie}^{ext}(\lambda_i)}$$
(4.18)

Les profils des densités de surface et de volume, obtenus par nos calculs, sont reportés sur la figure 4.37 avec le profil de densité de surface calculé par l'équipe de LPCE [Berthet et al., 2001]. Dans ces derniers travaux, le profil de densité de surface est calculé en utilisant des modèles bi-modaux, pour les altitudes au dessous de 22 km et autour de 25 km, et des modèles monomodaux pour toutes les altitudes restantes. La comparaison du profil de S issus des mesures inversée par le LPCE, calculé par nos soins, avec celui obtenu dans l'article de [Berthet et al., 2001] mortre que notre détermination de  $r_{eff}$  et  $v_{eff}$  est correcte pour toutes les altitudes, à l'exception de deux points à 20 et 25 km. Autour de 18 km, notre calcul avec le modèle monomodal donne à peu près la même valeur de S (S = 12.1) que le modèle bi-modal utilisé par le LPCE (S = 14.3).

Nous pouvons comparer les profils des densités de surface et de volume, résultant de l'inversion "LPCE" et ceux inversés par nos soins : les mesures "LOA" montrent une bosse dans la couche autour de 22 km, pour les deux profils de S et V. Les valeurs de densit<sup>4</sup> de surface sont supérieures à celles obtenues par l'inversion "LPCE" pour les altitudes superieures à 21 km. Le même comportement est observé pour le profil de densité de volume (Figure 4.37).

Le calcul de S et de V dépend des valeurs calculées de  $N_o$ , leur analyse peut nous apporter une idée des difficultés rencontrées: la détermination de la concentration des aérosols  $N_o$  est plus aisée avec un nombre de cœfficients d'extinction plus important. Or, dans le cas des mesures "LOA", nous n'avons que 3 points au lieu de 6 pour les mesures "LPCE". Nous obtenons pour les mesures "LOA" une valeur de  $N_o$  anormale (10000!) autour de 24.5 km, ce qui a justifié notre choix de laisser de côté les caractéristiques des aérosols correspondantes de la figure 4.37. Ailleurs, les valeurs de  $N_o$  varient entre 3 et 74 cm<sup>-3</sup>. Pour les mesures "LPCE", nous obtenons aussi deux valeurs  $N_o$  très élevées pour les altitudes au dessous de 20 km (1000) comparé aux valeurs de  $N_o$  variant entre 2 et 6 cm<sup>-3</sup> pour les altitudes supé-

### Conclusions

### rieures à 20 km.

Ces résultats n'ont fait que souligner les différences entre les profils d'aérosols issus des deux méthodes d'inversion. Bien que la détermination des caractéristiques des aérosols soit assez grossière, elle souligne les différences entre les algorithmes d'in *vers*ion des mesures d'épaisseurs optiques. L'inversion "LPCE", qui permet de trouver les aérosols avec un plus large spectar, améliore la détermination des caractéristiques physiques, contrairement à notre algorithme. Bien qu'adapté aux profils des densités moléculaires pour lesquels il a été conçu, l'agorithme d'inversion dans les *bandes résolues* ne permet qu'une détermination des cœfficients d'extinction des aérocols limitée aux longueurs d'onde centrales dans chaque "bande".

Pourtant, il est nécessaire d'avoir un nombre assez important de cœfficients d'extinction des aérosols, sur un intervalle plus large de longueurs d'ondes, afin de mieux déterminer la granulométrie et la concentration totale des particules d'aérosols. Enfin, l'étude menée dans ce paragraphe mériterait d'être complétée par une analyse avec des modèles de granulométrie bi-modales.

### 4.3 Conclusions

L'objet de ce chapitre était de présenter les premiers résultats de l'algorithme d'inversion dans les bandes résolues adapté au cas des mesures ballon. Le travail de l'élaboration de la version "ballon" de l'algorithme d'inversion dans les bandes résolues a été mené à bien : l'inversion des profils d'épusseu. optiques simulées, pour le cas "ballon", a montré que les profils des constituants (gaz et coefficient d'extinction des aérosols) sont restitués avec une bonne précision. Néanmoins, nous avons observé un lien entre l'altitude maximale du ballon, à laquelle est reliée l'altitude tangente maximale, avec la qualité de l'inversion. Moins l'altitude maximale du ballon est élevée, moins l'inversion dans les bandes résolues est efficace : nous obtenons des erreurs s tématiques très élévées pour les couches supérieures. Afin de corriger la perte de précision due à la limitation de l'altitude tangente, une extrapola ion est menée sur le profil des coefficients d'extinction avant inversion spatiale. L'amélioration obtenue sur les profils des coefficients est de 2 à 10 % sur les erreurs systématiques, néanmoins cette métho':e d'extrapolation a ses propres limites.

La comparaison des résultats obtenus par deux méthodes d'inversion, l'inversion dans les bandes résolues et l'inversion 'LPCF' nous a permis d'effectuer un premier test du foncti nnement de notre algorithme d'inversion sur des mesures réelles d'épaisseurs optiques. D'une facon générale, l'analyse dans les bandes résolues est bien adaptée pour la détermination des rofils des gaz moléculaires, mais elle ne permet qu'une détermination des profils des cœfl uts d'extinction des aérosols limitée aux longueurs d'onde centrales des canaux. Les premières estimations ont néanmoins montré qu'il y a un désaccord entre les profils issus des deux méthodes pour certains des constituants, notamment pour les aérosols. Pour retrouver les aérosols, il faudrait passer à l'analyse combinée, qui utilise les canaux où il y a une forte contribution des aérosols. Mais les bandes spectrales des mesures AMON et SALOMON sont restreintes à l'UV-Visible si bien que le spectre est trop étroit pour que nous puissions utiliser l'analyse combinée. L'inversion "LPCE", qui retrouve les aérosols dans un large spectre, est sans doute meilleure. Nous avons tenté de comprendre ces divergences en essayant de traiter les mesures de la même manière que celle de l'équipe du LPCE : utilisation des mêmes sections efficaces, même lissage chromatique sur les épaisseurs optiques pour réduire la scintillation pour AMON, ... Toutes ces manipulations n'ont pas pu expliquer à elles seules les différences constatées : les comparaisons des résultats issus des deux méthodes d'inversion pour le cas des mesures réelles de SALOMON montrent que les profils de l'ozone et du dioxyde d'azote issus des deux algorithmes d'inversion sont en bon accord, contrairement aux profils des aérosols et des densités moléculaires de OCIO et de NO3. L'origine de ces désaccords vient donc des différences entre les deux algorithmes: les méthodes de séparation des espèces et les méthodes d'inversion spatiale ne sont pas les mêmes et méritent une étude plus approfondie qui devrait être réalisée conjointement par les deux équipes.

Comme rien ne nous indique, parmi les banques de données disponibles, quelles sont les sections efficaces les plus fiables, nous avons étudié leur influence sur l'inversion des mesures réelles de SALOMON. L'inversion penée dans le canal "O3" avec deux banques de sections efficaces pour l'ozone a montré une différence relative entre les profils retrouvés, de moins de 1 % pour l'ozone et une différence relative de 50-80 % pour les aérosols. La même étude menée dans le canal de  $NO_2$ , av c deux banques de données de sections efficaces de  $NO_2$ , montre que les divergences entre les profils retrouvés sont de l'ordre de 5 à 20 % pour  $NO_2$  et inférieures à 1 % pour les aérosols. L'étude de l'influence des sections efficaces du OCIO a montré que l'utilisation des sections efficaces de Kromminga et al. [1999] a permis d'obtenir des solutions positives, contrairement aux résultats obtenus avec les données de Wahner et al. [1987]. Une conclusion peut être dégagée à partir de l'analyse des données de Wahner et

### Conclusions

al.: bien que la résolution spectrale de ces données (0.07 nm) soit supérieure au pas spectral des mesures SALOMON (0.35 nm), les données des sections efficaces de OCIO seraient entachées par un problème de calibration des longueurs d'ondes (comme nous l'avons dit dans le paragraphe 2.3.6) avec un décalago supérieur au pas spectral des mesures SALOMON.

Le choix du domaine spectral est très important, comme nous venons de le constater, dans ce chapitre : il serait intéressant de mener une nouvelle analyse avec les épaisseurs optiques de SALOMON, en multipliant les bandes spectrales et en faisant varier leur emplacement, la restitution des aérosols, ainsi que celle des densités moléculaires, serait sans doute meilleure. L'étude de cette variation du domaine spectrale mérite d'être transposée au cas des mesures satellitaires.

La comparaison entre les propriétés physiques des aérosols dérivées des différentes variations spectrales des aérosols issues des deux méthodes d'inversion n'a fait que reproduire les problèmes de divergence : les difficultés de détermination des différentes caractéristiques physiques des aérosols à partir des modèles de distribution monomodale sont importantes, où les modèles de distribution en taille monomodale donnent de très mauvais résultats. Pour les altitudes supérieures à 27 km, nous pensons que les épaisseurs optiques sont plus douteuses du fait de la faible altitude de plafond du ballon et donc, l'inversion nous donne de mauvaises valeurs. Il serait intéressant de 2 torminer les caractéristiques des aérosols avec des modèles de distribution en taille bi-modaux. Pour la variation spectrale des cœfficients d'extinction des aérosols par inversion dans les bandes résolues, le choix du modèle de distribution monomodale a é é sérieusement compliqué par la présence d'une forte décroissance des cœfficients d'extinction des aérosols en fonction de la longueur d'onde. Nous avons dû procéder à des éliminations, afin de pouvoir déterminer les paramètres physiques des aérosols notamment autour de 20 - 22 km et au dessus de 25 km. Pour les mesures des coefficients d'extinction des aérosols par inversion "LPCE", la détermination de la variation spectrale du modèle la plus proche de celle des mesures a été dans l'ensemble assez correcte, à l'exception des altitudes au dessous de 21 km où la variance effective est retrouvée avec une très grande incertitude. Entre 22 et 26 km, l'hypothèse d'un modèle monomodal *a*'a pas posé de problèmes.

Les mesures AMON et SALOMON étant limitées à la bande spectrale 300 à 700 nm, l'algorithme d'inversion par *analyse globale* et l'algorithme d'*inversion combiné* développés pour SAGE III ne peuvent pas s'appliquer. Il serait intéressa d'ajouter un canal complémentaire

dans l'infrarouge pour améliorer la détermination de la variation spectrale des aérosols et donc celle des paramètres physiques de la distribution en taille.

## **Conclusion Générale**

Le travail dont cette thèse rend compte a consisté essentiellement à concevoir et à mettre en place un algorithme d'inversion des données pour l'instrument SAGE III. Cet algorithme était destiné à inverser les mesures dans des bandes spectrales résolues en sous canaux étroits, ce qui nous a conduit à baptiser cette méthode d'inversion : "inversion dans les bandes résolues". Initialement, la perspective de développement de cet algorithme était limitée à deux des bandes spectrales de SAGE III utilisées pour l'occultation solaire, la bande du dioxyde d'azote autour de 442 nm et la bande de Chappuis de l'ozone. A la suite des premiers résultats obtenus, la démarche a été transposée sur les autres bandes spectrales résolues de SAGE III dédiées au mode lunaire, la bande du dioxyde de chlore et celle du trioxyde d'azote.

Cette méthode d'inversion dans les bandes résolues est apparue comme particulièrement bien adaptée à la petite résolution spectrale de l'instrument SAGE III. Les premiers résultats de cette méthode ont démontré sa fiabilité à retrouver les profils des constituants moléculaires avec une erreur systématique inférieure à 1-2 %, en prenant en compte une incertitude sur les profils des épaisseurs optiques simulés (cette incertitude est prise constante en fonction de l'altitude). Une corrélation qualité de l'algorithme d'inversion / contribution relative de chaque constituant nous a permis d'estimer le seuil de détection de cette inversion. En effet, pour une contribution relative supérieure à 5%, les profils sont retrouvés avec un biais inférieur à 1%. Pour obtenir une erreur aléatoire inférieure à 10%, la limite inférieure des contributions relatives devra être de 20%. Globalement, ces résultats sont satisfaisants pour déterminer les profils de densités moléculaires des constituants atmosphériques, avec une résolution moyenne de 1%.

Une comparaison entre la méthode d'inversion *dans les bandes résolues* et une autre méthode, celle initialement destinée à l'inversion des profils de transmission de SAGE II et de POAM II et III et adaptée aux canaux de SAGE III, et qu'on appelle ici *inversion globale*, a été menée avec les simulations de 8 modèles atmosphériques les plus représentatifs. Une première comparaison des profils moléculaires a montré l'avantage de l'algorithme dans les bandes résolues par rapport à l'inversion globale, en ce qui concerne l'ozone et le dioxyde d'azote. Ces deux méthodes d'inversion ont alors été fusionnées dans un nouvel algorithme d'inversion, dénommé inversion combinée, afin d'améliorer l'estimation des cœfficients d'extinction des aéroeols en dehors des canaux résolus de SAGE III. Néanmoins, les premiers résultats, fruits d'un travail plus collectif qu'individuel, sont limités à ce stade. L'algorithme d'inversion dans les bandes résolues a été testé en introduisant des incertitudes sur les mesures de transmission et sur l'altitude d'enregistrement. Aux altitudes où les valeurs de transmission sont proches de l'unité, c'est à dire aux hautes altitudes, la reconstitution est mauvaise. Aux basses altitudes, l'incertitude sur l'altitude conduit à des incertitudes élevées sur les produits de l'inversion. Une étude similaire de l'algorithme devrait être développée pour le cas lunaire, impliquant des profils verticaux de densités moléculaires du dioxyde d'azote, de l'ozone, du trioxyde d'azote et du dioxyde de chlorine.

Faute de mesures réelles de SAGE III, une occasion s'est néanmoins offerte d'appliquer cette méthode à deux vols ballons, dont l'un s'est déroulé dans le cadre de la campagne THE-SEO 2000 à partir du site de Kiruna (Suède), le 22 février 2000. Le premier vol a été effectué à partir du même site mais à une date plus ancienne, celle du 25 février 1997. Ces mesures ont été effectuées lors de deux expériences conduites par l'équipe du LPCE d'Orléans, AMON et SALOMON. Le type de mesure de ces deux instruments par visée au limbe est similaire à celui de SAGE III. L'un des points communs entre SAGE III et SALOMON est, notamment, l'utilisation de la Lune comme source lumineuse. AMON se distingue des autres instruments par la mesure des profils des transmissions par occultation stellaire. Les instruments AMON et SALOMON enregistrent les spectres dans un domaine spectral compris entre 300 et 700 nm, avec des résolutions spectrales respectives de 0.1 nm et 0.3 nm. toutes deux inférieures à celle de SAGE III. II a été possible de tirer profit de cette faible résolution spectrale pour développer une version "ballon" de l'algorithme d'inversion *dans les bandes résolues* de SAGE III.

Dans un premier temps, une analyse a été menée avec des simulations des épaisseurs optiques pour le cas "ballon". Les premiers résultats obtenus sont satisfaisants, bien qu'il soit difficile d'évaluer correctement les constituants pour les altitudes situées immédiatement sous le ballon. Ailleurs, on obtient des biais inférieurs à 5% pour les profils de l'ozone et des

### **Conclusion** Générale

coefficients d'extinction des aérosols, et inférieurs à 10% pour les profils de dioxyde d'azote. Comme la performance est limitée par l'altitude de plafond du ballon, une tentative pour réduire les incertitudes sur les couches supérieures, situées au dessus du ballon, est menée à blen en utilisant une extrapolation du profil des coefficients d'extinction. Les erreurs systématiques sur les profils retrouvés se sont améliorées de 2 à 6%. En théorie, l'algorithme d'inversion adapté à une version "ballon" est bien validé au regard des faibles écarts relatifs obtenus.

Dans un deuxième temps, il a été entrepris d'inverser les mesures réelles ballons de AMON et SALOMON : les résultats de ce premier test de fonctionnement sur mesures réelles de l'algorithme d'inversion dans les bandes résolues ont été rapprochés de ceux obtenus par la méthode d'inversion du LPCE. Cette comparaison a montré des désaccords entre les profils issus des deux méthodes pour certains des constituants. Nous avons alors tenté d'effectuer les mêmes manipulations que l'équipe du LPCE, sur leurs indications, pour comprendre ces différences. Comme les résultats obtenus n'ont pas éliminé les problèmes de divergence, nous en avons conclu que les différences des résultats ont nettement pour origine les différentes méthodes de séparation des espèces.

Tout le travail effectué dans le cadre de cette thèse avec les différentes banques de données des sections efficaces d'absorption a montré à quel point les résultats de l'algorithme d'inversion dans les bandes résolues dépendent du choix des sections efficaces : les données actuelles sur la dépendance des sections efficaces en fonction des températures stratosphériques sont encore insuffisantes. Nous avons besoin de nouvelles banques de données des sections efficaces, avec une meilleure résolution spectrale et un plus large choix de températures stratosphériques. On ne pourra répondre à un tel besoin que par une collaboration étroite entre les spectroscopistes et les expérimentateurs.

Enfin, l'analyse des variations spectrales des coefficients d'extinction des aérosols issus des mesures SALOMON a montré que le travail d'identification du modèle de distribution monomodal a été compliqué en raison de la présence d'une forte décroissance des coefficients d'extinction des aérosols en fonction de la longueur d'onde. Ce fait a été constaté pour les altitudes supérieures à 27 km pour la méthode d'inversion du LPCE, et pour les altitudes supérieures à 21 km pour l'inversion *dans les bandes résolues*. En revanche, la concordance

modèle monomodal / mesures n'a pas posé de problèmes pour les mesures issues de l'inversion "LPCE" entre 22 et 26 km. Avec une analyse comparative utilisant des modèles de distribution bi-modale ou l'ajout d'un canal supplémentaire dans l'infraroug2 pour les mesures AMON et SALOMON, la détermination des caractéristiques des aérosols n'en serait que meilleure. Comme le choix du domaine spectral influence beaucoup sur les produits de l'inversion dans les bandes résolues, une nouvelle analyse devra être menée en multipliant les bandes spectrales et en variant leur emplacement. Toute nouvelle restitution des aérosols, ainsi que celle des densités moléculaires, doit prendre en considération les choix des sections efficaces et des bandes spectrales.

L'algorithme d'inversion dans les bandes résolues développé dans cette thèse n'a pas encore été appliqué sur des mesures réelles de SAGE III auxquelles il était destiné. L'objectif initial de cette thèse n'est que partiellement atteint. La prochaine étape serait de tester cet algorithme, ainsi que l'algorithme d'inversion combinée, avec les mesures réelles de SAGE III et de valider la bonne détermination par ces deux méthodes des profils verticaux des constituants moléculaires par comparaison avec les résultats des algorithmes du LaRC.

Enfin, nous avons démontré la polyvalence de l'algorithme d'inversion *dans les bandes* résolues en l'adaptant sans problème pour des mesures ballons ou sur de nouvelles bandes spectrales, sous réserve que les banques de données des sections efficaces d'absorption moléculaires correspondantes soient disponibles.

# Glossaire des symboles

### Lettres Latines

$A_{ij}$	: point du trajet géométrique à l'intersection de la couche
1. 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 19 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 - 1997 -	: concentration de l'espèce moléculaire l
ctotal	: concentration moléculaire totale de l'air
D	: fonction distance entre les coefficients d'exinction des aérosols issus des
	mesures et ceux obtenus via la théorie de Mie
Drel	: différence relative entre deux grandeurs $\hat{eta}_1(i)$ et $\hat{eta}_2(i)$
$\mathbf{D}_{rel}(p)$	: différence relative de chacune des grandeurs $\hat{eta}_p(i)$ par rapport à leur moyenne
d	: facteur de dépolarisation $d = 0.0139$
dgazz	: densité moléculaire (ou concentration absolue) du gaz k
dr	: élément de rayon de la particule
ds	: élément de trajet géométrique
dz	: élément de couche
ETβ́(i)	: écart-type de la composante i de l'estimateur de $\beta$
Esyst	: erreur systématique
Ealea	: erreur aléatoire
F.	: facteur d'amplification du profil du coefficient d'extinction des aérosols
$F_k$	: facteur de King $F_k = 1.048$
Ħ	: échelle de hauteur de l'extrapolation du profil des coefficients d'extinction
	: inclinaison de l'orbite du satellite
i, j	: indices des couches
$J_{\Lambda}(M, \overrightarrow{s})$	: fonction source définie en M et par la direction 3
<b>X</b>	: partie imaginaire de l'indice de réfraction
4	· nombre total d'itérations de Chabine

$L_{\lambda}(M, \overrightarrow{s})$	: luminance définie en M et par la direction 3						
$L_{\lambda}(0)$	: Luminance incidente en x=0						
$L_{\lambda}(x)$	: Luminance mesurée à une distance x						
m	: nombre d'espèces moléculaires à quantifier						
$\mathbf{m} = n + ik$	: indice de réfraction complexe						
m,	: indice standard de l'air (complexe)						
N	: nombre de molécules par unité de volume						
	: Réfractivité						
$\mathcal{N}_A$	: nombre d'Avogadro $\mathcal{N}_A = 6.02252 \ 10^{23} mole^{-1}$						
N <sub>MC</sub>	: nombre d'itérations de Monte Carlo						
No	: concentration (nombre total) des particules d'aérosols ( $cm^{-3}$ )						
N <sub>s</sub>	: nombre standard de molécules par unité de volume $N_s$ =2.5474 $10^{19}cm^{-3}$						
n	: partie réelle de l'indice de réfraction						
$n_{pix}$	: nombre de sub-canaax (ou de pixels)						
$n_j$	: idice de réfraction de la couche j						
$n_s$	: indice de réfraction standard de l'air $n_s = 1.0003$						
n(r)	: granulométrie, nombre de particules de rayon r par unité de volume						
$\frac{dN(r)}{dr}$	: nombre de particules de rayon r par unité de volume						
p	: pression						
$p_s$	: pression standard $p_s = 1013.25$ hPa						
$\mathcal{Q}^{ext}_{\lambda}(\mathbf{m},\lambda,r)$	: facteur d'extinction particulaire (ou coefficient d'efficacité d'extinction de Mie)						
$\mathcal{Q}^{diff}_{\lambda}(\mathrm{m},\lambda,r)$	: facteur de diffusion particulaire (ou coefficient d'efficacité de diffusion de Mie)						
S	: densité de surface des aérosols (en $\mu m^2 cm^{-3}$ )						
R	: constante des gaz parfaits $R = 8.3143 J K^{-1} mole^{-1}$						
$R_T$	: rayon de la Terre $R_T = 6371$ km						
r	: rayon de la particule						
r <sub>eff</sub>	: rayon effectif						
r <sub>m</sub>	: rayon médian						
ri	: rapport de mélange de l'espèce moléculaire i						
T	: température						
T,	: température standard $T_s = 288.15$ K ou 15 °C						
$\mathbf{T}_{\lambda}, \mathbf{T}(\lambda, Zt)$	: transmission à la longueur d'onde $\lambda$ et à l'altitude Z						
V	: densité de volume des aérosols (en $\mu m^3 cm^{-3}$ )						

### Glossaire des symboles

vell	: variance effective
W	: indice du nombre d'itérations de Chahine
X <sub>LOA</sub>	: résultat du LOA
XLPCE	: résultat du LPCE
x <sub>ij</sub>	: élément de la matrice $\mathcal{X}$
$Z_b$	; altitude de plafond du ballon
ZMaz	: altitude maximale de la couche atmosphérique terrestre
Zrej	: altitude de référence de l'extrapolation du profil des coefficients d'extinction
Zn	: dtitudo tangente
Zt <sub>max</sub>	: altitude tangente maximale

## Lettres Grecques

α	: coefficient de la loi d'Angström
¢,	: coefficient de la dépendance parabolique des aérosols
	: coefficient de la loi d'Angström
$\alpha_{ij}$	: angle de réfraction
A	: coefficient de la dépendance parabolique des aérosols
<b>Ø</b>	: vecteur de paramètres de dimension (m+3)
ð	: estimateur du vecteur de paramètres $\beta$
β(i)	: composante i du vecteur de paramètres $oldsymbol{eta}$
A <sub>ij</sub>	: angle
$\beta^{(k)}(Z)$	: vecteur de paramètre k-ieme solution de Monte Carlo
$\hat{eta}(i)$	: estimateur de la composante i de $\beta$
$\hat{eta}^{(k)}(i)$	: estimateur de la composante i de $\beta$ k-ieme solution de Monte Carlo
$\hat{eta}_p(i)$	: composante i de l'estimateur de $\beta$ d'indice p
1. <b>7</b>	: variable élément de $\beta$
$\Delta S$	: épaisseur de la sons-couche
$\Delta T$	: incertitude sur les transmissions
$\Delta Z$	: pas de la re olution verticale, épaisseur de la couche

$\Delta \lambda_i$	: distance spectrale par rapport à la longueur d'onde centrale de la bande $\lambda_o$
$\Delta  au$	: incertitude sur les épaisseurs optiques
$\delta_{ij}(\lambda, Z, Z_l)$	: chemin ou trajet géométrique dans l'élément de couche défini par $Z$ et $Z_t$
ζí	: altitude au centre de la couche atmosphérique
ζMax	: altitude maximale $\zeta_{Max} = Z t_{max} + \frac{\Delta Z}{2}$
η	: variable élément de $eta$
$\Theta_{ij}$	: angle d'incidence
λ	: longueur d'onde du rayonnement
$\lambda_{air}$	: longueur d'onde prise dans l'air
$\lambda_i$	: longueur d'onde i
$\lambda_o$	: longueur d'onde centrale d'une bande spectrale
$\lambda_{ref}$	: longueur d'onde de référence pour le modèle d'aérosol
$\lambda_{vide}$	: longueur d'onde prise dans le vide
ν	: nombre d'onde
$ u_{vide}$	: nombre d'onde pris dans le vide
π	: rapport de circonférence du cercle au diamètre $\pi=3.1415$
yert	: vecteur des coefficients d'extinction corrigés de Rayleigh
σ	: largeur de la distribution gaussienne
$\sigma^{abs}_A$	: coefficient d'absorption de l'espèce moléculaire A
$\sigma^{abs}_{\lambda}, \sigma^{diff}_{\lambda}$	: coefficient d'absorption, de diffusion
$\sigma^{abs}_{gaz_k}$	: coefficient d'absorption du gaz k
$\sigma_{Ray}^{diff}$	: coefficient de diffusion de Rayleigh
$\sigma_p^{diff}(\mathbf{m},\lambda,r)$	: section efficace de diffusion particulaire
$\sigma_{ m Mie}^{ m diff}$	: coefficient de diffusion de Mie
$\sigma^{ext}_{\lambda}$	: coefficient d'extinction volumique total
$\sigma^{ext}(\lambda,Z)$	: coefficient d'extinction total à la longueur d'onde $\lambda$ et à l'altitude Z
$\sigma_{aero}^{ext}(\lambda,Z)$	: coefficient d'extinction des aérosols à la longueur d'onde $\lambda$
$\sigma^{exi}_{aero,\lambda_{\alpha}}$	: coefficient d'extinction total à la longueur d'onde centrale $\lambda_o$
$\sigma_{aere}^{ext}(\lambda_{ref},Z)$	: coefficient d'extinction total à la longueur d'onde de référence $\lambda_{ref}$
	et à l'altitude Z
$\sigma_{ m Mie}^{ m ext}$	: coefficient d'extinction de Mie
$\sigma_p^{ext}(\mathbf{m},\lambda,r)$	: section efficace d'extinction particulaire
$\sigma_g$	: largeur de la courbe log-normale

### Glossalre des symboles

$\sigma_A^{mol}$	: section efficace d'absorption moléculaire de l'espèce A							
$\sigma_{gask}^{mol}(\lambda_i)$	: section efficace d'absorption moléculaire du gaz k à la longueur d'onde $\lambda_i$							
o mol Ray	: section efficace de diffusion moléculaire de Bayleigh							
$\hat{\sigma}_{cor}$	: coefficient d'extinction total corrigé de Rayleigh							
$\tilde{\sigma}^{extrap}_{cor}$	: coefficient d'extinction corrigé de Rayleigh extrapolé							
σ <sup>w</sup> cor	: coefficient d'extinction corrigé de Rayleigh après la w itération (Chahine)							
<i>o</i> tot	: coefficient d'extinction total							
$\tau, \tau(\lambda, Z_i)$	: épaisseur optique à la longueur d'onde $\lambda$ et à l'altitude tangente $Z_t$							
rabs gazz	: épaisseur optique du gaz k							
rezt aerosol	: épaisseur optique des aérosols							
Tlisse	: épaisseur optique "lissée"							
TRayleigh	: épaisseur optique de Rayleigh							
<del>(</del> (k)	: épaisseur optique pour la k-ieme simulation (Monte Carlo)							
* *	: épaisseur optique corrigée de Rayleigh							
x	: matrice dite "modèle" ou de régression							
<i>X''</i>	: matrice transposée de $\mathcal{X}$							

## Publications

### An Overview of LOA SAGE III Inversion Algorithm

### A. Bazureau, C. Brogniez and J. Lenoble

### Geophysical Research Letters,

Vol. 27, No 15, Pages 2225-2228, August 1, 2000.

### An Overview of LOA SAGE III Inversion Algorithm

### A. Bazureau, C. Brogniez and J. Lenoble<sup>1</sup>

Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Université de Sciences et Technologies de Lille, France.

Abstract.We present here the inversion algorithm implemented by the Laboratoire d'Optique Atmosphérique, University of Lille, France, for the analysis of solar and lunar occultation data from the Stratospheric Aerosol and Gas Experiment III (SAGE III). The first flight of SAGE III is planned to be launched in late fall 2000 on the polar orbit spacecraft METEOR 3M We present first the forward model algorithm for calcultating atmospheric transmittances in four of the SAGE III channels - the solar ones, around 440 nm and 600 nm, and the lunar ones, around 413 nm and 660 nm. Then the inversion algorithm is introduced, accomplished in two sequential steps. The first one is the spatial inversion of the simulated slaut optical thickness prolile leading to the extinction coefficient profile. The second is the spectral inversion of the extinction coefficient at each altitude to separate gas and aerosol contributions. Lastly, error analysis is conducted by a Monte Carlo technique and discussed : the retrieved gas densities and aerosol extinction profiles favourably compare to the corresponding input profiles.

### 1. Introduction

The Stratospheric Aerosol and Gas Experiment III (SA -GE III) is designed to monitor aerosol extinction and important gas trends, such as ozone and nitrogen dioxide, in the upper troposphere and stratosphere. SAGE III uses the attenuation of the sun or the moon due to Earth's atmosphere (limb targeting). Compared to its predecessor, SAGE II, some improvements have been carried out : the new prototype is constituted of an 800 element CCD linear array detector to provide spectral coverage from 280 nm to 1040 nm, coupled with a single photodiode detector at 1550 nm to expand the aerosol extinction measurements. Thanks to the two occultation modes, the geographical coverage of SAGE III is increased. Finally, the vertical resolution has been reduced to 0.5 km against 1 km for SAGE II [Chu et al., 1997] The LOA and the LaRC have developed independently two inversion algorithms for SAGE II solar occultation measurements. In that previous LOA inversion algorithm, the seven channels of SACE II were handled altogether [Chu et al., 1089

In this paper, we present the LOA inversion algorithm for SAGE III made with a quite different approach one sclected resolved channel is used for retrieving the molecular density profiles of the species involved in this channel independently of all other channels. A comparison between these two techniques will be presented in a forthcoming paper.

<sup>1</sup>Also at Interactions Rayonnement Solaire Atmosphere, Grenoble, France.

Cepynehi 2009 by the American Geophysical Union

Paper number 2000(il 011445 0094-8276/00/2009(il 011445505 00 A preliminary outcome has been obtained for the resolved channels for the retrieval of daytime and nighttime constituents (Bazureau et al., 1999a; Bazureau et al., 1999b). Since the measurements are not yet available, the work has been conducted on simulated transmission (or tangent optical thickness) profiles computed for an atmosphere constituted with known molecular density profiles such as  $NO_3$ ,  $NO_2$ , OCIO and  $O_3$  and known aerosol extinction coefficient profile at a reference wavelength  $\lambda_{ref}$ .

#### 2. Forward Problem

For the solar case, the atmospheric transmission modelling is developed from daytime climatological profiles of gas densities  $NO_2$  and  $O_3$  and aerosol extinction coefficient at  $\lambda_{ref}$ . In the same way, for the lunar case, the model of nighttime  $NO_3$ ,  $O_3$ ,  $NO_2$  and aerosol extinction profiles are taken from *Renard et al.* [1996]. The chlorine dioxide profile is given by Renard (personal communication). In all cases, an ideal atmospheric model is considered : it is constituted of 125 m. thick concentric homogeneous layers, from the ground to the top, fized to an altitude of 60 km.

The transmission profile is computed every 0.5 km (as it will be measured by SAGE III instrument), on each tangent height of the line-of-sight and each wavelength by using a priori profiles of pressure, temperature and molecular densities. The contributions of each constituent are added layer by layer for estimating the transmission. In this work, four spectral domains are used (see Table 1). The total slant optical thickness  $\tau(\lambda, Z_t)$  is defined by

$$\tau(\lambda, Z_t) \simeq \int \sigma^{ext}(\lambda, Z) \cdot dl(\lambda, Z, Z_t)$$
 (1)

where  $\sigma^{ext}(\lambda, Z)$  is the total extinction coefficient and  $dl(\lambda, Z, Z_t)$  is the geometric slant path corrected for the refraction. The total extinction coefficient is a linear combination of the extinction of each species in the atmosphere as given by :

$$\sigma^{ext}(\lambda, Z) = \sigma^{scat}_{Hay}(\lambda, Z) + \sigma^{ext}_{aerosol}(\lambda, Z) + \sum_{k=1}^{m} \sigma^{ext}_{gas_k}(\lambda, Z)$$
(2)

where  $\sigma_{Ray}^{rest}(\lambda, Z)$  is the coefficient for Rayleigh scattering taken from Lenoble [1993], and  $\sigma_{gas_k}^{ext}$  and  $\sigma_{aerosol}^{ext}$  are respectively the extinction coefficients for the gas k and aerosol at wavelength  $\lambda$ . The sum is conducted on all k gases, considered in the wavelength domain where they have an important contribution due to their molecular absorption cross section.

The ozone molecular absorption cross sections are provided by Shettle et al. [1994] over a spectral coverage from 407 nm to 762 nm, with a 0.1 nm resolution, at stratospheric temperatures (180 K, 200 F., 220 K and 240 K). The nitrogen dioxide ones are provided by Méricane et al. [1995], over the domain from 400 to 500 nm, for the temperatures

Channel	Oce.	Wavelength	1997 (S. 14)	Mid- Wavelength	Rayleigh	Aerosul	NO <sub>3</sub>	01	NOi	0010*
Number	Mode	Range	Pixels	$\lambda_n$						
1	Lunar	407 - 420	Ŋ	413.5	+++	+	+++	4.	A CONTRACT OF CONTRACT	4: 44.
2	Solar	430 - 450	19	441.5	* + +	+	* + +	+		
3	Solar	559 - 624	10	591.5	- + +	4	[	+++		
4	Lunar	640 - 680	25	660	++	4		+++	++	- Marcon and a function

Table 1. Average influence of atmosphetic constituents for each of the four SAGE III resolved channels. The importance of the constituent contribution in the channel is denoted by the number of crosses (+ to + +). If there is no cross, the influence is negligible. (\*) indicates nighttime constituents involved only in linnar occultation channels. Source : *Chu et al.* [1997].

240 K and 220 K, with a 0.01 nm resolution. The nitrogen trioxide cross sections are provided by *Deters et al.* [1998], over the domain from 617.97 to 704.9 nm, for the temperature 243.15 K, with a 0.2 nm resolution. Finally, the OCIO ones are given by *Walmer et al.* [1987], over the domain from 242.52 to 475.95 nm, with a 0.1 nm resolution.

The aerosol extinction coefficient is a function of aerosol size distribution. For a simple modelling, the aerosol extinction coefficient at each wavelength is derived from the values at  $\lambda_{ref}$ : we use the Ångström law [Angström, 1929] with an Ångström coefficient fixed to 1, characterizing standard aerosols.

#### 3. Inversion algorithm

Once the simulated slant optical thicknesses are obtained, the next step is to retrieve the gas density profiles and the aerosol extinction coefficient profile from a lonely channel. In this process, the Rayleigh contribution is removed from the optical thickness profile to provide a corrected optical thickness profile on which a two stage inversion is performed. The first stage is the spatial inversion which consists in inverting the corrected optical thickness profile for each subchannel : the retrieval of the extinction coefficient profile  $\sigma^{ext}(\lambda)$  uses the "onion peeling" principle {Tallamaraju, 1975], run from the top down to the bottom of the atmosphere. In the second stage, these extinction coefficient profiles are used in order to reconstruct the molecular density and acrosol extinction profiles. The extinction coefficient (corrected from Rayleigh contribution) at a given Z is expressed by

$$\sigma^{ext}(\lambda) = \sum_{k=1}^{m} d_{gas_{k}} \cdot \sigma^{gas_{k}}_{mol} + \sigma^{ext}_{aero,\lambda_{a}} \left(\frac{\lambda}{\lambda_{o}}\right)^{-\alpha} \quad (3)$$

where  $\lambda_{\sigma}$  is the mid-wavelength of the channel, the Ångatröm law being used for the aerosol model, with  $\alpha$  as the unknown Ångström coefficient over the small wavelength range of the resolved channel. The altitude Z has been removed so that the notation is simplified. The aerosol term needs to be developed in order to have a linear regression on this system. Within each channel  $(\lambda - \lambda_{\sigma}) = \Delta \lambda$  is very small compared to  $\lambda_{\sigma}$ , therefore the term can be developed up to the second order. So the previous equation can be written as :

$$\sigma^{ext}(\lambda) = \sum_{k=1}^{m} d_{gas_k} \cdot \sigma^{gas_k}_{mal} + \sigma^{ext}_{aero,\lambda_0} (1 + a\Delta\lambda + b\Delta\lambda^2)$$
(4)

where a and b depend on  $\lambda$  and  $\alpha$ . The sum is conducted on all k gases considered in each channel (see Table 1).



Figure 1. SAGE III inversion Algorithm results for solar channels 2 and 3. Part a) is for  $NO_2$  and b) is for  $O_3$  (see Table 1). The retrieved profiles with the corresponding error bars are compared to the input profile on the left panel. On the right panel, the relative difference is shown along with the relative dispersion next to each constituent.

### BAZUREAU ET AL.: SAGE III INVERSION ALGORITHM



Figure 2. Same as Figure 1 but for lunar channels 1 and 4. Part a) is for NO3 and b) is for OCIO (see Table 1). The retrieved profiles with the corresponding error bars are compared to the input profile on the left panel. On the right panel, the relative difference is shown along with the relative dispersion next to each constituent.

Under a matrix form, the previous equation written for all the wavelengths of the spectral band is :

ž

where  $\hat{\beta}$  is the best linear unbiased estimator for  $\beta$  and X' is the transposed matrix of X.

$$^{***} = X \cdot \beta \tag{5}$$

with

$$\Sigma^{ext} = \begin{pmatrix} \sigma^{ext}(\lambda_1) \\ \vdots \\ \sigma^{ext}(\lambda_2) \\ \vdots \\ \sigma^{set}(\lambda_2) \end{pmatrix} \text{ and } \beta = \begin{pmatrix} d_{gas_1} \\ \vdots \\ d_{gas_m} \\ \sigma^{set}_{aero,\lambda_0} \\ \gamma \\ \eta \end{pmatrix}$$
(6)

and

$$X = \begin{pmatrix} \sigma_{moi}^{gas_1}(\lambda_1) & \cdots & \sigma_{moi}^{gas_m}(\lambda_1) & 1 & \Delta\lambda_1 & \Delta\lambda_1^2 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \sigma_{moi}^{gas_1}(\lambda_1) & \cdots & \sigma_{moi}^{gas_m}(\lambda_1) & 1 & \Delta\lambda_1 & \Delta\lambda_1^2 \\ \vdots & \vdots & \vdots \\ \sigma_{moi}^{gas_1}(\lambda_n) & \cdots & \sigma_{moi}^{gas_m}(\lambda_n) & 1 & \Delta\lambda_n & \Delta\lambda_n^2 \end{pmatrix}$$

where n is the number of subchannels within the channel (see Table 1). Then  $\beta$  is a (m+3)-size parameter vector, constituted with the unknown to be determined :  $d_{gave}$ ,  $\sigma_{asro, s_0}^{szt}$ ,  $\gamma$  and  $\eta$ , where  $\gamma$  and  $\eta$  are respectively defined by  $\gamma = -\sigma_{asro, \lambda_0}^{szt}$ ,  $\frac{\alpha}{\lambda_0}$  and by  $\eta = \sigma_{asro, \lambda_0}^{szt}$ . The  $(n,m+\gamma)$ -size matrix X is very easy to build, it only

The  $\{n,m+3\}$ -size matrix X is very easy to build, it only depends on known gas cross sections considered within the wavelength domain. The solution of least squares technique used for the retrieval of the vector  $\beta$  is summarized in the Moore-Penrose equation f matrix inversion [Searle, 1990].

$$\hat{\boldsymbol{\beta}} = (\boldsymbol{X}^{-}\boldsymbol{X})^{-1}\boldsymbol{X}^{\prime}\cdot\boldsymbol{\Sigma}^{\text{ext}}$$
(8)

The unccetainties on the SAGE III measurements will obviously be reflected in the retrieved results. To estimate these uncertainties, a Monte Carlo technique is used [*Bevington*, 1992]. One thousand sets of measurements are simulated, by adding normally distributed random error to the



Figure 3. SAGE III Inversion Algorithm results in the  $NO_2$  solar channel 2. The acrossil retrieved profile with the corresponding error bars is compared to the input profile on the top panel. On the bottom panel, the relative difference is shown along with the relative dispersion.

mean simulated slant optical thickness, assuming an  $\mathcal{X}''_{\infty}$  constant uncertainty over each channel and at each tangent altitude. The SAGE III signal to noise S/N performance for the solar and the lunar measurements will be significantly different [*Chu et al.*, 1997], so two different values of  $\mathcal{X}$  have been selected : 3% for the solar mode and 9% for the lunar mode. We also account for 1% uncertainty on the geometrical path due to temperature uncertainties, using the same treatment as before. Those sets are inverted to retrieve the species profiles. The mean profile of each constituent is derived from the thousand retrieved ones along with the corresponding standard deviation which will provide the error bar for each component

### 4. Results and Discussion

The inversion algorithm for SAGE III solar data, in the nitrogen dioxide resolved channel (433-450 nm, 1 nm resolution), can lead to acrosol,  $O_3$  and  $NO_2$  profiles. The  $NO_2$ profile is shown in Figure 1a-(left panel); the relative systematic error, or relative bias, and the relative dispersion, both appear in the right pan.l. The relative difference is defined as the difference between input data and inverted data and divided by inverted data, expressed in percent, and the relative dispersion is the ratio between the standard deviation and the retrieved value at each altitude, expressed in percent. The relative bias is about 0.8% to 0.4% in the 15-60 km altitude range; the relative dispersion is about 12% to 5% in the same altitude range. With the same occultation mode, in the Chappuis resolved channel (559-624 nm, 3 nm resolution), the algorithm provides  $O_3$  and aerosal profiles. The  $O_3$  profile is displayed in Figure 1b-(left panel); the relative bias and the relative dispersion appear on the right panel. The bias is less than 0.5% to 0.2% above 10 km, with ome peaks of 6% under 10 km. The relative dispersion is about 20% to 4%

For SAGE III hurar data, in the nitrogen trioxide resolved channel (640-680 nm, 1.5 nm resolution), the algorithm can retrieve  $O_3$ , aerosol and nitrogen trioxide profiles. The  $NO_3$ is retrieved with a systematic error of about 2 to 1% in the 40-50 km altitude range and a rather high relative dispersion about 60% to 10% in the 25-60 km altitude range (Figure 2a). In the chlorine resolved channel (407-420 nm, 1.5 nm resolution), aerosol,  $O_3$ ,  $NO_4$  and chlorine dioxide profiles can be retrieved. The OCIO profiles are retrieved with a relative bias smaller than 2 to 1% from 15 km to about 60 km altitude and a high relative dispersion of 60% to 20% in the same altitude range (Figure 2b). In spite of the low precision, the lunar occultation mode is worth using because it allows to monitor nighttime minor species.

In all the considered channels, the other constituents involved (aerosols,  $O_{1...}$ ) can also be satisfactorily retrieved [Bazurean et al., 1999a; Bazurean et al., 1999b]. For example, the aerosol retrieved profile, shown in Figure 3, is inverted from the  $NO_2$  solar channel data : the aerosol extinction profile is provided with a relative bias of less than 0.5% in the whole altitude range (0-40 km). The relative dispersion is about 10% to 4%.

From the results above, one can conclude that the systematic error (or bias) caused by the inversion process is more than 5 times smaller than the random error. Thus, the quality of the retrieved profiles depends mainly on the measurement uncertainties. Other profiles of the various species are under study to get a good estimate of the capability of the algorithm in different situations

Acknowledgments. The work is accomplished with financial support from PNCA (contract no 355-113). We are grateful to J.B. Renard for providing his data and to D. Andriamanalina and G. Wlodarczak for helpful discussions. We also thank the SAGE III team for providing useful informations on the channels.

#### References

Angetrum, A., On the Atmospheric Transmission of Sun Radiation and on Dust in the Air, Geogr. Ann.H. 11, 156-166, 1929.

- Bazureau, A., Brogniez C. and Lenable J., Nitrogen dioxide and ozone retrieval from simulated SAGE III transmission measurements, presented in Optical Science, Engineering and Instrumentation, SPIE 99, Denver, Colorado, 1999a.
- Bazureau, A. and Brogniez C., Inference of nitrogen trioxide and chlorine dioxide profile from simulated SAGE III transmission measurements, presented in *International Symposium an Spec*tral Sensing Research, Systems and Sensors for the New Mulennum, Las Vegas, Nevada, October 31st - November 4th, 1999b.
- Bevington, P.R. and Robinson D.K., Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences, WCB / MacGraw-Hill, 1992.
- Chu, W.P., Zawodny J., McCormick M.P. and the SAGE III Transmission Level 1B ATBD Team, SAGE III Algorithm Theoretical Basis Document (ATBD), Transmission Level 1 Products, NASA, Version 1.1, November 1997.
- Chu, W.P., McCormick M.P., Lenoble J., Brogniez C. and Pravost P., SAGE II Inversion Algorithm. J. Geophys. Res, 94, D6, 8339-8351, 1989.
- Deters, B. and Hurrows J.P., Bremen University, personal communication, 1998.
- Lenoble, J., Atmospheric Radiative Transfer, A. Deepak Publishing, 1993.
- Mérienne, M.F., Coquart H. and Jonouvrier A., The NO2 Absorption Spectrum, II Absorption Cross Section at Low Temperatures in the 400-500 nm region, J. Atmos. Chem., 21251-21261, 1995.
- Renard, J.B., Pirre M., Robert C., Morcau G., Hugnenin D. and Russell J.M., Nocturnal Vertical Distribution of stratospheric O3, NO2 and NO3 from ballons measurements, J. Geophys. Res, 101, D22, 28793, 1996.
- Searle, S.R., Linear Model, John Wiley & Sons, New York, 1990.
- Shettle, E.P. and Anderson S., New Visible and Near IR Ozone Cross Sections for MODTRAN, Proceeding of the 17th Annual Review Conference on Atmospheric Transmission Models, Special Reports No274, 335-345, Phillips Laboratory, PL-TR-95-2060, June 1994.
- Tallamaraju, R.K., Inference of stratospheric minor constituents from satellite limb radiant intensity measurements, Report 011023-3-T. HAEL, Univ. Michigan, Ann Arber, MI, 152pp., 1975.
- Wahner, A., Tyndall G. and Ravishankara A., Absorption cross sections for OCIO as a function of temperature in the wavelength range from 240 to 490 r. a.J. Phys. Chem., 91, 2734, 1987.

A. Bazureau and C. Brognez, Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Université des Sciences et Technologies de L.<sup>19</sup> <4035 Villeneuve d'Aseq, France. (e-mail: Ariane Bazureau 49-0 bilet.fr)

J. Lenoble, IRSA, Université Joseph Fourier, 17 Quai Clia Bernard, 38000 Grenoble, France

(Received January 11, 2600, revised June 21, 2690; accepted June 22, 2000.)

### Inference of nitrogen trioxide and chlorine dioxide profile from simulated SAGE III transmission measurements

### A. Bazureau and C. Brogniez

### Présented in International Symposium on Spectral Sensing Research, Systems and Sensors for the New Millennium,

Las Vegas, Nevada, October 31 st - November 4 th, 1999.

### Inference of nitrogen trioxide and chlorine dioxide profile from simulated SAGE III transmission measurements

### A. Bazureau and C. Brogniez

Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Université de Sciences et Technologies de Lille, France.

### ABSTRACT

A detailed discussion on the inversion algorithm developed by the Laboratoire d'Optique Atmosphérique. University of Lille, France, for the analysis of the Stratospheric Aerosol and Cas Experiment III (SAGE III) lunar occultation data is presented. The scope of the paper is limited to night-time constituents NO<sub>3</sub>, OCIO and to O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub> and aerosol retrieval. The forward model algorithm for calculating atmospheric transmittances in two of the SAGE III lunar channels, 403 nm and around 640 nm, is presented. Then the inversion algorithm is introduced, accomplished in two sequential steps : the first one is the spatial inversion of the simulated slant optical thickness profile to obtain the extinction coefficient profile and the second is the spectral inversion of the extinction coefficient at each altitude to separate gas and aerosol contributions by using a least squares method over the spectral signatures. Lastly, error analysis is conducted by a Monte Carlo technique and discussed : the chlorine and nitrogen trioxide retrieved densities favourably compare to the corresponding input profiles.

KEYWORDS : Chlorine dioxide - Nitrogen trioxide - Lunar Occultation - SAGE III - Inversion Algorithm.

#### 1. INTRODUCTION

The Stratospheric Aerosol and Gas Experiment III (SAGE III) is a critical part of the Earth Observing System (EOS) program for the understanding of atmospheric constituent trends (Chu et al. 1996). An important part of the EOS program is the routine monitoring of the ozone trends and depletion in the low and middle stratosphere, especially in the polar regions. This can be easily done by an occultation method, well suited to monitoring long-term trends in atmospheric composition. SAGE III is the fifth generation of solar occultation instruments, assisted by a lunar occultation mode, whose first flight is planned to be launched in the spring 2000 on the polar orbit spacecraft METEOR 3M. Compared to its predecessor, SAGE II, some improvements have been carried out : there is an aerosol channel at 1550 nm with a pt.\_todiode detector and the main detector is a CCD linear array spanning the 280-1040 nm range. The lunar occultation mode will allow to retrieve night-time species NO<sub>3</sub> and OClO in the associated resolved channels : the nitrogen trioxide absorption band in the wavelength domain 640-680 nm, divided in 25 subchannels, 0.8 nm wide, and the chlorine dioxide absorption band in the wavelength domain 403-420 nm, divided in 9 subchannels, 1.8 nm wide. Thanks to the two occultation modes, the geographical coverage of SAGE III is increased. Finally, the vertical resolution of SAGE III has been reduced to 0.5 km against to 1 km for SAGE II.

The LOA and the LaRC (Chu et al. 1989) have developed independently two inversion algorithms for SAGE II solar occultation measurements. For the LOA inversion, the seven channels were handled altogether to retrieve the vertical profiles of the extinction coefficient or number density of each species. The current inversion algorithm for SAGE III shows that it is possible to invert the measurements with a quite different approach ; a preliminary outcome har been obtained for the solar resolved channels for the retrieval of daytime constituents such as  $O_3$ ,  $NO_2$  and aerosols (Bazureau et al. 1999). Now, the two previous lunar resolved channels are used for retrieving the  $NO_3$  and OCIO number density profiles independently of all other channels. Since the measurements are not available, the work has been conducted on simulated transmission (or tangent optical thickness) profiles computed for an atmosphere constituted with known molecular density profiles such as nitrogen trioxide, chlorine dioxide, ozone and nitrogen dioxide and known aerosol extinction coefficient at each altitude, followed by a spectral inversion of the simulated optical thicknesses leading to extinction coefficient at each altitude, followed by a spectral inversion at each altitude, that uses a generalized least squares technique.

The following paper is therefore splitted in 3 parts. Section 2 describes the atmospheric transmission simulation. The mathematical method for inversion and the error analysis are detailed in section 3. Finally section 4 contains the results

#### 2. FORWARD PROBLEM

The simulation of the atmospheric transmission profiles is necessary for testing if the inversion algorithm is able to retrieve properly the initial physical quantities, used for the direct problem; the forward model will serve to estimate the validity of the approximations made in the data analysis. The forward model will also allow to quantify the instrument performances after the launch and identify any problems.

The atmospheric transmission modelling is developed from climatological profiles of gas densities and aerosol extinction coefficient. The NO<sub>3</sub>, O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub> and aerosol extinction profiles are provided by Renard et al. (Renard et al. 1996). The chlorine dioxide profile is given by Renard (personal communication). In that case, an ideal atmospheric model is considered : it is constituted of 125 meters thick concentric homogenous layers, from the ground to the top, fixed to an altitude of 60 km.

The transmission profile is computed every 0.5 km (as it will be measured by SAGE III instrument), on each tangent height of the line-of-sight and each wavelength, interpolating inside each layer the pressure and temperature values, provided as well as the molecular densities. The contributions of each constituent, are added layer by layer for estimating the transmission. In this work, two spectral domains are used, the nitrogen trioxide absorption band around 640 nm and the chlorine band around 403 nm.

#### 2.1. Atmospheric transmission model

The line of sight is characterized by the tangent altitude, which is the minimal altitude of the line-of sight above the ground. If L is the irradiance measured by the instrument at the tangent height  $Z_{ts}$  for any given subchannel  $\lambda$  of a channel, then the monochromatic slant-path transmission can be expressed as the ratio between L and the irradiance measured above the terrestrial atmosphere. According to the Bouguer Law, the transmission function at tangent height  $Z_t$  is related to the total slant optical thickness  $\tau(\lambda, Z_t)$  is defined by :

$$\tau(\lambda, Z_i) = \int \sigma^{ev}(\lambda, Z) dl(\lambda, Z, Z_i)$$
(1)

 $\sigma^{ext}(\lambda, Z)$  is the total extinction coefficient and  $I(\lambda, Z, Z_r)$  is the geometric slant path corrected for the refraction. The total extinction coefficient is a linear combination of the extinction of each species in the atmosphere as given by :

$$\sigma^{ext}(\lambda, Z) = \sigma^{stal}_{Rayleigh}(\lambda, Z) + \sigma^{ext}_{aerosol}(\lambda, Z) + \sum_{i}^{2} \sigma^{ext}_{gas_{i}}(\lambda, Z)$$
(2)

 $\sigma_{\text{Rayleigh}}^{\text{scal}}(\lambda, Z)$  is the coefficient for Rayleigh scattering, and  $\sigma_{\text{gas}_i}^{\text{ext}}(\lambda, Z)$  and  $\sigma_{\text{actual}}^{\text{ext}}(\lambda, Z)$  are respectively the extinction coefficients for the gas i and acrossl at wavelength  $\lambda$ , they are explained in the following. The sum is conducted on all gas i, considered in a wavelength domain where they have an important contribution due to their molecular absorption cross section.

### 2.2. Atmospheric constituent extinction coefficients modeling

#### 2.2.1. Rayleigh Scattering

The Rayleigh scattering coefficient is taken from Lenoble (Lenoble 1993) :

$$\sigma_{Rayleigh}^{scut} = B(\lambda) \cdot \frac{P(Z)}{T(Z)}$$
(3)

where  $B(\lambda)$  and  $a(\lambda)$  are given by

$$B(\lambda) = 4.6732.10^{-8} \cdot \frac{a^2(\lambda)}{\lambda^4}$$
 and  $a(\lambda) = 77.46 + \frac{0.459}{\lambda^2}$ 

(4)

with  $\sigma_{Rayleigh}^{scat}$  expressed in km<sup>-1</sup>.  $\lambda$  in  $\mu m$  and P in mb.

### 2.2.2. Ozone absorption coefficient

For O<sub>3</sub>, the extinction coefficient at  $\lambda$  is determined by the product of the ozone number density d<sub>o2</sub> and the ozone absorption cross section  $\sigma_{mol,\lambda}^{O_3}$ .

The ozone absorption cross sections are provided by Shettle et al. (Shettle et al. 1994) over a spectral coverage from 407 nm to 762 nm, with a 0.1 nm resolution, at stratospheric temperatures 180 K, 200 K, 220 K and 240 K.

### 2.2.J. Nitrogen dioxide absorption coefficient

In the same way, the NO<sub>2</sub> absorption coefficient is derived from  $d_{NO2}$  and  $\sigma_{mol,\lambda}^{NO_2}$ .

The nitrogen dioxide absorption cross sections are provided by Mérienne et al. (Mérienne et al. 1995), over the domain from 400 to 500 nm, for the temperatures 240 K and 220 K, with a 0.01 nm resolution. The data for temperature 293 K, with an extended spectral range from 300 to 700 nm, are also available with the same resolution.

### 2.2.4. Nitrogen Trioxide absorption coefficient

As previously, the NO<sub>3</sub> absorption coefficient is determined from  $d_{NO_3}$  and  $\sigma_{mol,\lambda}^{NO_3}$ .

The nutrogen trioxide absorption cross sections are provided by Deters et al. (Deters et al. 1998), over the domain from 617.97 to 704.9 nm, for the temperature 243.15 K, with a 0.2 nm resolution.

#### 2.2.5. Chlorine Dioxide absorption coefficient

Finally, the OCIO obsorption coefficient is deduced from docto and  $\sigma_{mol,k}^{OCIO}$ .

The chlorine absorption cross sections are provided by Renard (Wahner et al. 1987), over the domain from 242.52 to 475.95 nm, with a 0.1 nm resolution.

### 2.2.6. Aerosol extinction coefficient

The aerosol extinction coefficient is a function of aerosol size distribution. For simplicity, the aerosol model is chosen to follow the Angström law :

$$\sigma_{\text{acrosal}}^{\text{cur}}(\lambda) = \sigma_{\lambda_{\text{ref}}}^{\text{eut}} \left(\frac{\lambda}{\lambda_{\text{ref}}}\right)^{-\alpha_{\text{ref}}}$$
(5)

where  $\sigma_{\lambda_{ref}}^{ext}$  is the acrosol extinction coefficient in km<sup>-1</sup> at a reference wavelength, chosen equal to  $\lambda_{ref} = 1020 nm \cdot \alpha_{ref}$  is the Angström law coefficient, characteristic of the acrosol particle size (Lenoble et al. 1983). The Angström law is only a coarse approximation for many zerosols, which have a middle size and a one-mode size distribution. For the simulation of the acrosol extinction coefficient at each wavelength, the  $\alpha_{ref}$  value has been fixed to 1. This parameter can be changed if necessary.

### **3. INVERSION**

Once the simulated slant optical thicknesses are obtained the following work is to retrieve the gas density profiles and the acrosol extinction coefficient profile.

While calculating the path length profile, the Rayleigh contribution is removed from the optical thickness profile to provide a corrected optical thickness profile on which a two stage's inversion is performed.

The first stage is to invert the corrected optical thickness profile for each subchannel  $\lambda$ : the retrieval of the extinct coefficient profile  $\sigma^{cr}(\lambda)$  uses the "onion peeling" principle (Tallamaraju 1975), run from the top down to the bottom the atmosphere. The altitude Z has been removed so that the notation is simplified.

In the second stage, the spectral inversion is the reconstruction of the molecular density profiles and aerosol extinction profile, from the extinction coefficient for each altitude and for each wavelength. The extinction coefficient (corrected from Rayleigh contribution) is expressed by

$$\sigma(\lambda) = d_{gus}, \sigma_{mol}^{gas_1}(\lambda) + \ldots + d_{gas_1}, \sigma_{mol}^{gas_1}(\lambda) + \ldots + \sigma_{aero,\lambda_0}^{ext}\left(\frac{\lambda}{\lambda_0}\right)^{-\alpha}$$
(6)

where  $\lambda_0$  is the mid-wavelength of the channel, the Angström law being used for the aerosol model, with  $\alpha$  as the Angström coefficient. The gas terms are developped, accounting for the important gas in the considered wavelength domain. The aerosol term needs to be developped in order to have a linear regression on the system. Within each changed

 $(\lambda - \lambda_o) = \Delta \lambda$  is very small compared to  $\lambda_o$ , therefore the term  $\sigma_{aero,\lambda_o}^{en} \left(\frac{\lambda}{\lambda_o}\right)^{-\alpha}$  can be developed up to the second

order :

$$\sigma_{\alpha\sigma\sigma\nu,\lambda_{o}}^{ess}\left(\frac{\lambda_{o}+\Delta\lambda}{\lambda_{o}}\right)^{a} \equiv \sigma_{\alpha\sigma\sigma\lambda_{o}}^{ess}\left(1-\alpha,\frac{\Delta\lambda}{\lambda}+\frac{\alpha(\alpha+1)}{2}\left(\frac{\Delta\lambda}{\lambda_{o}}\right)^{2}\right)$$
(7)

)

1 3

So (8) can be expressed as :

$$\sigma^{ext}(\lambda) = d_{gas_1} \cdot \sigma^{gas_1}_{mot}(\lambda) + \ldots + d_{gas_1} \cdot \sigma^{gas_1}_{mot}(\lambda) + \ldots + \sigma^{ext}_{aera,\lambda_p} \left( 1 + a\Delta\lambda + b\Delta\lambda^2 \right)$$
(8)

Where a and b depend on  $\alpha$  and  $\lambda$ .

Under a matrix form, the previous equation written for all the wavelengths of the spectral band gives:

$$\begin{pmatrix} \sigma^{ext}(\lambda_{1}) \\ \vdots \\ \sigma^{ext}(\lambda_{1}) \\ \vdots \\ \sigma^{ext}(\lambda_{n}) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sigma^{gas_{1}}(\lambda_{1}) & \dots & \sigma^{gas_{1}}(\lambda_{1}) & 1 & \Delta\lambda_{1} & \Delta\lambda_{1}^{2} \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \sigma^{gas_{1}}(\lambda_{1}) & \dots & \sigma^{gas_{1}}(\lambda_{1}) & 1 & \Delta\lambda_{n} & \Delta\lambda_{n}^{2} \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \sigma^{gas_{1}}(\lambda_{n}) & \dots & \sigma^{gas_{nod}}(\lambda_{n}) & 1 & \Delta\lambda_{n} & \Delta\lambda_{n}^{2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} u_{gas_{1}} \\ \vdots \\ d_{gas_{nod}} \\ \sigma^{ext}_{aero} \\ \gamma \\ \eta \end{pmatrix}$$

Where n is the number of subchannels within the channel (25 for the NO<sub>3</sub> channel and 9 for the OCIO channel) and where  $\gamma$  and  $\eta$  are defined by :

$$\gamma = -\sigma_{acro,\lambda_o}^{ext} \cdot \frac{\alpha}{\lambda_o}$$
(10)

and

$$\eta = \sigma_{acro,\lambda_o}^{cu} \cdot \frac{\alpha(\alpha+1)}{2\lambda_o^2}$$
(11)

The regression scheme is summarized by

$$\sigma^{en} = X.\beta \tag{12}$$

Where  $\beta$  is a p-size parameter vector, constituted with the unknowns to be determined :  $d_{gau_i}, \sigma_{acro, \lambda_0}^{ext}, \gamma \, \text{et} \eta$ .

The (n,p)-size matrix X is very easy to built, it only depends on known gas cross sections considered within the wavelength domain.

The solution of least squares technique used for the retrieval of the vector  $\beta$ , depicted by Saporta (Saporta 1990), is summarized in the following equation using the Moore-Penrose equation for matrix inversion.

$$b = (X'X)^{-1}X'.\sigma^{ext}$$
(15)

Where b is the best linear unbiased estimator (b.l.u.e.) vector for  $\beta$  (Searle 1990) and where the notation X' indicates that it is the transposed matrix of X.

As the SAGE III measurements will be obtained with uncertainties, the retrieved constituents will also be determined with uncertainties. For estimating these uncertainties, a Monte Carlo technique is used (Bevington 1992).

Thousand sets of measurements are simulated, by adding normally distributed random error to the mean simulated slant optical thickness, assuming a 3% constant uncertainty over each channel and at each tangent altitude. We also account for 1% uncertainty on the geometrical path due to temperature uncertainties, using the same treatment as before : a normally distributed random error is introduced in the geometrical path values during the spatial inversion. Those sets are inverted to retrieve the species profiles. The mean profile of each constituent is derived from the thousand retrieved profiles along with the corresponding standard deviation profile, that will furnish the error bars for each parameter profile.

### 4. RESULTS

The results from a typical retrieval simulation are shown to demonstrate the ability of the algorithm to retrieve nitrogen trioxide, chlorine, nitrogen dioxide, *s*-me and aerosol profiles from realistic simulated data in the two spectral bands.

#### 4.1. Nitrogen Trioxide Band

The first study is performed for the NO<sub>3</sub> channel which is a spectral domain [640-680 nm], with 0.8 nm resolution, so that there are 25 subchannels in this band. The inversion is applied to 25 wavelengths and the comparison between the input data and retrieved data is made for the nitrogen trioxide and ozone number densities and for the acrosol extinction coefficient at the mid-wavelength, at 660 nm.

Figure 1 shows the retrieved profiles, with standard deviation as error bars, together with the input ones (left panels), while the relative difference profiles (defined as the difference between input data and inverted data and divided by inverted data, expressed in percent) are drawn in the right panels. It appears that the agreement for the retrieved nitrogen trioxide profile (part 1 is well within 2% between 20 and 58 km. Ozone (part b) is retrieved within 1 to 2% between 10 and 60 km, with some aximum relative differences of 3 %. Finally, the 660 nm aerosol extinction (in the part c) is retrieved with relative differences within about 2 % in the whole altitude range with only relative difference of 6 to 10% at some altitudes. The aerosol relative difference drops in 1% under the altitude of 25 km.

The comparison between the previous relative difference, which is an estimate of the relative bias or system and the relative dispersion (the ratio between the standard deviation and the retrieved value at each altitude end or system) is bigger by a factor of 5 to 25 for the nitrogen trioxide, by a factor of 10 to 70 ozone retrieval and by a factor of about 5 to 80 for the aerosol retrieval. So that, the bias can be neglected compare where random error.

### 4.2. Chiorine Diozide Bat 1

The same treatment has be, a conducted for the chlorine dioxide channel, which is a [403-420 nm] wavelength range, with 9-subchannels, 1.8 nm resolution. Figure 2 shows that chlorine (part a) is retrieved to about 0.5 to 1% between 10 and 60 km, with some maximum relative differences of 2 %. Nitrogen dioxide (part b) is well retrieved within 1% in the altitude range of 10-60 km. Lastly, the aerosol profile at 413.5 nm (part c) is well retrieved within 0.5% in the altitude range from 60 hm down to the ground, with some peaks of about 2 to 4%.

The computison between the relative difference and the relative dispersion in the chlorine dioxide channel shows that the relative dispersion is bigger of a factor of 5 to 80 for the chlorine dioxide retrieval, of a factor of about 5 to 30 for nitrogen dioxide retrieval and of a factor of about 5 to 40 for the aerosol retrieval. This confirms that the bias is negligible compared to the random error.



Figure 1 : Nitrogen trioxide spectral domain [640-680 nm] results. The retrieved profiles with the corresponding error bars are compared to the input profiles on the left panet. On the right panel, the relative difference is shown beside each constituent. Part a) is for nitrogen trioxide, b) is for ozone and c) is for aerosols.







Figure 3 : Correlation between the relative contribution of each species to extinction coefficient (left panel) and the relative difference (right panel) in the nitrogen trioxide channel. Part a) shows the nitrogen trioxide retrieval, Part b) the ozone one and Part c) the serosol one.



Figure 4 : Correlation between the relative contribution of a species to extinction coefficient (left panel) and the relative difference (right panel) in the chlorine dioxide channel. Part a) shows the chlorine retrieval, Part b) the nitrogen dioxide one and Part c) the aerosol one.
#### 4.3. Inversion algorithm 's performances

The correlation between the relative difference value for the constituent considered and the relative contribution of this constituent to the total extinction coefficient, from which Rayleigh contribution has been deducted, is obvious on Figures 3 and 4 (for both channels). As expected, the less the relative contribution of the constituent is, the bigger the relative difference is. The lower limit for the relative contribution to extinction coefficient for all constituents is about 1% to enable a retrieval better than 2% on the relative difference.

#### **5. CONCLUSION**

The inversion algorithm for SAGE III data, in the nitrogen trioxide resolved channel, can provide nitrogen trioxide profiles with a systematic error of about 1% in the altitude range 10-50 km, ozone profile with an uncertainty within 1% and acrosol extinction profile within 2% with some peaks at 6% in the altitude range 60 km to the ground. It can also provide, chlerine dioxide profiles with a systematic error smaller than 1% from about 10 km to about 60 km altitude, nitrogen dioxide profile with an uncertainty smaller than 1% and acrosol one retrieved within about 0.1% to 1%, with some peaks at 2%. The quality of the retrieved profiles depends mainly on the measurement uncertainties. The systematic error (or bias) caused by the inversion process is smaller than the random error (expressed by the relative dispersion) of a factor bigger than 5.

For retrieving all the constituents number density profiles, the inversion algorithm's performance is better when the contribution to the total extinction coefficient, from which Rayleigh contribution is removed, is more important. The lower limit for the relative contribution to extinction coefficient for all species is about 1% to enable a retrieval better than 2% on the relative differences. The same inversion algorithm, applied to the solar occultation data, can retrieve nitrogen dioxide and ozone profiles in a better agreement, because of the stronger relative contribution of all constituent in the total extinction coefficient (Bazureau et al. 1999). In contrast to solar occultation mode, the lunar occultation mode can be conducted for minor constituent retrievals such as chlorine dioxide and nitrogen trioxide with a rather good precision.

#### REFERENCES

Bazureau, A., Brogniez C. and Lenoble J., Nitrogen dioxide and ozone retrieval from simulated SAGE III transmission measurements, presented in "Optical Science, Engineering and Instrumentation", SPIE 99, Denver, Colorado, 1999.

Bevington, P.R. and Robinson D.K., Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences, WCB / MacGraw-Hill, 1992.

Chu, W.P., Zawodny J. and McCormick M.P., SAGE III Algorithm Theoretical Basis Document, Transmission Level 1 Products, NASA, Version 1.0, November 1996.

Chu, W.P., McCormick M.P., Lenoble J., Brogniez C. and Pruvost P., SAGE II Inversion Algorithm, J. Geophys. Res, 94, D6, 8339-8351, 1989.

Deters, B. and Burrows J.P., Bremen University, personal communication, 1998.

Lenoble J. and Pruvost P., Inference of the Acrosol Angstrom Coefficient from SAGE Short-wavelength data, J. Clun. Appl. Meteor., 22, 10, 1717-1725, 1983.

Lenoble, J., Atmospheric Radiative Transfer, A. Deepak Publishing, 1993.

Mérienne, M.F., Coquart B. and Jenouvrier A., The NO2 Absorption Spectrum, II Absorption Cross Section at Low Temperatures in the 400-500 nm region, J. Atmos. Chem., 21251-21261, 1995.

Renard, J.B., Pirre M., Robert C., Russell J.M. and Huguenin D., Nocturnal Vertical Distribution of stratospheric O3, NO2 and NO3 from ballons measurements, J. Geophys. Res, 101, D22, 28793, 1996.

Saporta, G., Probabilités et Analyse des données et Statistiques, Technip, Paris, 1990.

Scarle, S.R., Linear Model, John Wiley & Sons, New York, 1990.

Shettle, E.P. and Anderson S., New Visible and Near IR Ozone Cross Sections for MODTRAN, Proceeding of the 17<sup>th</sup> Annual Review Conference on Atmospheric Transmission Models, Special Reports Nº274, 335-345, Phillips Laboratory, PL-TR-95-2060, June 1994.

Tallamaraju, R.K., Inference of stratospheric minor constituents from satellite limb radiant intensity measurements, Report 011023-3-T, HAEL, Univ. Michigan, Ann Arbor, MI, 152pp., 1975.

Wahner, A., Tyndall G. and Ravishankara A., Absorption cross sections for OCIO as a function of temperature in the wavelength range from 240 to 490 nm, J. Phys. Chem., 91, 2734, 1987.

SAGE III measurements: a study on the retrieval of ozone, nitrogen dioxide and aerosol extinction coefficients

C. Brogniez, A. Bazureau, J. Lenoble and W.P. Chu

Soumis à Journal of Geophysical Research

# SAGE III measurements : a study on the retrieval of ozone, nitrogen dioxide and aerosol extinction coefficients.

C. Brogniez<sup>1</sup>, A. Bazureau<sup>1</sup>, J. Lenoble<sup>1,2</sup>, W.P. Chu<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire d'Optique Atmosphérique / CNRS, Université des Sciences et Technologies de Lille, Villeneuve d'Ascq, France.

<sup>2</sup>Interactions Rayonnement Solaire Atmosphère, Grenoble, France.

<sup>3</sup>NASA Langley Research Center, Hampton, Virginia, USA.

# Abstract

This paper presents the different inversion algorithms that the Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA) propose to apply to the Stratospheric Aerosol and Gas experiment (SAGE) III extinction measurements for retrieving the aerosol and gas components of the Earth atmosphere. SAGE III is an upgraded version of SAGE II: the main improvements are the larger number of channels, including several resolved channels and a channel centered near 1.55 um, a higher vertical resolution and a lunar occultation mode. The species retrieval from the transmission measurements can be achieved via the application of the inversion algorithms that were developed for SAGE II with only minor changes: it is the first LOA inversion technique, called the "global-analysis" algorithm, where, after a spatial inversion, all the channels are handled altogether for species separation by using an iterative method. For SAGE III instrument the ozone and nitrogen dioxide components can also be retrieved independently from two specific resolved channels by using their spectral signature over a small wavelength range; this second LOA inversion technique is called "reduced-analysis" leading only to the ozone and NO<sub>2</sub> concentrations and to the aerosols at two wavelengths. Since these later retrievals are shown to be of better quality it is further possible to use them in the "global-analysis" algorithm for aerosol separation in the other channels; the resulting method will be called a "comoined-analysis" Since SAGE III launch is only planned in the Fall of 2001, these three techniques, the "globai analysis", the "reduced-analysis" and the "combined-analysis", have only been applied on simulated measurements restricted to the solar case. The results and performances have been compared for various atmospheric models accounting for some existing uncertainties. The three methods perform very well in case of

nominal data; when uncertainties are added to the measurements the resulted uncertainties on the retrieved results are shown to be quite large for all species and dependent on the atmospheric model for the aerosols.

#### 1. Introduction

The Stratospheric Aerosol and Gas experiment (SAGE) III is a self-calibrating, limbscanning, occultation sensor measuring the attenuation of the solar or lunar light through the Earth's atmosphere to allow routine monitoring of the high troposphere and stratosphere. The first instrument of the SAGE III series is scheduled to be launched on the polar orbit spacecraft METEOR 3M in the Fall of 2001. In the solar occultation mode, SAGE III contains 12 spectral channels over the wavelength region 0.28-1.55  $\mu$ m and is thus an improved version of its predecessor, SAGE II, which is a 7-channel instrument covering the 0.385-1.02  $\mu$ m domain. The SAGE III instrument is equipped with a CCD linear array covering the 0.28-1.02  $\mu$ m wavelength range, designed to characterize the aerosol extinction at centered wavelengths 0.385, 0.442, 0.525, 0.67, 0.757, 0.872, 0.945 and 1.02  $\mu$ m. Gaseous species NO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub> and H<sub>2</sub>O can be retrieved from the resolved channels located around 0.440, 0.6 and 0.935  $\mu$ m; the oxygen-A band absorption near 0.76  $\mu$ m will provide temperature and molecular density study. Finally a single photodiode detector centered near 1.55  $\mu$ m will expand the characterization of aerosol extinction to improve the size discrimination of large particles (Chu et al., 1997). Table 1 exhibits all the channels we plan to use.

A lunar occultation mode has been implemented on SAGE III to allow for the study of the nighttime gaseous species NO<sub>3</sub> and OCIO from resolved channels located around 0.413 and 0.66  $\mu$ m as well as O<sub>3</sub> from a resolved channel around 0.48  $\mu$ m and NO<sub>2</sub> and H<sub>2</sub>O from the same bands as in the solar mode. Thanks to the two occultation modes capability of the instrument, the SAGE III geographical coverage is enlarged allowing a closer species monitoring. The vertical resolution is expected to be 0.5 km instead of 1 km on the SAGE II instrument (Chu et al., 1997).

The retrieval of gas concentration and aerosol extinction profiles from the transmission measurements will be routinely performed by the NASA Langley Reasearch Center (LaRC) team via the application of their inversion algorithms. Similar to the SAGE II (Chu et al, 1989) and POAM 1I (Lumpe et al., 1997) experiments, the LOA team has developed independently her own algorithms for a better understanding of the measurement analysis. Furthermore, the cross comparison of results obtained from the LaRc algorithm and the LOA

2

algorithm for SAGE III measurements will provide the validation for the two different approaches.

This work has been conducted on simulated measurements to check the performances of the proposed techniques before applying them to true measurements. This theoretical study is restricted to the solar occultation measurements. Retrieval study for the H<sub>2</sub>O measurements at 0.94 µm and oxygen A-band measurements at 0.76 µm will not be considered here, that study will be treated in another work. The second part of this paper presents the forward algorithm along with the various atmospheric models used for computing the simulated transmittances in all channels. The third section describes the SAGE III data reduction with three methods: (i) the modified SAGE II LOA inversion algorithm (Chu et al, 1989), referred as "globalanalysis" technique, applied over the whole wavelength interval; (ii) the "reduced-analysis" in which O<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> are retrieved from the dedicated resolved channels alone, from 0.433 to 0.450 µm and from 0.559 to 0.624 µm respectively, by using an inversion recently developed at LOA (Bazureau et al., 2000); and (iii) a "combined-analysis" algorithm in which the information on O<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> coming from the resolved channels is used to derive aerosol extinction in the other channels from the global algorithm. Section four is dedicated to the uncertainty analysis. We have first studied the influence of a biased estimate of the temperature, the influence of an inaccurate altitude registration and then we have estimated the influence of the transmission measurement errors on the quality of the retrievals. These uncertainty studies are conducted for the combined inversion technique only. The retrieved results are analyzed in section 5 leading to the estimation of the expected accuracy on each retrieved species.

# 2. Model atmospheres and forward stage

In this forward step, we simulate the measurements that will be performed by SAGE III at each tangent altitude of the line of sight and in each spectral channel. Four atmospheric models are selected to represent typical atmospheric compositions. They are characterized by an ozone number density profile, a nitrogen dioxide number density profile and an aerosol extinction coefficient profile at a reference wavelength  $\lambda_r$  along with a specific law for the spectral variations of this extinction coefficient. We have chosen to describe the aerosol size distribution with the widely used log-normal size distribution (LND) characterized by its median radius  $r_g$  and geometric standard deviation  $\sigma_g$  (d'Almeida et al., 1991, Seinfield, 1998):

$$\frac{dN}{dr} = \frac{N_0}{r\sqrt{2\pi}\ln\sigma_g} \frac{-\frac{1}{2}\left(\frac{\ln r - \ln r_g}{\ln\sigma_g}\right)^2}{(1)}$$

where N is the number density.

Since the aerosol spectral variations are expected to be rather smooth in the SAGE III wavelength range (Russell, 1997) they can be fitted by the following equation (Brogniez and Lenoble, 1988)

$$\ln(\sigma^{aer}(\lambda)) = \ln(\sigma^{aer}(\lambda_r)) - \alpha_m \ln(\lambda/\lambda_r) - \beta_m (\ln(\lambda/\lambda_r))^2$$
(2)

 $\alpha_m$  and  $\beta_m$  can be estimated for any aerosol size distribution by using a least squares fit on the aerosol extinction coefficients computed for spherical aerosols of known refractive index.

Conversely, by assuming  $\alpha_m$  and  $\beta_m$ , one would be able to deduce the aerosol extinction coefficient profile at every wavelength from the extinction profile at  $\lambda_r$ . To complete the description of the atmospheric state, temperature and pressure profiles are chosen for the Rayleigh scattering estimation and to account for atmospheric refraction effects. The nitrogen dioxide, temperature, and pressure profiles are the same for all four of the atmospheric models used here, and the water vapor absorption continuum is neglected over the whole wavelength range. All the species profiles have been taken from SAGE II and POAM III data. Since the 1.02 µm channel is common to these two experiments, we have chosen  $\lambda_r = 1.02$  µm. Model 1 corresponds to mean gas profiles and background aerosols with large spectral variations characterizing small particles, identical over the whole altitude range. Model 2 is a variation of model 1 with a large amount of volcanic aerosols with weaker spectral variations, characterizing larger particles. Model 3 corresponder to an ozone hole situation with volcanic aerosol, while model 4 accounts for a PSC layer superimposed to background aerosol condition. The input profiles are shown in Figure 1, and table 2 summarizes the characteristics of the four atmospheric models.

To simulate the transmission measurements, or similarly, the slant optical thickness, a spherical shell model is used. The atmosphere is ideally divided into concentric homogeneous layers, 25 m thick, extended from the ground up to the top, fixed at 90 km.

The slant optical thickness are computed at each tangent height  $Z_t$ , every 0.5 km, and at each wavelength including the aerosol channels and the sub-channels of the resolved channels. To calculate the slant optical thickness, the contributions of every constituent involved at the specific wavelength are added layer by layer as follows

4

$$\tau(\lambda, Z_t) = \int \sigma^{ext}(\lambda, Z) dl(\lambda, Z, Z_t)$$
(3)

where  $\sigma^{\text{ext}}(\lambda, Z)$  is the total extinction coefficient at altitude Z :

$$\sigma^{\text{ext}}(\lambda, Z) = \sigma^{\text{scat}}_{\text{Rayl}}(\lambda, Z) + \sum_{k=1}^{p} n_{d}^{k}(Z) \cdot \sigma^{k}_{\text{mol}}(\lambda, Z) + \sigma^{\text{ext}}_{\text{aer}}(\lambda, Z)$$
(4)

 $dl(\lambda,Z,Z_{d})$  is the geometric path length corrected from refraction,  $n_{d}^{k}$  is the number density of gas k,  $\sigma_{mol}^{k}$  is the molecular absorption cross-section, and p is the number of gas contributing to the absorption in the considered channel.

The absorption cross-sections are taken from Burrows et al. (1999) at 221K for both nitrogen dioxide and ozone, these are the most up-to-date spectroscopic data available. The Rayleigh scattering coefficient is obtained from Lenoble (1993). Figure 2 shows the relative contribution to the total extinction of every atmospheric species for atmospheric model 1 at some of the measurement channels. One can observe that the Rayleigh scattering contribution is larger in the short wavelength channels due to the well-known inverse fourth power wavelength dependence, and is therefore dominating compared to the other species contributions. One can also observe as well that the aerosols dominate in the two long wavelength channels below about 35 km, they are the only contribution at 1.02  $\mu$ m. For the model with low aerosol content the aerosol contribution at short wavelengths above about 40 km is negligible.

One can then calculate, from equations 3 and 4, slant optical thickness profiles similar to those that will be measured by SAGE III. The conversion of transmission measurements during an occultation event, to transmission profiles versus altitude, requires the determination of the tangent altitude corresponding to each measurement. This conversion and determination process is rather complicated and the altitude registration process can potentially involve rather large uncertainties. In the following sections we will consider the inversion of perfect measurements as well as the inversion of realistic measurements to study how the uncertainties propagate through the inversion process.

# 3. Inversion in the ideal case

In this section we invert the nominal data of slant optical thickness computed in the forward stage, without accounting for any uncertainty.

### 3.1 Inversion in the whole wavelength range: "global-analysis"

We use here the simulated data from the channels 2, 4, 6, 7, 9, 11, 12, and from two subchannels of channel 3 where the NO<sub>2</sub> absorption is maximum (0.439  $\mu$ m) and minimum  $(0.442 \ \mu m)$ , plus from one sub-channel in channel 5 where the O<sub>3</sub> absorption is maximum (0.600 µm) and from one sub-channel in channel 10 where the H<sub>2</sub>O absorption is negligible (0.945 µm). That gives us 11 slant optical thickness profiles. The inversion begins with the removal of the Rayleigh component from the simulated slant optical thickness. For this step we need the true temperature and pressure profiles along the line of sight. We have first assumed that the true T, P profiles were the profiles used in the simulation of the forward model. The assumption that the T, P profiles are well known is only valid for this theoretical study since we will not be driving for the T and molecular density by retrieval with the oxygen A-band measurements. Normally during an actual measurement event, the latitude and longitude of the tangent point will vary at different tangent heights. Therefore the T, P profiles provided by meteorological analyses for a fixed latitude and longitude (for example by the National Centers for Environmental Prediction (NCEP)) will not correspond to the true T, P values at each tangent height. We will consider in section 4.1 the influence of a bias on the T profile. The Rayleigh slant optical thickness are computed at each tangent altitude and every wavelength by using equation (3) with a 25m height step,  $\sigma^{ext}(\lambda, Z)$  accounting for Rayleigh scattering only; they are then subtracted from the simulated slant optical thickness.

A two-stage inversion is then performed on the 'corrected slant optical thickness' profiles.

The first step is a spatial inversion using the onion peeling technique (Tallamaraju, 1975), leading to extinction coefficient profiles  $\sigma_c^{ext}(\lambda, Z)$  at every 0.5 km, with the subscript c meaning 'corrected from Rayleigh'. The second step is a spectral inversion : at each altitude these 11 extinction coefficients are inverted by a multiple steps inversion process to separate the species contributions. As discussed in section 2, the extinction in the largest wavelength channel, 1.55 µm, only comes from Rayleigh and from aerosols and at 1.02 µm there exists a weak ozone contribution. Since the Rayleigh contribution has already been removed, the remaining extinction contribution corresponds to aerosol extinction only at 1.55 µm, and at 1.02 µm it is only a first estimate of the aerosol extinction coefficient. At each altitude one can use these two estimated aerosol coefficients to deduce an approximate spectral law for the aerosol extinction in the form of an Ångström law (Ångström, 1929):

$$\sigma_{\text{ser}}^{\text{ext}}(\lambda) = \sigma_{\text{ser}}^{\text{ext}}(1.55)(\frac{\lambda}{1.55})^{(-\alpha_{\lambda})}$$
(5)

characterized by the Angström coefficient  $\alpha_a$  computed from the two longest wavelength

channels,  $\alpha_a = -\ln(\frac{\sigma_{aer}^{ext}(1.55)}{\sigma_{aer}^{ext}(1.02)}) / \ln(\frac{1.55}{1.02})$ . The reference wavelength is chosen equal to

1.55 µm since this channel is free of gaseous absorption and will give a more accurate aerosol extinction coefficient in the case of noise-free measurements. This Angström law will enable one to estimate the aerosol extinction coefficient in the Chappuis channel and therefore will lead to a first estimate of the ozone extinction coefficient in this channel. In the SAGE II measurements there was only one channel (the 1.02 µm channel) providing only one estimated aerosol component, making the extrapolation to 0.6 µm more difficult (Chu et al., 1989). The ozone number density is then derived from the estimated ozone extinction by dividing with the molecular absorption cross-section. With the knowledge of the ozone number density, one can determine the ozone extinction contribution at 0.439 and 0.442 um and to remove them from the 'corrected extinction coefficient' at these two wavelengths, resulting in the extinction coefficient of the acrosols plus nitrogen dioxide. By first assuming that the aerosol extinction is the same at these two wavelengths, the residuals between the sum of these extinction coefficients at these wavelengths can be used to estimate the NO2 extinction at 0.439  $\mu$ m. The small NO<sub>2</sub> contribution is then removed from the Chappuis ozone channel to enable a new estimation of the O<sub>3</sub> extinction, and further to correct the 1.02 µm channel for a better estimate of the aerosol extinction coefficient. The ozone and nitrogen dioxide information are then used for estimating the aerosol extinction at other wavelengths with the removal of the latest estimated O<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> contributions. An iteration is finally performed to improve O<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> values by determining the aerosol components at 0.439, 0.442 and 0.6  $\mu$ m by using (2), where  $\lambda_r$  is replaced by 1.55, and  $\alpha$ ,  $\beta$  determined by accounting for the other aerosol wavelengths. The process is exhibited in the flow chart of Figure 3.

We used the same NO<sub>2</sub> and O<sub>3</sub> absorption cross-sections in the inversion as the values used in the forward stage. Since the absorption cross-section values are normally temperature dependent, using a constant value for inverting real SAGE III measurements will probably introduce bias error on the spectroscopic data due to potential temperature bias. Nevertheless, the laboratory measurements of these quantities are only available at few, selected temperatures, and any interpolation from these under-sampled data sets will therefore introduce another bias error. Moreover, the various spectroscopic data for the same species found in literature are somewhat different. For these reasons we only used the spectroscopic data that were used in the forward model.

The quality of the inversion is estimated via the comparison of the retrieved profile with the input for each species. Of course this could only be done for the case of a theoretical study. The profiles of these relative differences  $(100, \frac{\text{input value} - \text{retrieved value}}{\text{input value}})$  are shown

in Figure 4 (black lines) for model 1 only. The ozone number density is very well retrieved whatever the model is above about 10 km, the relative difference is less than 2 %. The worse performances below 10 km can be explained by the weak ozone contribution to the signal (Figure 2). The nitrogen dioxide number density is well retrieved up to 60-65 km and the aerosol extinction coefficient retrieval is almost perfect over the whole altitude range, apart from a very small bias (<0.2%) at the short and middle wavelengths for some models.

#### 3.2 Inversion in the resolved channels:"reduced-analysis"

For the solar occultation mode, the SAGE III instrument is equipped with two resolved channels, covering the 0.433 to 0.450  $\mu$ m (channel 3) and 0.559 to 0.624  $\mu$ m (channel 5) wavelength ranges. The first band contains 19 sub-channels (0.001  $\mu$ m resolution) and the second band 10 sub-channels (0.003  $\mu$ m resolution). A look at table 1 demonstrates that channel 3 can be used for aerosol, O<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> retrieval, while channel 5 can lead to aerosol and O<sub>3</sub>.

The inversion of the simulated slant optical thickness in these bands begins also by the removal of the Rayleigh contribution, as described in section 3.1. This component is first estimated from the T, P profiles used for the simulations. The 'corrected slant optical thickness' profiles are then inverted by using the same procedure : a spatial inversion which provides the corrected total extinction coefficient profiles for each sub-channel, followed by a spectral inversion leading to the partitioning of the gaseous and aerosol components. The limb inversion is performed via an onion peeling procedure as is done in the global inversion (section 3.1). The species separation in this case is quite different. It is performed with a least squares technique which has been discussed by Bazureau et al. (2000), and is briefly described here.

At a given altitude, the extinction coefficient provided by the spatial inversion is expressed by

8

$$\sigma_{c}^{ext}(\lambda) = \sum_{k=1}^{p} n_{d}^{k} \cdot \sigma_{mol}^{k}(\lambda) + \sigma_{aer}^{ext}(\lambda).$$
 (6)

On the short wavelength range of a resolved channel, whose mid-wavelength is  $\lambda_m$ , the aerosol extinction coefficient is assumed to follow an Ångström law given by Equation (5), where the reference wavelength of 1.55  $\mu$ m is replaced by  $\lambda_m$ , and where  $\alpha_a$  is replaced by an unknown Ångström coefficient  $\alpha_a$ .

In a given channel there are n sub-channels leading to a system of n equations such as (6), the unknowns being the p values of the gas number densities, the aerosol extinction coefficient at mid-wavelength and the Ångström coefficient. For application of linear regression technique on this system to determine the unknowns, the aerosol term needs to be linearized. Every wavelength can be written as  $\lambda = \lambda_m + \Delta \lambda$ , where  $\Delta \lambda$  is small compared to  $\lambda_m$ (the maximum value of  $\Delta \lambda$  for channel 3 is 0.009 µm, and 0.033 µm for channel 5). Thus with Taylor expansion, one can keep up to the second order with respect to  $\Delta \lambda / \lambda_m$ . With this approximation equation (6) becomes

$$\sigma_{c}^{ext}(\lambda) = \sum_{k=1}^{p} n_{d}^{k} \cdot \sigma_{mol}^{k}(\lambda) + \sigma_{aer}^{ext}(\lambda m)(1 - \alpha \frac{\Delta \lambda}{\lambda m} + \frac{\alpha(\alpha + 1)}{2}(\frac{\Delta \lambda}{\lambda m})^{2})$$
(7)

Equation (7) written for all n wavelengths gives the matrix equation

$$\Sigma^{\text{ext}} = \mathbf{X} \boldsymbol{.} \boldsymbol{\beta} \tag{8}$$

with

$$X = \begin{pmatrix} \sigma_{mol}^{1}(\lambda_{1}) & \dots & \sigma_{mol}^{p}(\lambda_{1}) & 1 & \Delta\lambda_{1} & \Delta\lambda_{1}^{2} \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \sigma_{mol}^{1}(\lambda_{1}) & \dots & \sigma_{mol}^{p}(\lambda_{1}) & 1 & \Delta\lambda_{1} & \Delta\lambda_{1}^{2} \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \sigma_{mol}^{1}(\lambda_{n}) & \dots & \sigma_{mol}^{p}(\lambda_{n}) & 1 & \Delta\lambda_{n} & \Delta\lambda_{n}^{2} \end{pmatrix} \text{and} \beta = \begin{pmatrix} n_{d}^{1} \\ \vdots \\ n_{d}^{p} \\ \sigma_{aet}^{ext}(\lambda_{m}) \\ \gamma \\ \eta \end{pmatrix}$$

Where  $\gamma$  and  $\eta$  depend on  $\sigma_{arr}^{cri}(\lambda_m)$ ,  $\alpha$  and  $\lambda_m$ .

In this retrieval procedure we also use the same spectroscopic data as used in the forward step.

The relative differences obtained with this method are compared to the previous ones in Figure 4 (red lines) for the same model. The ozone relative difference is much smaller than 2% between 10 and 20 km, and the nitrogen dioxide number density is well retrieved up to

70-75 km whatever the model is. The aerosol extinction at the mid-wavelengths exhibits no bias.

#### 3.3 "combined-analysis"

The comparison of the relative differences between the input profile and the retrieved one obtained from both inversions for  $O_3$  and  $NO_2$  shows that these two species are better retrieved from the resolved channels over the whole altitude range. Especially at high altitude for  $NO_2$  and in the 10-20 km range for  $O_3$ . Concerning the aerosol extinction coefficient at the mid-wavelength of these channels there is generally only little improvement with this approach.

To benefit from these better ozone and nitrogen dioxide retrievals in channels 3 and 5 for the aerosol characterization in the other channels, we have combined the two inversion approaches in the following way. At each altitude, the extinction coefficients obtained after the limb inversion in the channels 2, 4, 6, 7, 9, 11 are corrected from the  $O_3$  and/or  $NO_2$  extinction contributions in these channels, contributions that were estimated with the retrieved  $O_3$  and  $NO_2$  number densities derived from the two resolved channels with the "reduced analysis", as described in section 3.2.

The corresponding relative differences are also showed in Figure 4 (blue crosses). The  $O_3$ ,  $NO_2$  and aerosols at 0.442 and 0.6  $\mu$ m results are of course identical to the results of the "reduced analysis". The acrosol extinction coefficients in the other channels are slightly improved at the short wavelengths, in particular there is no bias presence.

This improvement is of great importance for aerosol characterization since the aerosol extinction coefficient uncertainties limit the quality of the derived surface area, volume densities and effective radius needed for the study of chemical and radiative processes (Solomon et al., 1996, Saxena and Yu, 1998, Anderson et al., 2000, Yue, 2000).

#### 4. Realistic case

#### 4.1 Influence of temperature uncertainties

In this section we analyze, with the "combined analysis" technique, the impact of a bias on the temperature profile on the retrieved profiles. The temperature plays a role in the calculation of geometrical paths and in the Rayleigh scattering. We have not included the consideration of variations of the gas absorption cross-sections due to temperature effect (cf 3.1) and the O<sub>3</sub> and NO<sub>2</sub> cross-sections are still the same as in the forward model.

10

We have performed the inversion of the simulated measurements as in section 3.3 with the temperature profile biased by +2 % from the input. Figure 5 shows the relative difference profiles obtained for the same model 1.

With temperature error, by comparing results to Figure 4, the relative difference is almost unchanged for the ozone and nitrogen dioxide. For the aerosol component the relative difference is much larger than without any temperature bias especially above 35-40 km, at low levels below about 15 km and for short wavelengths where the impact on the Rayleigh correction is large (see Figure 2). That is true for all the models.

## 4.2 Influence of altitude registration uncertainties

The determination of the tangent altitude for the SAGE-type measurements is an important issue that is difficult to perform with high precision. We will evaluate the impact of this uncertainty on the retrieved profiles. The uncertainty analysis is conducted with a Monte Carlo technique. A set of n=1000 nominal simulated transmission profiles are generated with tangent altitudes errors obtained by the addition at each nominal tangent altitude, of normally distributed random error. The altitude errors are linearly decreasing from a maximum value of 0.075 km at the lowest level to 0 km at 40 km where the tangent altitude is assumed to be well determined . A linearly decreasing altitude registration error is a good approximation to the behavior of the pointing error for the measurements from the SAGE-type instruments. This is due to the increasing difficulties in assigning measurement altitude at lower tangent heights due to the effect of atmospheric refraction. The effective instrument scan rate, including the spacecraft motion, becomes difficult to determine in lower atmosphere due to the atmospheric refraction effect, atmospheric attenuation problem, and truncation of the solar signal due to high clouds. For each set of altitudes the transmissions are interpolated onto the nominal altitude grid (0.5 km step) and the transmission profile is inverted as in section 3.3. The final -1 1 m

profile of one species, x, is the mean of all the n retrieved profiles  $(\overline{x} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n} x_i)$ . The standard deviation (random error) represents the uncertainty due to measurement uncertainties. The uncertainty related to the inversion algorithm (systematic uncertainty) is obtained by comparing this final retrieved profile with the input. The relative systematic

uncertainty (100.  $\frac{\text{input value} - \bar{x}}{\text{input value}}$ ) and the relative random error  $(\frac{100}{\bar{x}}\sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{n}(x_i - \bar{x})^2}{n}})$ profiles are shown in Figures 6 only for the "combined analysis" and for atmospheric model 1. The bias in this case is very small and can be neglected compared to the random error, this later component depends on the species and of the model. On the average the impact of this altitude registration uncertainty is rather important. The relative standard deviation is greater than 10 % for the aerosols at short wavelengths and even larger than 20-30 % below about 15 km. At long wavelengths the relative standard deviation is lower than 5 % above 10 km and larger than 10 % below. For ozone and NO<sub>2</sub> the uncertainties are much smaller.

#### 4.3 Influence of transmission uncertainties

The previous analyses reported up to now were conducted on "perfect" transmission measurements, i.e. on measurements without uncertainty which is of course not realistic. This kind of exercise will permit one to improve the retrieval techniques in ideal cases. This section will deal with realistic data, i.e. with data estimated with a given uncertainty. We will study the impact of such uncertainties on the quality retrieval. The uncertainty analysis is also conducted with a Monte Carlo technique. 1000 sets of measurements are simulated, starting from the nominal simulated transmissions, by adding, at each tangent altitude and at each wavelength, non-correlated normally distributed random error in the X % range (cf section 4.2). We have chosen 0.05 % uncertainty based on the ATBD (Chu et al., 1997). These 1000 sets are inverted as in section 3.3 to retrieve the species profiles. The relative systematic uncertainty and the relative random error profiles (cf 4.2) are shown in Figures 7 for the "combined analysis" only, for the same atmospheric model 1.

The first conclusion from the observation of these results is that the bias is very large above a certain altitude that depends on the wavelength and species. This phenomenon is related to transmissions close to unity. Below, the bias is negligible compared to the random error. For ozone the random error is smaller than 2 % from about 50 km down to about 10 km, for nitrogen dioxide it is about 5-10 % from 40 km down to the ground and for the aerosols it is smaller than 2 % from about 30 km down to the ground. The 1.55  $\mu$ m channel performs less well than the others in case of low aerosol content due to high transmission values even at altitudes as low as 25 km.

### 4.4 Cumulative influence of uncertainties

In section 4-2 and 4-3 we have separately studied two types of uncertainties. For real measurements, both uncertainties will occur, so the Monte Carlo technique has been applied to determine what is the total uncertainty that can be expected. When considering the same altitude registration uncertainties as in section 4-2, along with the same measurement

uncertainties as in section 4-3, we observe that for all the models (Figures 8) the uncertainty on the retrieved quantities strongly depends on the altitude and on the species. In the altitude range where a significant information is expected, the ozone number densities are retrieved within 2 %, the NO<sub>2</sub> number densities are retrieved within 10 %. At short wz.velengths the uncertainty on the aerosol extinction coefficient is about 10-20 % depending on the aerosol content, while it is lower than 10 % at the longest wavelengths whatever the model is. Above about 30 km no valuable information can be retrieved for aerosols zince their contribution is low and the Rayleigh component is removed after accounting for the uncertainties on the measurements.

## 5. Conclusions.

Three inversion methods are proposed by LOA to invert measurements obtained by SAGE III which is an improved version of the SAGE II instrument. The major differences which are being considered here are the inclusion of an additional channel around 1.55  $\mu$ m and the two resolved channels in the ozone absorption band and in the nitrogen dioxide band. The first inversion algorithm that was discussed was developed for the SAGE II measurements with only minor changes. The second LOA inversion technique is applied on two specific resolved channels, and the third technique is a combination of the two previous methods. From the results of the analyses performed with simulated measurements of solar occultation for various atmospheric mode  $\neg$  one can conclude that :

1. The three inversion techniques perform very well for nominal measured data.

2. The resolved channels are of great value to provide a better estimate of the ozone and  $NO_2$  profiles. Therefore the trends of these species will be better monitored. The use of these channels in a combined analysis allows a better estimation of the aerosol extinction.

3. The 1.55  $\mu$ m channel complements the spectral variations of the aerosol extinction coefficients, and thus will enable a better characterization of the surface area, volume densities and effective radius of the particles.

4. The influence of a bias on the temperature profile is important for aerosol retrieval.

5. When accounting for altitude registration uncertainties and measurement uncertainties, a statistical approach shows that the uncertainty that has propagated onto the retrieved quantities strongly depends on the altitude and on the species. In the altitude range where a significant information is expected, the ozone and NO<sub>2</sub> number densities are retrieved within 5-10 % depending on the gazeous content (i.e. on the atmospheric model). At short wavelengths the uncertainty on the aerosol extinction coefficient is about 10-20 % depending

on the aerosol content, while it is lower than 10 % at the largest wavelengths for all the models.

6. The proposed inversion techniques are very powerful since they don't need any assumption on the composition of the aerosols.

7. Application to the luna: de measurements is being carried out, the preliminary results are very encouraging (Bazu. and Brogniez, 1999).

The implementation in SAGE III of the two resolved channels around 0.44 and 0.6  $\mu$ m is proved to be a great improvement, since these channels have been shown in our study to be important to achieve a better accuracy for ozone and NO<sub>2</sub> measurements. The additional channel centered near 1.55  $\mu$ m is also well justified for aerosol characterization. The conclusion stated in point 4 justifies as well the implementation of a channel near the oxygen-A band to achieve a better Rayleigh estimation.

#### Acknowledgments.

This work was supported by CNES under contract 98CNES/519812. We thank Bernard Bonnel from LOA for helpful discussions.

#### Références

- d'Almeida, G. A., P. Koepke, E. P. Shettle, Atmospheric Aerosols, A. Deepak Publishing, Hampton Va, 1991.
- Anderson, J., C. Brogniez, L. Cazier, V. Saxena, J. Lenoble, M.P. McCormick, The characterization of aerosols from simulated SAGE III measurements applying two retrieval techniques, J. Geophys. Res., 105, D2, 2013-2027, 2000.
- Bazureau, A., C. Brogniez, Inference of nitrogen trioxide and chlorine dioxide profiles from simulated SAGE III transmission measurements. ISSSR'99 : Systems and sensors for the new millenium, CD-Rom, 37-46, 1999.
- Bazureau, A., C. Brogniez, J. Lenoble, An overview of LOA SAGE III algorithm. Geophys. Res. Lett., 27, 2225-2228, 2000.
- Brogniez, C. and J. Lenoble, Size distribution of stratospheric aerosols from SAGE II multiwavelength extinction. in Aerosols and Climate, P.V. Hobbs and M.P. McCormick Editors, A. Deepak Publishing, 305-312, 1988.
- Burrows J. P., A. Dehn, B. Deters, S. Himmelmann, A. Richter, S. Voigt, and J. Orphal, Atmospheric Remote-Sensing Reference Data from GOME: 2. Temperature-Dependent

Absorption Cross Sections of O3 in the 231-794 nm Range, Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer, 61, 509-517, 1999.

- Chu, W.P., M.P. McCormick, J. Lenoble, C. Brogniez and P. Pruvost, SAGE II inversion algorithm, J. Geophys. Res., 94, 8339-8351, 1989.
- Chu, W. P., and the SAGE III Aerosol ATBD Team, The SAGE III Algorithm Theoretical Basis Document (ATBD) Transmission Level 1B Products, 1997.

Lenoble, J., Atmospheric radiative transfer, A. Deepak Publishing, Hampton, 1993.

- Lumpe, J.D., R.M. Bevilacqua, K.W. Hoppel, S.S. Krigman, D.L. Kriebel, C.E. Randall, D.W. Rusch, C. Brogniez, R. Ramananahérisoa, E.P. Shettle, J.J. Olivero, J. Lenoble, P. Pruvost, POAM II retrieval algorithm and error analysis, J. Geophys. Res., 102, D19, 23593-23614, 1997.
- Russell, P.B., J.M. Livingston, R.F. Pueschel, J.J. Bauman, J.B. Pollack, S.L. Brook, P. Hamill, L.W. Thomason, L.L. Stowe, T. Deshler, E.G. Dutton, and R.W. Bergstrom, Global to microscale evolution of the Pinatubo volcanic aerosol derived from diverse measurements and analyses, J. Geophys. Res., 101, 18745-18763, 1996.
- Saxena, V., and S. Lu, Searching for a regional fingerprint of aerosol radiative forcing in the southeastern US, *Geophys. Res. Lett.*, 25, 2833-2836, 1998
- Seinfield, J. H. and S. N. Pandis, Atmospheric chemistry and physics, Wiley-Interscience Publication, 1998.
- Solomon, S., R. W. Portmann, R. R. Garcia, L. W. Thomason, L. R. Poole, and M. P. McCormick, The role of aerosol variations in anthropogenic ozone depletion at northerm midlatitudes, J. Geophys. Res., 101, 6713-6727, 1996.
- Tallamaraju, R.K., Inference of stratospheric minor constit ents from satellite limb radiant intensity measurements, Report 011023-3-T, Hael, Univ. Michigan, Ann Arbor, MI, 1975.
- Yue, G. K., Retrieval of aerosol size distributions and integral properties from simulated stinction measurements at SAGE III wavelengths by the linear minimizing error hod, *J Geophys. Res.*, 105, D11, 14719-14736, 2000.

Table 1. Solar occultation mode channels (the channel numbers are taken from the ATBD, Chu et al., 1997).

Channel n°	λ, μm	Comment	
2	0.385	a na	
3	0.433-0.450	Resolved channel for NO2 retrieval	
4	0.525		
5	0.559-0.624	Resolved channel for O3 retrieval	
Ó	0.67		
7	0.757	nany haraka kanyarang kanang kanan	
9	0.872		
10	0.933-0.960	Resolved channel for H <sub>2</sub> O retrieval	
11	1.02		
12	1.55		

Table 2. Atmospheric models used for the modeling. The number in parenthesis, following the aerosol content is the optical depth above 10 km at  $1.02 \mu m$ .

Model	Ozone	Aerosol content	α <sub>m</sub>	βm
1	Normal	Low (0.0032)	2.7	0.7
2	Normal	High (0.016)	1.5	1.0
3	Hole	High (0.016)	1.5	1.0
4	Hole	Low	2.7	0.7
		+ PSC	1.5	1.0

# **Figure captions**

Figure 1. Input profiles of ozone, nit ogen dioxide number densities and acrosol extinction coefficient at  $1.02 \mu m$ , used in the various atmosphere models.

Figure 2. Relative contribution of all species to the total extinction: a- at 0.442  $\mu$ m, b- at 0.6  $\mu$ m, c- at 1.55  $\mu$ m.

Figure 3. Flow chart of the 'global analysis' algorithm.

Figure 4. Comparison of the 3 inversion techniques for model 1 in case of no measurement error. Relative differences (see text) in black full lines for the 'global analysis', red dash lines for the 'reduced analysis' and blue crosses for the 'combined analysis'.

Figure 5. Impact of a birs on the temperature profile of 2 %. Only the relative differences for the combined analysis are shown for model 1.

Figure 6. Influence of altitude registration uncertainties on the retrieval for model 1 for the combined analysis only. The relative systematic differences (see text) are in black full lines, the relative random errors (see text) are in black crosses.

Figure 7. Same as Figure 6 but for transmission uncertainties.

Figure 8. Impact of altitude registration uncertainties and transmission uncertainties for all the models and for the combined analysis only: a- model 1, b- model 2, c- model 3, d- model 4. The relative systematic differences are in black full lines, the relative random errors are in black crosses.



Figure 1



Figure 2a





Figure 2b





Figure 3





Figure 5





Figure 7



Figure 8a



Figure 8b



Δ

Figure 8c



Figure 8d

Applications of SAGE III Inversion algorithm to SALOMON measurements

# A. Bazureau, C. Brogniez and J.-B. Renard

# Presented in Remote Sensing of Clouds and the Atmosphere V, vol 4168

SPIE 2000, Barcelona, Spain, 25 - 29 September, 2000.

# Application of SAGE III Inversion Algorithm to SALOMON Measurements

A. Bazureau<sup>4</sup>, C. Brogniez<sup>4</sup> and J.-B. Renard<sup>b</sup>

<sup>a</sup>Laborateire d'Optique Atmosphérique, Université de Sciences et Technologies de Lille, France.

<sup>b</sup>Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement, Orléans, France.

# ABSTRACT

The Stratospheric Aerosol and Gas Experiment III (SAGE III), whose first flight is planned to be launched in Winter 2000-2001 on the polar orbit spacecraft METEOR 3M, is a part of NASA's Earth Observing System (EOS). A preliminary outcome for the LOA inversion has been obtained for resolved channel for the retrieval of daytime and nighttime constituents such as O3, NO2, NO3, OCIO and aerosols, with a good quality, from simulated transmission profiles. An opportunity for testing the inversion algorithm on real measurements is offered by the SALOMON team of the LPCE to

validate the method. The SALOMON (french acronym for "Spectroscopic d'Absorption Lunaire pour l'Observation des Minoritaires Ozone et NOX") instrument is devoted to monitoring minor constituents in the atmosphere, using the lunar occultation method, in the UV-visible spectral domain, from stratospheric balloon. As SALOMON and SAGE III 's types of measurement are similar, the SAGE III inversion algorithm can be applied to SALOMON measurements without significant modifications.

The purpose of this paper is to present the LOA inversion of SALOMON real measurements, performed in February 2000 from Kiruna (Sweden). The retrieved gas densities and aerosol extinction profiles are compared to the corresponding retrieved values by the SALOMON team.

#### **1. INTRODUCTION**

The Stratospheric Aerosol and Gas Experiment III (SAGE III) is part of the Earth Observing System (EOS) program for the understanding of atmospheric constituent trends [*Chu et al.*, 1997]. The routine monitoring of the ozone trends and depletion in the low and middle stratosphere, especially in the polar regions, is an important part of the EOS program. This survey can be easily done by an occultation technique, well suited to monitoring long-term trends in atmospheric composition. SAGE III's first flight is planned to be launched not before Winter 2000-2001 on the polar orbit spacecraft METEOR 3M. Technical characteristics on SAGE III instrument are available in the SAGE III basis document edited by *Chu et al.* [1997].

The LOA has developed an inversion algorithm for SAGE III. Since the measurements are not available, the work has been conducted on simulated transmission (or tangent optical thickness) profiles computed for an atmosphere constituted with known molecular density profiles. The principle of the inversion analysis relies on a spatial inversion of the simulated optical thickness leading to extinction coefficient at each altitude; this limb inversion is followed by a spectral inversion at each altitude, that uses a generalized least squares technique. This inversion algorithm, quite different from the approach chosen by LOA for SAGE II measurements analysis [Chue et al., 1989], is already published [Bazureau et al., 2000]. Preliminary outcomes have been obtained for the solar resolved channels for the retrieval of daytime constituents such as O1, NO2 and aerosols [Bazureau et al., 1999a] and for lunar resolved channels for the retrieval of nighttime constituents such as O3, NO2, NO3 and OCIO [Bazureau and Brogniez, 1999b]. Since the inversion algorithm has been implemented on simulated transmission profiles for SAGE III with a good retrieval quality, the opportunity for testing the inversion algorithm on rea? measurements has been offered by the SALOMON team of the LPCE (Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnemenc) to validate the method. The SALOMON (french acronym for "Spectroscopie d'Absorption Lunaire pour l'Observation des Minoritaires Ozone et Nox") instrument is devoted to monitoring minor constituents in the atmosphere, which are involved in the ozone destruction cycle, in the UV-visible spectral domain, from stratospheric balloon. This instrument uses the lunar occultation method, leading to transmission measurements through the atmosphere. The SALOMON instrument description and characteristics are available in Renard et al. [2000].
As SALOMON and SAGE III's types of measurement are similar, the SAGE III inversion algorithm should be successfully applied to SALOMON measurements after few modifications. This work reports a theoretical study for simulated balloon measurements in two spectral domains, the nitrogen dioxide absorption band around 440 nm and the Chappuis band around 600 nm, as well as a true measurement analysis in three spectral domains, the two previous ones plus the nitrogen trioxide band around 660 nm.

The following paper is therefore split in 2 parts. Section 2 describes the adaptation of the 'satellite algorithms' to 'balloon algorithms' : we first simulate the spectral slant optical thickness profiles that could be measured from a stratospheric platform, then these profiles are inverted to test the performance of our inversion algorithm for the balloon geometry. Finally, in section 3, the analysis is conducted on the real SALOMON measurements made on February 22, 2000 from Kiruna, Sweden : our retrieved results are compared with those given by the LPCE team.

## 2. ADAPTATION OF THE SAGE III INVERSION ALGORITHM FOR BALLOON MEASUREMENTS

#### 2.1. Balloon atmospheric transmission modelling

The simulation of the atmospheric transmission profiles (or slant optical thickness profiles) is necessary for testing if the inversion algorithm is able to retrieve properly the initial physical quantities, used for the direct problem; the forward model will serve to estimate the validity of the approximations made in the data analysis. The balloon measurement modelling is developed from climatological profiles of gas densities and aerosol extinction coefficient at a reference wavelength  $\lambda_{si}$  pressure and temperature profiles are provided to account for Rayleigh component. These data are given every kilometer. An ideal atmospheric model is considered : it is constituted of 125 meters thick concentric homogenous layers, from the ground to the top, fixed to 60 km. The atmospheric slant optical thickness are obtained by adding the spaces contributions layer by layer, that needs the evaluation of the geometric slant path corrected from refraction. To perform this summation, the usual high altitude satellite occultation measurement geometry has to be reduced to a low altitude balloon occultation measurement geometry, that can be easily done as explained further.

The concentric and homogenous layers constituting the terrestrial atmosphere are crossed by the moon irradiance towards the detector (see Figure 1). For simplifying the problem, we consider a half atmosphere starting from the tangent point. The summation over the layers is accounting for the whole atmosphere for the part extending from the tangent point to the source, while the path on the other side, from the tangent point to the detector, is limited by the detector position, say by the balloon float altitude (in contrast to measurements from satellite which is above the atmospheric layers). In summary, accounting for the spherical symmetry of the atmosphere, the balloon slant path for atmospheric layers beneath the balloon must be multiplied by 2 and the slant path for atmospheric layers located above the balloon altitude are multiplied by 1, against 2 everywhere for a satellite viewing slant path algorithm.



Figure 1 : Balloon occultation measurement geometry. On the schema, the tangent altitude is denoted by Zt, the balloon float altitude is defined by Zb.

The slant optical thickness profile is computed every 1 or 2 km (which correspond to SALOMON instrument resolution), on each tangent height of the line-of-sight and for each wavelength, interpolating for each sub-layer 125m thick the pressure and temperature values, as well as the molecular densities and aerosol data.

To study the influence of a low balloon altitude on the quality of the retrievals, two slant optical thickness profiles are calculated for two t fferent balloon float altitudes : 60 km and 30 km (which is close to SALOMON float altitude in February 22, 2000 in Kiruna), called respectively the "very high balloon altitude" and the "real balloon altitude". The simulation is conducted in two spectral channels: the O3 channel, covering the 559-620 nm wavelength range, divided in 169 subchannels, and the NO2 channel, covering the 409-473 nm wavelength range, divided in 180 subchannels. The choice of these channels is guided to be nearest to SALOMON instrument characteristics because SALOMON slant optical thickness profile are available in a spectral range between 380.2 and 684.7 nm with a 0.35 nm resolution.

The ozone absorption cross sections are provided by *Shettle et al.* [1994] over a spectral coverage from 407 nm to 762 nm, with a 0.1 nm resolution, at stratospheric temperature 220 K. The nitrogen dioxide ones are provided by *Harder et al.*, [1997], over the domain from 390.2 to 549.8 nm, at stratospheric temperature 217 K, with a 0.05 nm resolution.

For the simulation, the aerosol extinction coefficient is a function of aerosol size distribution. For a simple modelling, the aerosol extinction coefficient at each wavelength is derived from the values at the reference wavelength : we use the Angström law [Angström, 1929] with an Angström coefficient fixed to 2, characterizing standard aerosols.

#### 2.2. Adaptation of the SAGE III inversion algorithm and results

Once the simulated slant optical thickness profiles are obtained, the next step is to retrieve the gas density profiles and the acrosols extinction coefficient profile from a lonely channel. As explained in *Bazureau et al.* [2000], the inversion begins with the removal of the Rayleigh contribution providing a 'corrected optical thickness' profile, on which the LOA Inversion Algorithm is performed. The first stage of this inversion is the spatial inversion achieved by means of the onion peeling method. For these two steps, removal of the molecular component and spatial inversion, we need the geometrical slant paths which are necounted for in the same manner as in the forward stage : a layer above the balloon level is counted once, while a layer below the balloon altitude is counted twice. The derived spectral extinction coefficients at each altitude are then inverted for the species retrieval with a least squares technique. We have taken the molecular absorption cross sections used in the forward model, assuming that they are well known. The error analysis is conducted by a Monte Carlo technique : we have accounted for measurement uncertainties chosen for the simulation, we consider that SALCMON target the whole moon so there are no dispersion on the irradiance measured by the detector. A detailed description about LOA Inversion Algorithm is available in *Bazureau et al.* [2000].

The results shown in Figures 2 and 3 demonstrate the ability of the algorithm to retrieve profiles of nitrogen dioxide, ozone and acrosol at mid-wavelength from realistic simulated data in the two spectral bands. The ozone number density and acrosol extinction profiles retrieved from the Chappuis band are plotted in Figure 2, while the nitrogen dioxide, ozone number densities and acrosol extinction profiles retrieved from the Chappuis band are plotted in Figure 2, while the nitrogen dioxide, ozone number densities and acrosol extinction profiles retrieved from the NO<sub>2</sub> band are plotted in Figure 3. We have also reported the relative difference in percent 100 \*(Retrieved-Input)/Input. The two cases, balloon at 60 km float altitude and balloon at 30 km altitude, are presented in the same panel. As expected, the "very high balloon altitude" results are in very good agreement with the input data over the whole altitude range, and the "real balloon altitude" results agree well only up to about 26 km.

There is obviously a loss in precision at high altitudes for the "real balloon altitude" due to the tangent altitude limitation : the highest measurement gives global information on a part of the atmosphere extending from the highest langent point to the top of the atmosphere (60 km), therefore the higher the balloon float altitude is, the higher is the last tangent altitude and then the better work the spatial inversion and consequently the whole inversion algorithm. A correction by an extrapolated extinction coefficient profile for layers above the balloon float altitude has been attempted. The spatial inversion is run a first time to estimate two parameters, Zref et E, which are respectively the reference altitude, determined to avoid the less accurate higher levels, and the slope of the extinction coefficient profile. The extrapolation of the extinction coefficient, corrected from the Rayleigh contribution, up to 60 km, is made following the exponential law :

$$\sigma^{ext}(Z > Z_{ref}) = \sigma^{ext}(Z_{ref}).\exp^{\left(\frac{Z - Z_{ref}}{H}\right)}$$
(1)

It is this extrapolated extinction coefficient which is taken into account in the second limb inversion. We have chosen Zref = the balloon float altitude - 6 km and we have evaluated H = 3 km. The results are shown in Figure 4 for the 30 km balloon float altitude case. The ozone number density and aerosol extinction profiles retrieved from the Chappuis band are plotted for the two extinction coefficient profiles : the one without extrapolation, limited to 30 km, as used for Figure 2, and the other, extrapolated up to 60 km. This preliminary result reflects an amelioration of about 6% (peaks) to 2% on systematic errors for ozone; for aerosols the improvement is obvious too, except at the highest levels.



Figure 2 : Ozone and Aerosol results from the spectral domain [559-620 nm]. Part a) is for O3 and b) is for Aerosol. The retrieved profiles with the corresponding error bars are compared to the input profiles on the left panel. The aerosol retrieved profiles is calculated at mid-wavelength 587.5 nm. On the right panel, the relative difference for each different balloon float altitude is shown next to each constituent.







Figure 4 : Ozone and Acrosol results from the spectral domain [559-620 nm]. Part a) is for O3 and b) is for Acrosol. The retrieved profiles (the one obtained without extrapolation, as plotted in Figure 2, and the other, obtained with extrapolated extinction coefficient) with the corresponding error bars are compared to the input profiles on the left panel. The aerosol retrieved profiles is calculated at mid-wavelength 587.5 nm. On the right panel, the relative difference for each different extinction coefficient profile is shown next to each constituent.

The choice of the molecular absorption cross sections is *a priori* important for the quality of the retrievals. Other data are available: *Mérienne et al.* [1995] for NO<sub>2</sub>, and *Burrows et al.* [1997] for O<sub>3</sub>; since nothing can indicate which data are the most accurate, we have studied the influence of different cross-sections on the results. We have inverted the measurements simulated with "Shettle" cross-sections, with "Burrows" cross-sections at 221 K, which differ from the previous ones by about 4% in the spectral domain [559-620 nm] (see Figure 8). Results are shown in Figure 5 for the case of a 30 km balloon float altitude. Ozone number density and aerosol extinction coefficient at mid-wavelength 587.5 nm profiles are plotted for the two inversions : the one made with "Shettle" cross-sections as done in Figure 2, and the other with "Burrows" cross-sections.



Figure 5 : Ozone and Aerosol results from the spectral domain [559-620 nm]. Part a) is for O3 and b) is for Aerosol. The retrieved profiles (the one obtained with "Shettle" ozone cross-sections, as plotted in Figure 2, and the other Inverted with "Burrows" ozone cross-sections) with the corresponding error bars are compared to the input profiles on the left panel. The aerosol retrieved profiles is calculated at mid-wavelength 587.5 nm. On the right panel, the relative difference for each different cross section is shown next to each constituent.

Figure 5 shows that there is little dependence of the inversion results on the molecular cross-sections for the ozone profile while there is a significant dependence of the acrosol results on the ozone cross-sections : the acrosol extinction profile calculated with "Burrows" cross sections gives a systematic error of about 40% to 20% while the one, from inversion with the "Shettle" cross-sections, gives a systematic error smaller than 1% with one peak of about 15%. This behaviour is under

study : preliminary outcome shows a similar behaviour when using two sets of nitrogen dioxide cross-sections in the nitrogen dioxide band.

#### **3. APPLICATION TO SALOMON MEASUREMENTS**

The SALOMON flight occurred during the night of February 22, 2000, in Kiruna, Sweden (68°N, 21°E). Lunar occultation measurements started at 18:38 and ended at 19:19 : so 29 spectra were recorded. Flight conditions allowed measurements to be performed during the moonrise. The float altitude of the balloon was 30.0 km, with fluctuations of 1 km. The smaller tangent altitude, at which spectra were recorded, is 17.35 km. Five spectra, recorded when the moon zenith angle is at the minimum, are picked up for the reference spectra estimation : this spectra will serve to normalise the optical thickness profiles. This preliminary work was entirely done by the LPCE team.

#### 3.1 LOA inversion

In this section, the LOA team aimed at inferring minor species from real SALOMON measurements, using the inversion algorithm described previously in section 2.2, accounting for the extrapolation described by Equation 1. The extrapolation parameters must be adapted to the real SALOMON extinction coefficient profile corrected from the Rayleigh contribution. After the first limb inversion, the reference altitude is fixed to 4 km below the float altitude and the slope H to 6 km.

The LPCE team provided us with slant optical thickness measurements in the spectral range between 380.2 and 684.7 nm (see section 2.1) with a vertical resolution around 1 km above 21 km and around 2 km below; the pressure and temperature profiles from a scade on-board were provided as well. We have divided the SALOMON spectral domain into 3 channels : the ozone one from 559 to 620 nm, divided in 169 subchannels, the nitrogen dioxide one from 409 to 473 nm, divided in 180 subchannels, these two bands are identical to the ones studied in the theoretical part, and the nitrogen trioxide channel, from 649 to 675 nm, divided in 71 subchannels, 0.35 nm resolution. The nitrogen trioxide cross-sections are provided by *Deters and Burrows* [1998], over the domain from 617.97 to 704.9 nm, for the temperature 243.15 K, with a 0.2 nm resolution.

The error analysis is conducted in the same way as in the theoretical study accounting for 3 % uncertainty on the SALOMON measurements (as suggested by SALOMON team). The LOA team has chosen, independently from the LPCE team, to run the inversion with *Harder et al.* [1997], *Shettle and Anderson*, [1994], and, as said previously, *Deters and Burrows* [1998] cross-sections.

#### **3.2 LPCE inversion**

The algorithms used by the LPCE team are similar to those used for AMON (Absorption par les Minoritaires Ozone et NOx) which are described in *Renard et al.*, [1996]. A short description on SALOMON Inversion Algorithm is available in *Renard et al.* [2000] and is briefly recalled here. The Rayleigh scattering contribution is removed from all spectra, then the spectral domain is divided into large spectral ranges: 455-680 nm and 400-550 nm. Contrarily to the LOA technique the process begins with the species separation, followed by the spatial inversion. The ozone retrieval is performed accounting for an aerosol contribution that follows a second-order polynomial law. The NO<sub>2</sub> retrieval is achieved by using a differential method with a high-pass filter to remove the continuum. The NO<sub>3</sub> retrieval is restricted to the 645-680 nm band to avoid an oxygen line. Finally the aerosol slant optical thickness are obtained by subtracting the contribution of all other species from the measurements. The last step is a limb inversion to retrieve the species profiles.

The LPCE team has chosen to run the inversion with *Harder et al.* [1997], *Burrows et al.* [1998], and *Deters and Burrows* [1998] cross-sections.

#### 3.3 Result comparison

The LOA results, including the ozone number density profiles retrieved from Chappuis band, the marogen dioxide ones from the spectral domain [409-473 nm] and the nitrogen trioxide ones from the spectral domain [649-675 nm], are plotted in Figure 6 along with the respective LPCE results. We have two LOA profiles for each retrieved constituent, computed every 1 km and 2 km because of the variable SALOMON resolution. We have also reported, next to each constituent profiles, the relative difference in percent 100 \* (LPCE-LOA)/((LPCE+LOA)/2). In Figure 7, we have drawn both LOA aerosol results computed every 1 km and 2 km, at three mid-wavelengths 660 nm, 587.5 and 442 nm, and LPCE acrosol results, at four wavelengths 575 nm, 600 nm, 650 nm and 450 nm.



Figure 6 : Ozone, Nitrogen dioxide and Nitrogen trioxide results from respectively the spectral domains [559-620 nm], [409-473 nm] and [649-675 nm] Part a) is for O3 and b) is for NO2 and c) for NO3. The retrieved profiles (for two tangent altitude resolution, 1 km and 2 km) with the corresponding error bars are compared to the input profiles on the left panel. On the right panel, the relative difference for each different tangent altitude resolution is shown next to each constituent.



Figure 7 : Aerosol results from three spectral domains [559-620 nm] (Part a), [409-473 nm] (Part b) and [649-675 nm] (Part c). The LOA aerosol retrieved profiles are calculated at mid-wavelength 440 nm, 587.5 nm and 660 nm, with the corresponding error. The LPCE aerosol retrieved profiles are calculated at mid-wavelength 450 nm, 575 nm, 600 nm and 650 nm.

(b)



While the ozone profiles retrieved from both inversions agree within 8 % and the NO<sub>2</sub> ones within 20% (in the altitude range 22-28 km), the NO<sub>1</sub> profiles totally disagree. Concerning the aerosol, as LOA and LPCE aerosol extinction profiles are not available for the same wavelength, the relative differences are not available and the comparison can be roughly made by eye: it sounds rather unsatisfying, except for the aerosol extinction profile from the NO<sub>2</sub> band at mid-wavelength 442 nm.

We have investigated if the order of the two inversions, spatial and spectral, could be responsible of such differences: the LOA has performed an other analysis by beginning with the species separation, the results were hardly modified.

The differences for all species can come from the different cross-sections used by the two teams. Even if the ozone profiles issued from both inversions are not much different, the conversion to extinction in Lie ' 'en dioxide channel strongly depends on the values of the cross-sections used. The difference observed for the nitr. Joixide profiles and acrosol profiles around 440 nm can be explained by the fact that "Burrows" cross-sections differ from "Shettle" data by about 20 to 40% in the spectral domain 440-470 nm and by about 40 to 100% in the spectral domain 410-440 nm, as shown in Figure 8. For the nitrogen trioxide profiles, some investigations on the simulated optical thickness in the NO3 spectral domain are under way to understand the disagreement.



Figure 8 : Relative Difference between Shettle ozone cross section and Burrows ozone cross sections, in percent 100\*(Shettle-Burrows)/((Shettle-Burrows)/2). The left panel shows the relative difference in the nitrogen dioxide band and the right panel, in the Chappuis Land.

#### **4, CONCLUSION**

From the previous study one can conclude that LOA SAGE III Inversion Algorithm is well suited for simulated balloon transmission measurements, provided that some modifications due to the balloon viewing geometry are carried out and provided that an extrapolation of the extinction coefficient for the layers above the balloon is performed when the balloon is rather low: the derived amelioration of systematic errors is by 6% to 2% for a 30 km balloon float altitude. We have observed that the higher the detector float altitude is, the better works the whole inversion algorithm. The performances of the LOA inversion algorithm depend on the choice of the molecular cross-sections, as shown in the Chappuis band

simulation; this behaviour is obviously not the fact of this particular algorithm: the dependence on cross-sections of inversion algorithms is worth studying more deeply because this influences strongly the results.

Concerning the analysis of real balloon measurements we have encountered serious difficulties SALOMON measurements obtained from a 30 km float altitude have been inverted by LOA and LPCE with two independent techniques. The comparison between the retrieved profiles exhibits very large differences, except for the ozone and nitrogen dioxide ones. The way the aerosol extinction coefficient is retrieved from the two algorithms can explain the aerosol differences in the Chappuis band. It has been also shown that the choice of cross-sections is one of the reasons of the disagreement for the nitrogen dioxide, the nitrogen trioxide and aerosol retrievals.

#### REFERENCES

Ångström, A., On the Atmospheric Transmission of Sun Radiation and on Dust in the Air, Georgr. Ann. H., 156-166, 1929. Bazureau, A., Brogniez C. and Lenoble J., Nitrogen dioxide and ozone retrieval from simulated SAGE III transmission measurements, presented in *Optical Science, Engineering and Instrumentation*, SPIE99, Denver, Colorado, 1999a.

Bazureau, A. and Brogniez C., Inference of nitrogen trioxide and chlorine dioxide profile from simulated SAGE III transmission measurements, presented in *International Symposium on Spectral Sensing Research, Systems and Sensors for the New Millennium*, Las Vegas, Nevada, October 31<sup>a</sup> - November 4<sup>th</sup>, 1999b.

Bazureau, A., Brogniez C. and Lenoble J., An Overview of LOA SAGE III Inversion Algorithm, Geophys Res Lett., vol. 27, nº 15, 2225-2228, 2000.

Burrows, J.P., Dehn A., Deters B., Himmelmann S., Richter A., Voigt S. and Orphal J., Atmospheric remote-sensing reference data from GOME : Part 1. Temperature-dependent absorption cross-sections of the NO2 in the 231-794 nm range, *JQSRT*, Vol.6, No.6, December 1998.

Chu, W.P., Zawodny J., McCormick M.P. and the SAGE III Transmission Level 13 ATBD Team, SAGE III Algorithm Theoretical Basis Document (ATBD), Transmission Level 1Products, NASA, Version 1.1, November 1997.

Chu, W.P., McCormick M.P., Lenoble J., Brogniez C. and Pruvost P., SAGE II Inversion Algorithm, J. Geophys. Res., 94, D6, 8339-8351, 1989.

Deters, B. and Burrows J.P., Institute of Environmental Physics and Remote Sensing, IUP/IFE, University of Bremen-FB1, Postfach 30440, 28334 Bremen, Germany (personal communication, 1998)

Harder, J.W., Brault J.W., Johnston P.V. and Mount G.H., Temperature Dependent NO2 Cross Section at High Spectral Resolution. J. Geophys. Res., 102, 3861-3880, 1997.

Mérienne, M.F., Coquart B. and Jenouvrier A., The NO2 Absorption Spectrum, II Absorption Cross Section at Low Temperatures in the 400-500 nm region, J. Atmos. Chem., 21251-21261, 1995.

Renard, J.-B., Pirre M., Robert C., Moreau G., Huguenin D. and Russell III J.M., Nocturnal vertical distribution of stratospheric O<sub>3</sub>, NO<sub>2</sub> and NO<sub>3</sub> from balloon measurements, J. Geophys. Res., 101, 28793-28804, 1996.

Renard, J.-B., Chartier M., Robert C., Chalumeau G., Berthet G., Pirre M., Pommereau J.-P. and Goutad F., SALOMON : A new, light balloonborne UV-Visible spectrometer for nighttime observations of stratospheric trace-gas species. *Appl. Optics.*, vol 39, n°3, 386-392, 2000.

Shettle, E.P. and Anderson S., New visible and Near IR Ozone Cross Sections for MODTRAN, Proceedings of the 17<sup>th</sup> Annual Review Conference on Atmospheric Transmission Models, Special Report nº274, 335-345, Phillips Laboratory, PL-TR-95-2060, June 1994

# Bibliographie

- R. Abarca Del Rio, D. Gambis, D. Salstein, and B. Dewitte, El Niño et la rotation de la Terre, Pour la Science 281 (2001), 78-85.
- [2] C. Allègre and S. Schueider, La formation de la terre, L'atmosphère, Dossier Pour la Science, 1996.
- [3] S.M. Anderson and K. Mauersberger, Laser measurements of ozone absorption cross sections in the Chappuis band, Geophys. Res. Lett. 19 (1992), no. 9, 933-936.
- [4] M.O. Andreae, Raising dust in the greenhouse, Nature 380 (1996), 389-390.
- [5] A. Angström, On the atmospheric transmission of sun radiation and on dust in the air, Geogr. Ann. H. (1929), 156 - 166.
- [6] E. Arijs, D. Nevejans, D. Fussen, P. Frederick, E. Van Ransbeeck, Taylor F.W., S.B. Calcutt, S.T. Werrett, C.L. Hepplewhite, T.M. Pritchard, I. Burchell, and C.D. Rodgers, *The ORA occultation radiometer on EURECA. Instrument description and preliminary results*, Adv. Space Res. 16 (1995), no. 8, 833-836.
- [7] A. Bazureau, C. Brogniez, and J. Lenoble, An overview of LOA SAGE III inversion algorithme, Geophys. Res. Lett. 27 (2000), no. 15, 2225 - 2228.
- [8] A. Bazureau, C. Brogniez, and J.-B. Renará, Applications of SAGE III inversion algorithm to SALOMON measurements, Remote Sensing of Clouds and the Atmosphere V, SPIE 2000, vol. 4168, 2000, Barcelona, Spain, 25 - 29 September.
- [9] G. Bergametti, Les milles retombées des poussières, La Recherche 337 (2000), 56-60.
- [10] A. Berger, The Earth's past and future climate, EGS Newsletter 53 (1994), 1-8.
- [11] \_\_\_\_\_, Le passé climatique de la Terre, clef du futur, Ciel et Terre 112 (1996), no. 1, 3-14.

- [12] \_\_\_\_\_, Trou d'ozone et Prix Nobel 1995 de Chimie, La Météorologie 8 (1996), no. 13, 63-73.
- [13] G. Berthet, J.B. Renard, C. Brogniez, C. Robert, M. Chartier, and M. Pirre, Optical and physical properties of stratospheric aerosols from balloon measurements in the visible and near-infrared domain, submitted, 2001.
- [14] G. Berthet, E.D. Rivière, F. G.-Taupin, N. Huret, M. Pirre, F. Lefèvre, M. Chartier, N. Larsen, and B. Knudsen, Nocturnal nitrogen and halogen species above Kiruna during winter 2000, Poster, SOLVE THESEO 2000 Science Meeting, Palermo, Italy, 25-29 S ptember, 2000.
- [15] G.J.S. Bluth, S.D. Doiron, C.C. Schnetzler, A.J. Krueger, and L.S. Walter, Global tracking of the SO2 clouds from the June, 1991 Mont Pinatubo eruptions, Geophys. Res. Lett. 19 (1992), no. 2, 151 - 154.
- [16] F. Bonn and G. Rochon, Précis de télédétection, vol 1: Principes et méthodes, Presses de l'Université du Québec, 1993.
- [17] O. Boucher, L'influence climatique des aérosols, La Météorologie 8 (1997), no. 17, 11– 22.
- [18] J.A. Brion, A. Chakir, J. Charbonnier, D. Daumont, C. Parisce, and J. Malicet, Absorption spectra measurements for the ozone molecule in the 350 to 830 region J. Atmos. Chem. 30 (1985), 291-299.
- [19] C. Brogniez, A. Bazureau, J. Lenoble, and W.P. Chu, SAGE III measurements: a study on the retrieval of ozone, nitrogen dioxide and aerosol extinction coefficients, submitted, 2001.
- [20] C. Brogniez, L. Cazier, R. Ramananahérisoa, and J. Lenoble, Climatology of stratospheric aerosols from SAGE II and POAM II satellite measurements. Evaluation of their impact on radiative forcing, Workshop - WK1 - P21, Reduction of errors in aerosol forcing of climate (France CNES Proceedings 1, Meribel, ed.), 1999.
- [21] C. Brogniez and J. Lenoble, Size distribution of stratospheric aerosols from SAGE II multiwavelength extinctions, Aerosols and Climate, Hobbs and Mc Cormick (Eds.), A. Deepak Publishing, 1988, pp. 305 – 311.

- [22] C. Brogniez, P. Pruvost, I. Jankowiak, J. Lenoble, J.D. Lumpe, and R. Bevilacqua, POAM III Instrument: Comparison of 2 algorithms for atmospheric species retrieval, Poster, International Radiation Symposium (23-29 July Saint Petersbourg, Russia, ed.), 1999.
- [23] A. Bucholtz, Rayleigh-scattering for the terrestrial almosphere, Appl. Opt. 34 (1995), no. 15, 2765-2773.
- [24] J.B. Burkholder and R.K. Talukdar, Temperature dependence of ozone absorption spectrum over the wavelength range 410 to 760 nm, Geophys. Res. Lett. 21 (1994), no. 7, 581-584.
- [25] J.P. Burrows, A. Dehn, B. Deters, S. Himmelmann, A. Richter, S. Voigt, and J. Orphal, Atmospheric remote sensing reference data from GOME - 1: Temperature dependent absorption cross section of NO2 in the 251 - 794 range, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer 60 (1998), no. 6, 1025-1031.
- [26] J.P. Burrows, A. Richter, A. Dehn, S. Himmelmann, S. Voigt, and J. Orphal, Atmospheric remote sensing reference data from GOME - 2: Temperature dependent absorption cross section of O3 in the 231 - 794 range. J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer 61 (1999), 509-517.
- [27] L. Cazier, Préparation de l'analyse des mesures aérosols de l'expérience satellitaire future SAGE III, application aux données SAGE II: établissement d'une climatologie des caractéristiques des aérosols, z'h.D. thesis, Université de Lille 1, 1998.
- [28] M.T. Chahine, A general relaxation method for inverse solution of the full radiative transfert equation, J. Atmos. Sci. 29 (1972), 741-747.
- [29] S. Chandrasekhar, Radiative transfer, Dover Publications, Inc., New-York, 1960.
- [30] S. Chapman, A theory of upper atmospheric ozone, Quart. J. Roy. Meteorol. Soc. 3 (1030), 103.
- [31] P. Chazette, C. David, J. Lefrère, S. Godin, J. Pelon, and G. Mégie, Comparative lidar study of the optical, geometrical and dynamical properties of stratospheric post-volcanic aerosol, following the eruptions of El Chichon and Mount Pinatubo, J. Geophys. Res. 100 (1995), no. D11, 23195 - 23207.

- [32] W.F. Chu, M.P. McCormick, J. Lenoble, C. Brogniez, and P. Pruvost, SAGE III inversion algorithm, J. Geophys. Res. 94 (1989), no. D6, 8339 - 8351.
- [33] CNES. Journées scientifiques d'aéronomie en ballon, 3 4 reptembre 1996.
- [34] M.T. Coffey, Observations of the impact of volcanic activity on stratospheric chemistry, J. Geophys. Res. 101 (1996), no. D3, 6767–6780.
- [35] P.J. Crutzen, Ozone production rates in an oxygen-hydrogen-nitrogen oxide atmosphere,
   J. Geophys. Res. 76 (1971), no. 30, 7311 7326.
- [36] \_\_\_\_\_, An overview of atmospheric chemistry, Topics in atmospheric and interstellar physics and chemistry, vol. 1, Les Editions de Physique, 1994.
- [37] P.J Crutzen and F. Arnold, Nitric acid cloud formation in the cold Antarctic stratosphere: A major cause for the springtime ozone hole, Nature 342 (1986), 651-655.
- [38] F. Dalaudier, V. Kan, and S. Gurvich, Chromatic refraction with global ozone monitoring by occultation of stars. 1. Description and scintillation correction, Appl. Opt. 40 (2001), no. 6, 866 - 877.
- [39] B. Deters and J.P. Burrows, Institute of Environmental Physic and Remote Sensing. University of Bremen. 28334 Bremen. Germany, Personnal communication, 1998.
- [40] G.M.B. Dobson, Forty years' research on atmospheric ozone at Oxford: a Hi Jory, Appl. Opt. 7 (1968), no. 3, 387 - 405.
- [41] J.-C. Duplessy, Quand l'océan se fâche: histoire naturelle du climat, Editions Odile Jacob Sciences, 1996.
- [42] B. Edlen, The refractive index of air, Meteorology. 2 (1966), no. 2, 71-80.
- [43] J.C. Farman, B.G. Gardiner, and J.D. Shanklin, Larges losses of total ozone in Antarctica reveal seasonnal CLOX/NOX interactions, Nature 315 (1985), 207-210.
- [44] A.I. Flossmann and P. Laj, Acrosols, gases and microphysics of clouds, From urban air pollution to extra-solar planets, vol. 3, Les Editions de Physique, 1998.
- [45] G.J. Frost, L.M. Goss, and V. Vaida, Measurements of high-resolution ultraviolet-visible absorption cross sections at stratospheric temperatures - 2: Chlorine dioxide, J. Grophys. Res. 101 (1996), no. D2, 3879-3884.

#### Bibliogräphie

- [40] D. F. sen, E. Arijs, D. Nevejans, F. Van Hellemont, C. Brogniez, and J. Lenoble, Validation of the ARA spatial inversion algorithm with respect to the Stratospheric Aerosol and G / Experiment II data, Appl. Opt. 37 (1998), no. 15, 3121 - 3127.
- [47] GIEC, Rapport spécial des groupes de travail I et III du GIEC : L'aviation et l'almosphère planétaire, 1999.
- [48] W. Glaccum, R.L. Lucke, R.M. Bevilacqua, E.P. Shettle, J.S. Hornstein, D.T. Chen,
  J.D. Lumpe, S.S. Krigman, D.J. Debrestian, D.W. Rusch, J.J Olivero, C. Brognlez,
  J. Lenoble, and R. Kremer, The Polar Ozone and Aerosol Measurement instrument,
  J. Geophys. Res. 101 (1996), no. D9, 14479 14487.
- [49] G.D. Greenblatt, J.J. Orlando, J.B. Buskholder, and A.R. Ravishankara, Absorption measurements of Crygen between \$30 and 1:40 nm, J. Geophys. Res. 95 (1990), no. D11, 18,577-18,582.
- [50] J. E. Hanser and J.W. Hovemer, Interpretation of the potarisation of Venus, J. Atmos. Sci. (1974), 1137 - 1159.
- [51] J.W. Harder, J.W. Brault, P.V. Johnston, and G.H. Mount, Temperature dependent NO2 cross sections at high spectral resolution, J. Grophys. Res. 102 (1997), no. D3, 3861-3879.
- [52] A. Hauchecorne, LIDAR studies of the dynamics and the structure of the middle atmosphere at the observatory of Haute-Provence, Topics in atmospheric and interstellar physics and chemistry, vol. 1, Les Editions de Physique, 1994.
- [53] \_\_\_\_\_, Contribution of LIDAR measurements to the study of the middle atmospheric dyne ics, From urban : pollution to extra-solar products, vol. 3, Les Editions de Physique, 1998.
- [54] D.A. Hauglustaine, C. Granier, P. Brasseur, and G. Mégie, The importance of atmospheric chemistry in the calculation of radiative forcing on the climate system, J. Geophys. Res. 99 (1994), no. D1, 1173 - 1186.
- [55] J. Kaywood and O. Boucher, Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: a review, Rew. Geophys. 38 (2000), no. 4, 513 - 543.

- [56] J. Heintzenberg, H. Muller, H. Quenzel, and E. Thomalla, Information content of optical data with respect to aerosol properties: numerical studies with a randomized minimization-search-technique inversion algorithm, Appl. Opt. 20 (1981), 1308-1315.
- [57] D.V. Hoyt, A redetermination of the Rayleigh optical depth and its application to selected solar radiation problems, J. Appl. Meteorol. 16 (1977), 432-436.
- [58] D. Hurtmans, M. Herman and J. Vander Auwera, Integrated band intensities in N2O4 in the infrared band, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer 50 (1993), no. 6, 595-602.
- [59] A.E. Jones and J.D. Shanklin, Continued decline of total ozone over Halley, Antarctica, since 1985, Nature 376 (1995), 409–411.
- [60] J. Jouzel and D. Hauglustaine, Nouvelle stratégie contre l'effet de serre?, La Recherche 336 (2000), 16-17.
- [61] C.E. Junge and J.E. Manson, Stratospheric aerosol studies, J. Geophys. Res. 66 (1961), no. 7, 2163-2182.
- [62] P. Keckhut, Monitoring the middle atmosphere at the OHP using remote sensing techniques, From urban air pollution to extra-solar planets, vol. 3, Les Editions de Physique, 1998.
- [63] G.S. Keat, D.M. Winker, M.T. Osborn, and K.M. Skeens, A model for the separation of cloud and acrosol in SAGE II occultation data, J. Geophys. Res. 98 (1993), no. D11, 20725 - 20735.
- [64] M.D. King, D.M. Byrne, B.M. Herman, and J.A. Reagan, Aerosol size distributions obtained by inversion of spectral optical depth measurements, J. Atmos. Sci. 35 (1978), 2153-2167.
- [65] H. Kromminga, S. Voigt, J. Orphal, and P.J. Burrows, UV-Visible FT spectra of OCLO at atmospheric temperatures, ESA (1999), 459 - 463.
- [66] J. Labey ... Lomme et le climat, Collection Points Sciences, Editions du Seuil, 1993.
- [67] K. Labitzke and M.P. McCurnick. Stratospheric temperature increases due to Pinatubo aerosole, Geophys. Res. Lett. 19 (1992), no. 2, 207 - 210.
- [68] K. Labitzke, B. Naujokat, and M. Sato, Temperature effects on the stratosphere of the April 4, 1989 erunt of L Chichon, Mexico, Geophys. Res. Lett. 10 (1983), 24-26.

### Bibliographie

- [69] J. Lean and D. Rind, Earth's response to a variable sun, Science 292 (2001), 234-236.
- [70] J. Lenoble, Atmospheric radiative transfer, A. Deepak Publishing, 1993.
- [71] J. Lenoble and C. Brognlez, Information on stratospheric aerosol characteristics contained in the SAG& satellite multiwavelength extinction measurements, Appl. Opt. 24 (1985), no. 7, 1054 1063.
- [72] J. Lenoble and P. Pruvost, Inference of the aerosol Angström coefficient for SAGE short-wavelength data, J. Clim. Appl. Meteor. 22 (1983), no. 10, 1717 - 1725.
- [73] J.D. Lumpe, R.M. Bevilacqua, K.W. Hoppel, S.S. Krigman, D.L. Kriebel, D.J. Debrestian, C.E. Randall, D.W. Ruscb C. Brogniez, R. Ramananahérisoa, E. P. Shettle, J.J. Olivero, J. Lenoble, and P. F. avost, POAM II retrieval algorithm and error analysis, J. Geophys. Res. 102 (1997), 23593 23614.
- [74] L.E. Mauldin, N.H. Zaun, M.P. McCormick, J.H. Guy, and W.R. Vaughn, Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II instrument: a fonctional description, Opt. Eng. 24 (1985), no. 2, 307 - 312.
- [75] E.J. McCartney, Optics of the Atmosphere r Scattering by molecules and particles, John Wiley, New York, 1976.
- [76] J.P. Mc( ~ mack, L.L. Hood, R. Nagatani, A.J. Miller, W.G. Planet, and R.D. McPeters, Approximate separation of volcanic and 11-year signals in the SBUV-SBUV/2 total ozone record over the 1979-1995 perio<sup>4</sup> Geophys. Res. Lett. 24 (1997), no. 22, 2729-2732.
- [77] M.P. McCormick, P. Hamill, T.J , 4, W.P. Chu, T.J. Swissler, and L.R. McMaster, Satellite studies of stratosphere. meresol, Bull. Amer. Meteor. Soc. 60 (1979), no. 9, 1038 - 1046.
- [78] M.P. McCormick, H.M. Steele, P. Hamill, W.P. Chu, and T.J. Swissler, Polar stratospheric cloud sightings by SAM II, J. Atmos. Sci. (1982), 1387 - 1397.
- [79] M.P. McCormick and R.E. Veiga, SAGE II measurements of early Pinatubo aerosols, Geophys. Res. Lett. 19 (1992), no. 2, 155 - 158.
- [80] M.B. McElroy, R.J. Salawitch, S.C. Wofsy, and J.A. Logan, Reductions of Antarctic ozone due to synergistic interactions of chlorine and bromine, Nature "11 (1986), 759-762.

- [81] G. Mégie, Stratospheric ozone, Topics in atmospheric and interstellar physics and chemistry, vol. 1, Les Editions de Physique, 1994.
- [82] G. Mégle, Ozone : l'équilibre rompu, Presses du CNRS, 1989.
- [83] \_\_\_\_\_, Stratosphère et couche d'ozone. Collection Cahiers des sciences de l'univers, Masson, 1992.
- [84] \_\_\_\_\_, Ozone et propriétés oxydantes de la troposphère, La Météorologie 8 (1996), no. 13, 11-28.
- [85] D. Möller, Global sulfur and nitrogen biogeochemical cycles, Physics and Chemistry of the atmospheres of Earth and other objects of the solar system, vol. 2, Les Editions de Physique, 1996.
- [86] M.J. Molina and F.S. Rowland, Stratospheric sink for chloroflueromethanes: chlorine atome-catalysed destruction of ozone, Nature 249 (1974), 810–812.
- [87] M.F. Mérienne, A. Jenouvrier, and B. Coquart, The NO2 absorption spectrum, 1: Absorption cross sections at ambient temperature in the 300-500 nm region, J. Atmos. Chem. 20 (1995), 281.
- [88] J.P. Naudet, P. Rigaud, and D. Huguenin, Stratospheric NO2 at night from balloons, J. Geophys. Res. 89 (1984), 2583 - 2587.
- [89] J.P. Naudet, P. Rigaud, M. Pirre, and D. Huguenin, Altitude distribution of stratospheric NO3. 1. observations of NO3 and related species, J. Geophys. Res. 94 (1989), no. D5, 6374-6382.
- [90] J.M. Pacyna, *Emissions of pollutants and their control*, Topics in atmospheric and interstellar physics and chemistry, vol. 1, Les Editions de Physique, 1994.
- [91] K.F. Palmer and D. Williams, Optical constants of sulfuric acid; Application to the clouds of V-uus, Appl. Opt. 14 (1975), no. 1, 208-219.
- [92] S. Payan, C. Camy-Peyret, P. Jeseck, T. Hawat, M. Pirre, J.B. Renard, C. Robert, F. Lefevre, H. Kanzawa, and Y. Sasano, Diurnal and nocturnal distribution of stratospheric NO2 from solar and stellar occultation measurements in the Artic vortex: Comparison with models and ILAS satellite measurements, J. Geophys. Res. 104 (1999), no. D17, 21585 - 21593.

- [93] D. Pelat, Bruits et signaux: 'ntroduction aux méthodes de traitement des signaux, Tech. report, Ecole Doctorale d''le de France, 1989.
- [94] T.J. Pepin, M.P. McCormick, W.P. Chr., F. Simon, T.J. Swissler, R.R. Adams, K.H. Crun.bly, N.H. Fuller, Stratospheric aerosol measurements, NASA (SP-421, ed.), 1977, pp. 127 - 136.
- [95] J.M.C. Plane, Spectroscopic techniques for atmospheric measurements, Topics in atmospheric and interstellar physics and chemistry, vol. 1, Les Editions de Physique, 1994.
- [96] L.R. Poole and M.P. McCormick, Polar stratospheric clourds and the Antarctic ozone hole, J. Geophys. Res. 93 (1988), no. D7, 8423 - 8430.
- [97] M. Prather, P. Midgley, F.S. Rowland, and R. Stolarski, The ozone layer: the road not taken, Nature 381 (1996), 001-554.
- [98] R. Ramananahérisoa, Analyse des mesures de l'expérisnee satellitaire POAM II. algorithme d'inversion et intervalidation avec les mesures de SAGE II, Ph.D. thesis, Université de Lille 1, 1998.
- [99] D. Ramon, Détection des aérosols stratosphériques par mesure ballon du rayonnement diffus au limbe: Mise au point d'un nouvel instrument et premiers résultats, Ph.D. thesis, Université de Lille 1, 1995.
- [100] A.R. Ravinshankara and D.R. Hanson, Differences in the reactivity of type i polar stratospheric clouds depending on their phase, J. Geophys. Res. 101 (1996), no. D2, 3885 - 3890.
- [101] A.R. Ravishankara and R.L. Mauldin III, Temperature dependance of the NO3 cross section in the 662-nm region, J. Geophys. Res. 91 (1986), no. D8, 8709-8712.
- [102] J.B. Renard, M. Chartier, G. Berthet, C. Robert, M. Pirre, F. Taupin, J.P. Pommerezu, F. Goutail, and P. François, A new light balloonborne UV-visible spectrometer designed for night-time observations of stratospheric trace-gas species, 14th ESA Symposium on European Rocket and Balloon Programmes and related research (ESA SP-437, ed.), September Postdam, Germany, 1999.
- [103] J.B. Renard, M. Chartier, C. Robert, G. Chalumeau, G. Berthet, M. Pirre, J.P. Pommereau, and F. Goutail, SALOMON : A new, light balloonborne UV-visible spectrometer

for nighttime observations of stratospheric trace-gas species, Appl. Opt. 39 (2000), no. 3, 386 - 392.

- [104] J.B. Renard, F. Dalaudier, A. Hauchecorne, C. Robert, T. Lemaire, M. Pirre, and J.L. Bertaux, Measurements of stratospheric chromatic scintillation with the AMON-RA balloonborne spectrometer, Appl. Opt. 40 (2001), no. 24, 4254 - 4260.
- [105] J.B. Renard, F. Lefèvre, M. Pirre, C. Robert, and D. Huguenin, Vertical profile of night-time stratospheric OCLO, J. Atmos. Chem. (1997), no. 26, 65-76.
- [106] J.B. Renard, M. Pirre, C. Robert, G. Moreau, D. Huguenin, and J.M. Russell III, Nocturnal vertical distribution of stratospheric O3, NO2 and NO3 from balloon measurements, J. Geophys. Res. 101 (1996), no. D22, 28793 - 28804.
- [107] E.D. Rivière, N. Huret, F. G.-Taupin, J.B. Renard, M. Pirre, S.D. Eckermann, N. Larsen, T. Deshler, F. Lefèvre, S. Payan, and C. Camy-Peyret, Role of Lie waves in the formation of polar stratospheric clouds: Case studies from february 1997, J. Geophys. Res. 105 (2000), no. D5, 6845 - 6853.
- [108] H.K. Roscoe, R.A. Freshwater, R. Wolfenden, R.L. Jones, D.J. Fish, J.E. Harries, A.M. South, and D.J. Oldham, Using stars for remote sensing of the Earth's atmosphere, Appl. Opt. 33 (1994), no. 30, 7126 - 7131.
- [109] P.B. Russell, J.M. Livingston, R.F. Pueschel, Bauman J.J., J.B. Pollack, S.L. Brooks, P. Hamill, L.W. Thomason, L.L. Stowe, T. Deshler, E.G. Dutton, and R.W. Bergstrom, Global to microscale evolution of the Pinatubo volcanic aerosol derived from diverse measurements and analyses, J. Geophys. Res. 101 (1996), no. D13, 18745 - 18763.
- [110] SAGE III Algorithm Theoretical Basis Document (ATBD): Solar and lunar algorithm, November 1997, Transmission Level 1 Products NASA, LARC, Version 1.0.
- [111] SAGE III Algorithm. Theoretical Basis Document (ATBD): Solar and lunar algorithm, November 2000, LARC 475-00-109, Version 2.
- [112] SAGE III Algorithm Theoretical Basis Document (ATBD): Transmission level 1b products, November 2000, LARC 475-00-108, Version 2.
- [113] Stratospheric aerosol and gas experiment SAGE III: Data Products User's Guide, September 2001, LARC 475-03-060, Version 1.0.

- [114] G. Saporta, Analyse des données el statistique, Ed. Technip, 1990.
- [115] A. Sarkissian, Observation depuis le sol des nuages et des poussières dans l'atmosphère. applications à la stratosphère polaire et à l'atmosphère de Mars, Pn.D. thesis, Université Pierre et Marie Curie Paris VI, 1992.
- [116] Y. Sasano, M. Suzuki, T. Yokota, and H. Kanzawa, Improved Limb Atmospheric Spectrometer (ILAS) for stratospheric ozone layer measurements by solar occultation technique, Geophys. Res. Lett. 26 (1999), no. 2, 197 – 200.
- [117] W. Schneider, G.K. Moortgat, G.S. Tyndall, and J.P. Burrows, Absorption cross section of NO2 in the uv-visible region (200 - 700 nm), J. Photochem. Photobiol. A 40 (1987), 195.
- [118] J.H. Seinfeld and S.N. Pandis, Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change, John Wiley, New York. 1997.
- [119] E.P. Shettle and S.M. Anderson, New visible and Near IR ozone cross section for MODTRAN, 17th Annual Review Conference on Atmospheric Transmission Models (PL-TR-95-2060 Phillips Laboratory, ed.), June 1994, pp. 335-345.
- [120] D.T. Shindeil, D. Rind, and P. Lonergan, Increased polar stratospheric ozone loss and delayed eventual recovery owing to increasing greenhouse-gas concentrations, Nature 392 (1998), 589 - 592.
- [121] S. Solomon, Stratospheric ozone depletion: A review of concepts and history, Rev. Geophys. 97 (1999), 275 - 316.
- [122] J. Stachelin, N.R.P. Harris, C. Appenzeller, and J. Eberhard, Ozone trends: a review, Rev. Geophys. 39 (2001), 231 - 290.
- [123] R.K. Tallamaraju, Inference of stratospheric minor constituents from satellite limb radiant intensity measurements, HAEL, Univ. Michigan, Ann Arbor, MI (Report 011023 3 6 T, ed.), 1975, p. 152 pp.
- [124] A. Tarantola, Inverse problem theory: Methods for data fitting and model parameter estimation, Elsevier, 1994.
- [125] L.W. Thomason and L.R. Poole, Use of stratospheric aerosol properties as diagnostics of Antarctic vortex processes, J. Geophys. Res. 98 (1993), no. D12, 23003 - 23012.

- [126] O. Toon and R. Turco, La diminution de l'ozone stratosphérique, L'atmosphère, Dossier Pour la Science, 1996.
- [127] J.C. Van Der Leun, X. Tang, and M. Tevini, Environmental effects of ozone depletion: 1994 Assessment, Ambio 24 (1995), no. 3, 143-196.
- [128] A.C. Vandaele, C. Hermans, P.C. Simon, M. Carleer, R. Colin, S. Fally, M.F. Mérienne,
   A. Jenouvrier, and B. Coquart, Measurements of the NO2 absorption cross sections from 42 000 cm<sup>-1</sup> to 10 000 cm<sup>-1</sup> (238-1000 nm) at 220 k and 294 k, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer 50 (1998), no. 3-5, 171-184.
- [129] C. Voigt, J. Schreiner, A. Kohlmann, P. Zink, K. Mauersberger, N. Larsen, T. Deshler, C. Kroger, J. Rosen, A. Adriani, F. Cairo, G. Di Donfranscesco, M. Viterbini, J. Ovarlez, H. Ovarlez, C. David, and A. Dornbrack, *Nitric acid trihydrate (NAT) in polar etratospheric clouds*, Science 290 (2000), 1756 - 1758.
- [130] A. Wahner, G. Tyndall, and A.R. Ravishankara, Absorption cross section for OCLO as a function of temperature in the wavelength range from 240 to 490 nm, J. Phys. Chem. 91 (1987), 2734.
- [131] D.M. Winker and M.T. Osborn, Airborne LIDAR observations of the Pinatubo volcanic plume, Geophys. Res. Lett. 19 (1992), no. 2, 167-170.
- [132] G.K. Yue, Retrieval of aerosol size distributions and integral properties from simulated extinction measurements at SAGE III wavelengths by the linear minimizing error method, J. Geophys. Res. 105 (2000), no. D11, 14719-14736.

# Résumé

Après avoir connu quelques retards, l'expérience spatiale SAGE III est sur le point d'être lancée à bord de METEOR 3M début décembre 2001. L'instrumen: SAGE III doit mesurer les profils verticaux des constituants atmosphériques (gaz et aérosols) en utilisant le principe d'occultation solaire et lunaire. Par rapport à son prédecesseur SAGE II, la bande spectrale de SAGE III a été élargie par l'utilisation d'un détecteur CCD, permettant une couverture spectrale plus étendue (de 280 à 1040 nm) et par l'ajout d'une photodiode infrarouge à 1550 nm. Notre travail a consisté à élaborer un algorithme d'inversion, dit *inversion dans les bandes résolues* pour les mesures de transmission de SAGE III. Nous avons utilisé 4 bandes spectrales résolues en sous-canaux étroits, situées autour de 410 nm, 442 nm, 590 nm et 660 nm, pour obtenir une restitution aisée des concentrations des différents constituants atmosphériques. Les premières simulations ont montré sa capacité à restituer avec une bonne précision les profils verticaux diurnes de densités moléculaires d'ozone et de dioxyde d'azote ainsi que les profils de coefficient d'extinction des aérosols. Les résultats préliminaires pour le cas lunaire ont été encourageants.

Parallèlement, l'inversion par analyse globale, utilisant toutes les longueurs d'ondes, développée par le LOA pour les mesures de SAGE II et de POAM II et III, a été adaptée aux mesures de SAGE III. Une comparaison entre ces deux algorithmes a été menée à partir des simulations portant sur difí : ents profils d'ozone et types d'aérosols, de granulomètrie variée. Les premiers résultats nous ont conduit à la mise en place d'une troisième inversion, dite inversion combinée, résultat d'une fusion entre deux méthodes d'inversion, permettant de restituer les cœfficients d'extinction des aérosols en dehors des bandes résolues.

Les mesures réelles de SAGE III n'étaient pas disponibles mais nous avons eu la possibilité d'accéder aux mesures des expériences ballon AMON et SALOMON à partir de Kiruna (Suède), réalisées par l'équipe du LPCE. Cela nous a permis de tester l'*inversion dans les bandes résolues* avec des mesures réelles. Les profils verticaux de densité moléculaire d'ozone, de dioxyde d'azote et du trioxyde d'azote ainsi que des profils de coefficient d'extinction des aérosols retrouvés ont été comparés avec ceux obtenus par la méthode d'inversion du LPCE. Une comparaison des dépendances spectrales des cœfficients d'extinction des aérosols déterminés par ces deux méthodes a été discutée. La comparaison des résultats obtenus par ces deux méthodes d'inversion a montré qu'il y a désaccord entre les profils pour certains des constituants, notamment pour les aérosols.

Mots Clefs : Inversion, SAGE III, Aérosols, Ozone, Dioxyde d'azote, SALOMON, AMON.

a harden a

.

FIN AFNOR Cedex 7 - 92080 PARIS-LA-DÉFENSE MIRE ISO N° NFZ 43-007 EGEN MARGE graphicom

