

# Chapitre 3

## Bases de données FTIR

### 3.1. Introduction

Lorsqu'elle traverse l'atmosphère terrestre, la lumière du soleil subit de nombreuses transformations. La majeure partie du rayonnement ultraviolet est absorbée dès les plus hautes couches atmosphériques (thermosphère, mésosphère et stratosphère) par l'oxygène ( $\lambda < 242.4$  nm) et par l'ozone ( $242 < \lambda < 310$  nm). La composante UV-visible qui atteint les couches les plus denses de l'atmosphère est également en partie absorbée par l'ozone mais elle est essentiellement diffusée par les molécules et les aérosols atmosphériques. Le rayonnement solaire infrarouge subit peu de diffusion. Il est essentiellement absorbé par les constituants minoritaires qui composent l'atmosphère, en particulier par les GES (voir Chapitre 1) tels que  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{O}_3$  ou encore  $\text{N}_2\text{O}$ . Lorsque les raies d'absorption de ces gaz ne sont pas masquées par les larges bandes d'absorption liées à des composés très absorbants tels que la vapeur d'eau ou le dioxyde de carbone, il est possible de les exploiter afin d'en déduire leur teneur atmosphérique. La technique permettant d'effectuer une telle inversion et implémentée dans le code SFIT-2 sera abordée au chapitre suivant. L'objet de ce chapitre est dans un premier temps d'évoquer succinctement les principes de la spectrométrie infrarouge et en particulier, de la spectrométrie par transformée de Fourier (FTIR). Dans un second temps, nous décrivons les bases de données observationnelles, constituées pour la plupart par technique FTIR, qui nous ont permis d'obtenir les résultats géophysiques qui seront exposés ultérieurement.

### 3.2. La spectrométrie IR

Le domaine de l'infrarouge moyen (compris entre 2 et  $15\mu\text{m}$  ou encore entre  $5000$  et  $650\text{ cm}^{-1}$ ) contient les signatures spectrales d'un grand nombre de composés atmosphériques. Afin d'obtenir des rapports signal/bruit élevés à haute résolution spectrale, la plupart des observations atmosphériques modernes sont effectuées à l'aide de spectromètres par transformée de Fourier (FTS - *Fourier Transform Spectrometer*). Ces spectromètres permettent en outre d'enregistrer simultanément de larges domaines spectraux, donnant ainsi accès à l'étude conjointe de maints constituants atmosphériques. Contrairement à un spectromètre à réseau, un FTS n'enregistre pas directement le spectre mais sa transformée de Fourier, appelée *interférogramme*. Avant d'introduire les bases mathématiques relatives à la transformée de Fourier, nous allons décrire le principe de fonctionnement d'un spectromètre par transformée de Fourier, qui est celui d'un interféromètre de Michelson. Nous évoquerons également quelles sont les limitations physiques fondamentales d'un tel instrument.

### 3.2.1. Principe du spectromètre par transformée de Fourier

Dans un interféromètre de Michelson (Figure 1), un faisceau lumineux incident est séparé en deux par une lame séparatrice semi-réfléchissante. Ces deux parties vont se réfléchir sur des miroirs, dont l'un est fixe et l'autre mobile, pour se recombinaison ensuite au niveau de la lame séparatrice. Quand elles se recombinaison, les deux parties du faisceau lumineux interfèrent puisqu'elles n'ont pas parcouru le même chemin optique. Cette différence de chemin optique (OPD - *Optical Path Difference*) vaut  $x$  si  $\frac{x}{2}$  est le déplacement du miroir mobile par rapport à sa position initiale correspondant à une différence de marche nulle (ZPD - *Zero Path Difference*). La différence de marche maximale vaut  $2L$  si  $L$  est le déplacement maximal du miroir. Lorsqu'il quitte l'interféromètre, le faisceau est alors focalisé sur le détecteur.

Pour un faisceau lumineux monochromatique et d'intensité  $I$ , l'intensité observée au niveau du détecteur (l'interférogramme) s'écrit, en fonction de la différence de marche  $x$  :

$$I(x) = \frac{I}{2} \left( 1 + \cos\left(\frac{2\pi x}{\lambda}\right) \right) \quad (1)$$

L'interférence sera donc constructive et maximum lorsque la différence de marche  $x$  est un multiple entier de la longueur d'onde  $\lambda$ . Par contre, si cette différence de marche est un multiple impair de la demi-longueur d'onde, les faisceaux lumineux vont interférer destructivement et donner lieu à une intensité à la sortie nulle. Afin de contrôler la position du miroir mobile, le spectromètre utilise les franges d'interférence produites par un laser; par ailleurs, les positions d'échantillonnage de l'interférogramme infrarouge peuvent être déterminées à partir des passages par zéro de l'interférogramme produit par le laser.

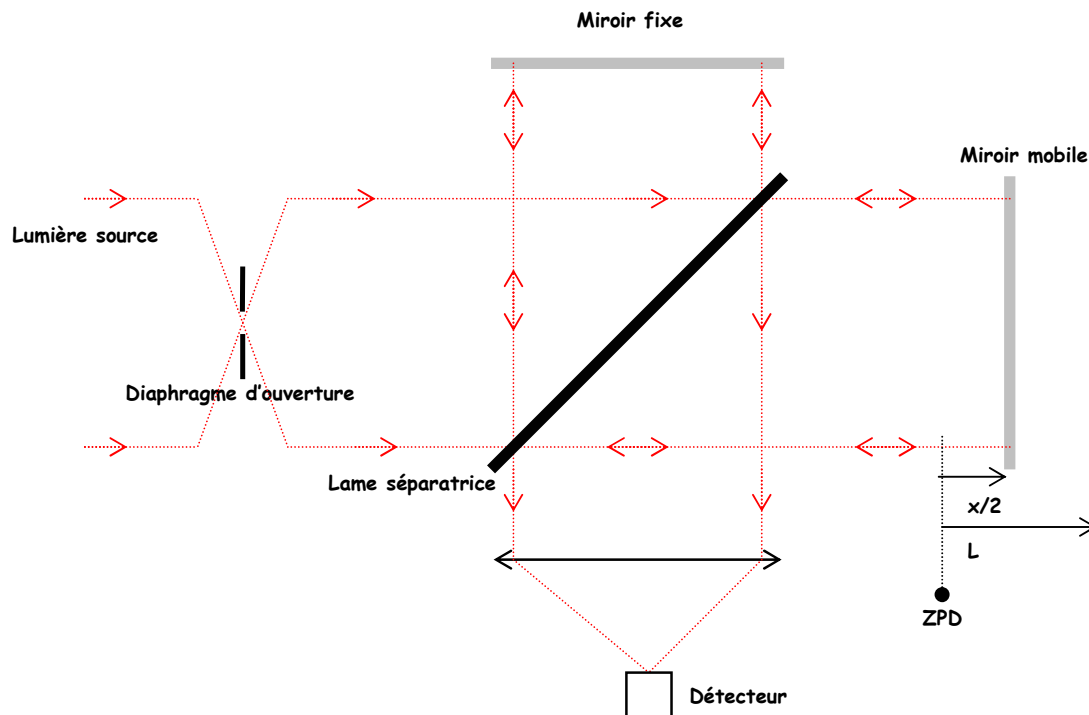


Figure 1 - Schéma optique typique d'un interféromètre de Michelson.

Dans le cas d'une source de lumière polychromatique, caractérisée par une distribution spectrale  $S(\sigma)$ , l'interférogramme à la différence de marche  $x$  est égal à la somme des contributions de chaque élément spectral  $d\sigma$ , soit l'intégrale :

$$I(x) = \int_0^{\infty} S(\sigma) \cos(2\pi\sigma x) d\sigma \quad (2)$$

avec  $\sigma = \frac{1}{\lambda}$  le nombre d'onde associé à chaque composante de la radiation. En notations complexes, cette dernière relation peut encore s'écrire, à condition d'introduire la fonction physique (réelle et paire)  $S_e(\sigma) = \frac{S(\sigma) + S(-\sigma)}{2}$  définie uniquement pour  $x > 0$  :

$$I(x) = \int_{-\infty}^{\infty} S_e(\sigma) e^{2i\pi\sigma x} d\sigma \quad (3)$$

et l'interférogramme constitue dès lors la transformée de Fourier de la source. La limite de résolution  $\delta\sigma$  d'un FTS vaut  $\frac{1}{2L}$  et le pouvoir de résolution  $R = \frac{\sigma}{\delta\sigma} = 2\sigma L$  correspond au nombre de franges  $N$  enregistrées dans l'interférogramme.

### 3.2.2. La transformée de Fourier

Nous venons de voir qu'un FTS n'enregistre pas directement le spectre de la source dans le domaine spectral ( $\sigma$ ) mais un interférogramme dans l'espace interférométrique ( $x$ ). Afin de passer de l'espace interférométrique à l'espace fréquentiel, nous allons exploiter les propriétés de la transformée de Fourier dont les plus générales sont reprises ci-dessous.

Si on définit la transformée de Fourier (continue)  $F(\sigma)$  d'une fonction  $f(x)$  par :

$$F(\sigma) = \int_{-\infty}^{\infty} f(x) e^{-2i\pi\sigma x} dx \quad (4)$$

sa transformée de Fourier inverse vaut :

$$f(x) = \int_{-\infty}^{\infty} F(\sigma) e^{2i\pi\sigma x} d\sigma \quad (5)$$

et les fonctions  $F(\sigma)$  et  $f(x)$  constituent ce qui est appelé une *paire de transformées de Fourier*. Dans la suite, les fonctions seront représentées en lettres minuscules, leurs transformées de Fourier en majuscules. En désignant les produits de convolution, les implications et les conditions bidirectionnelles («si et seulement si») respectivement par  $*$ , par  $\Rightarrow$  et par  $\Leftrightarrow$ , citons parmi les propriétés essentielles de la transformée de Fourier :

- Linéarité : la transformée de Fourier d'une combinaison linéaire de fonctions est la combinaison linéaire correspondante des transformées de Fourier de ces fonctions

- Dilatation :  $f(\alpha x) \Rightarrow \frac{1}{|\alpha|} F\left(\frac{\sigma}{\alpha}\right)$  (6)

- Translation :  $f(x-a) \Leftrightarrow e^{-2i\pi\sigma a} F(\sigma)$  (7)

- $(f * g)(y) = \int_{-\infty}^{\infty} f(x) g(y-x) dx \Leftrightarrow (F.G)(\sigma)$  (8)

- $|f|^2 = \int_{-\infty}^{\infty} f(x) f^*(x) dx = \int_{-\infty}^{\infty} F(\sigma) F^*(\sigma) d\sigma = |F|^2$  (9)

Cette dernière propriété constitue le *Théorème de Parseval*. La propriété (8), qui porte le nom de *Théorème de convolution*, est l'une des plus importantes de la théorie de la transformée de Fourier. En d'autres termes, ce théorème signifie que le produit de convolution dans le domaine interférométrique équivaut à effectuer une simple multiplication dans le domaine spectral (et inversement). Grâce aux algorithmes de calcul de transformées de Fourier rapides (FFT - *Fast Fourier Transform*), cette propriété est très souvent exploitée pour gain de temps.

En se servant de (5), le spectre de la source dans le domaine fréquentiel s'obtient à partir de l'interférogramme (3) :

$$S_e(\sigma) = \int_{-\infty}^{\infty} I(x) e^{-2i\pi\sigma x} dx \quad (10)$$

En spectroscopie par transformée de Fourier, nous sommes toujours amenés en pratique à choisir une certaine longueur finie L d'intervalle de mesure sur lequel le spectre sera étudié. Par conséquent, nous allons échantillonner ce dernier, puisque la théorie de l'information enseigne

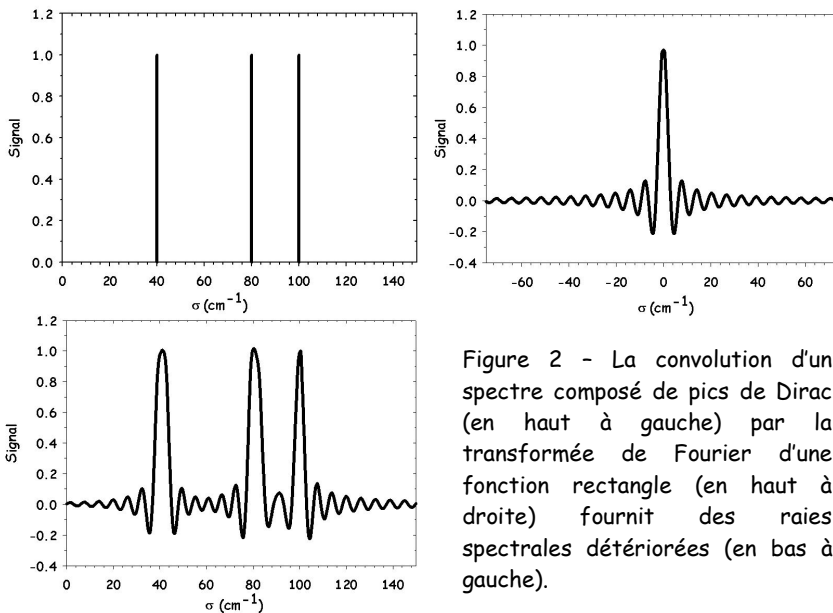


Figure 2 - La convolution d'un spectre composé de pics de Dirac (en haut à gauche) par la transformée de Fourier d'une fonction rectangle (en haut à droite) fournit des raies spectrales détériorées (en bas à gauche).

qu'une fonction limitée peut être parfaitement définie à partir de N valeurs discrètes. Le choix de la longueur L détermine ce qui est appelé «la fenêtre» et qui, en général, est rectangulaire : nous limitons en effet la période d'observation à une longueur L et nous troquons la fonction abruptement de part et d'autre de cet intervalle. Si l'on se souvient que multiplier dans le domaine interférométrique par la fenêtre choisie est

équivalent à effectuer un produit de convolution dans le domaine fréquentiel, le spectre réel peut donc être endommagé. La Figure 2 illustre l'effet de la convolution d'un spectre constitué de pics de Dirac par la transformée de Fourier d'une fenêtre rectangulaire. Puisque la transformée de Fourier d'une fonction rectangle est un  $\frac{\sin(x)}{x}$ , les raies spectrales présentent une succession de

lobes alternativement positifs et négatifs et dont les intensités décroissent à mesure que l'on s'éloigne du centre de la raie. Nous verrons ultérieurement qu'il est possible en pratique d'adoucir cette déformation en ayant recours à la fonction d'apodisation. La longueur  $L$  de l'enregistrement limite également la résolution en fréquence : la plus petite fréquence observable est donnée par  $\frac{1}{2L}$ . De plus, deux fréquences  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$  ne pourront être séparées que si  $2L > \frac{1}{\sigma_2 - \sigma_1}$ .

Echantillonner périodiquement une fonction en  $N$  points est équivalent à multiplier cette fonction par un « peigne » de Dirac, laquelle consiste en une infinité de pics de Dirac périodiquement espacés. Si l'espace entre chaque pic vaut  $\delta x$ , dans le domaine fréquentiel le spectre résulte alors de la convolution du spectre de la fonction par une fonction peigne d'intervalle  $\frac{1}{\delta x}$ . Le choix de

l'intervalle  $\delta x$  doit se faire en tenant compte du *Théorème d'échantillonnage de Shannon* :

$$\sigma_{\max} < \frac{1}{2 \delta x} = \sigma_N \quad (11)$$

où  $\sigma_{\max}$  correspond à la plus grande fréquence présente dans le spectre de la fonction. La plus haute fréquence  $\sigma_N$  qui fixe l'échantillonnage est appelée *fréquence de Nyquist*. En d'autres termes, la relation (11) stipule que l'échantillonnage doit être tel qu'il y ait au moins deux points d'échantillonnage par cycle correspondant à la fréquence  $\sigma_{\max}$ . Si l'on prend plus de deux points par cycle, il y aura de l'information redondante. Par contre, si l'on prend moins de deux points

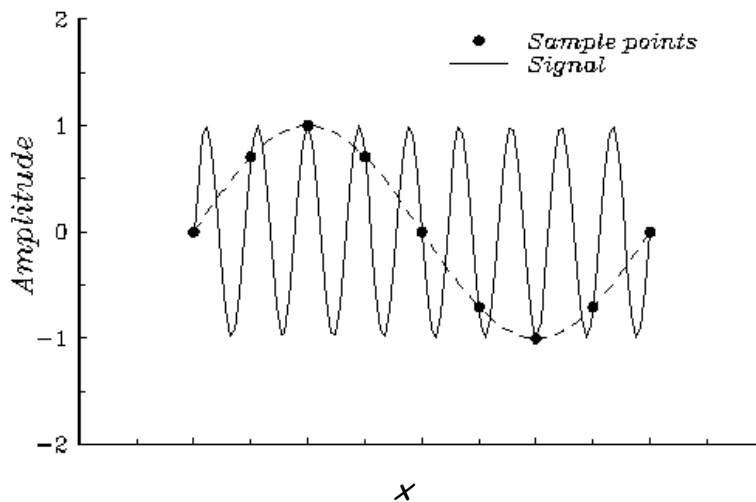


Figure 3 - Si le nombre minimum de points d'échantillonnage (points noirs) ne satisfait pas au Théorème de Shannon, le phénomène d'aliasing apparaît, donnant l'illusion d'être en présence d'un phénomène de plus longue période (traits discontinus) que la réalité (trait continu).

<http://galileo.phys.virginia.edu/classes/551.jvn.fall01/aliasing.gif>

d'échantillonnage par cycle, se produit le phénomène d'*aliasing* qui se traduit par la présence dans le spectre de pics à des fréquences inférieures aux fréquences réelles, donnant l'illusion de se trouver en présence d'un phénomène de plus longue période que la réalité (Figure 3). En pratique, afin d'éviter ce phénomène, la fonction est filtrée de toutes ses fréquences supérieures à la fréquence de Nyquist (déterminée par le taux d'échantillonnage) avant d'être échantillonnée.

Signalons que pour des grandeurs échantillonnées, il n'est évidemment plus possible d'utiliser la transformée de Fourier continue : on introduit la notion de transformée de Fourier discrète (DFT - *Discrete Fourier Transform*). Les propriétés de la transformée de Fourier discrète sont analogues à celles de la transformée de Fourier continue, où les intégrales sont remplacées par des sommes finies.

### 3.2.3. Limitations physiques

Dans cette section, nous allons envisager successivement deux des principales limitations physiques liées au fonctionnement d'un spectromètre par transformée de Fourier.

#### Différence de chemin optique finie

Comme nous l'avons évoqué précédemment, dans l'hypothèse d'un interféromètre mesurant une source de lumière parfaitement monochromatique, l'interférogramme prend la forme d'un cosinus d'amplitude constante s'étendant depuis la différence de marche zéro jusqu'à la différence de marche maximale  $2L$  (relation (1)). Puisque l'interférogramme n'est pas mesuré en dehors de ces limites et puisque l'amplitude des franges d'interférence est constante, l'enveloppe de l'interférogramme aura l'allure d'une fonction rectangle. C'est la transformation de cette fonction rectangle lors du passage à l'espace fréquentiel qui sera responsable du profil instrumental puisque par définition, le profil instrumental d'un instrument est sa réponse à une radiation monochromatique; dans ce cas-ci, le profil instrumental aura donc l'allure d'une fonction  $\frac{\sin(x)}{x}$ . Notons d'ores et déjà que nous n'envisagerons dans ce paragraphe que la seule influence de la différence de marche maximum sur l'allure du profil instrumental; les effets d'une ouverture d'entrée finie seront envisagés au point suivant.

Mathématiquement, l'interférogramme observé par un instrument caractérisé par une ouverture d'entrée d'extension nulle s'obtient en multipliant l'interférogramme dont l'OPD serait infini par une fonction rectangle de largeur  $2L$  :

$$I_{obs}(x) = I(x) \times \text{rect}\left(\frac{x}{2L}\right) \quad (12)$$

$$\text{avec } \text{rect}\left(\frac{x}{2L}\right) = \begin{cases} 0 & \text{pour } \frac{x}{2L} < 0 \text{ et } > 1 \\ \frac{1}{2} & \text{pour } \frac{x}{2L} = 0 \text{ et } 1 \\ 1 & \text{pour } > 0 \text{ et } < 1 \end{cases}$$

Compte tenu de la relation (8), le spectre résultant de l'interférogramme observé tronqué s'écrit :

$$S_{obs}(\sigma) = S_e(\sigma) * 2L \frac{\sin(2\pi\sigma L)}{2\pi\sigma L} \quad (13)$$

Dès lors, si le spectre réel consiste en une raie de fréquence  $\sigma$ , le spectre observé sera la convolution du spectre réel par une fonction instrumentale de type  $\frac{\sin(x)}{x}$  centrée en  $\sigma$  et dont la largeur des lobes (donnée par  $\frac{1}{2L}$ ) dépend de la différence de marche maximum  $2L$ . Cette convolution est l'inévitable conséquence de la troncature de l'interférogramme.

Si la largeur des lobes de la fonction instrumentale est grande vis-à-vis de la largeur de la raie

observée, son effet sera visible et pourrait être gênant. Afin d'en réduire la portée, il est possible d'appliquer une fonction d'apodisation à l'interférogramme. Une telle fonction décroît de manière continue jusqu'à une valeur nulle afin d'éviter la chute brutale du signal à zéro lorsque le miroir mobile de l'interféromètre arrive en bout de course. La Figure 4 reproduit quelques exemples courants de fonctions d'apodisation ainsi que leurs équivalents fréquentiels. Quelle que soit la fonction d'apodisation utilisée, l'apodisation conduit toujours à un élargissement des raies spectrales, dégradant ainsi leur résolution. Il conviendra dès lors d'enregistrer les spectres à une résolution suffisante pour que l'effet de la fonction instrumentale ne soit pas gênant.

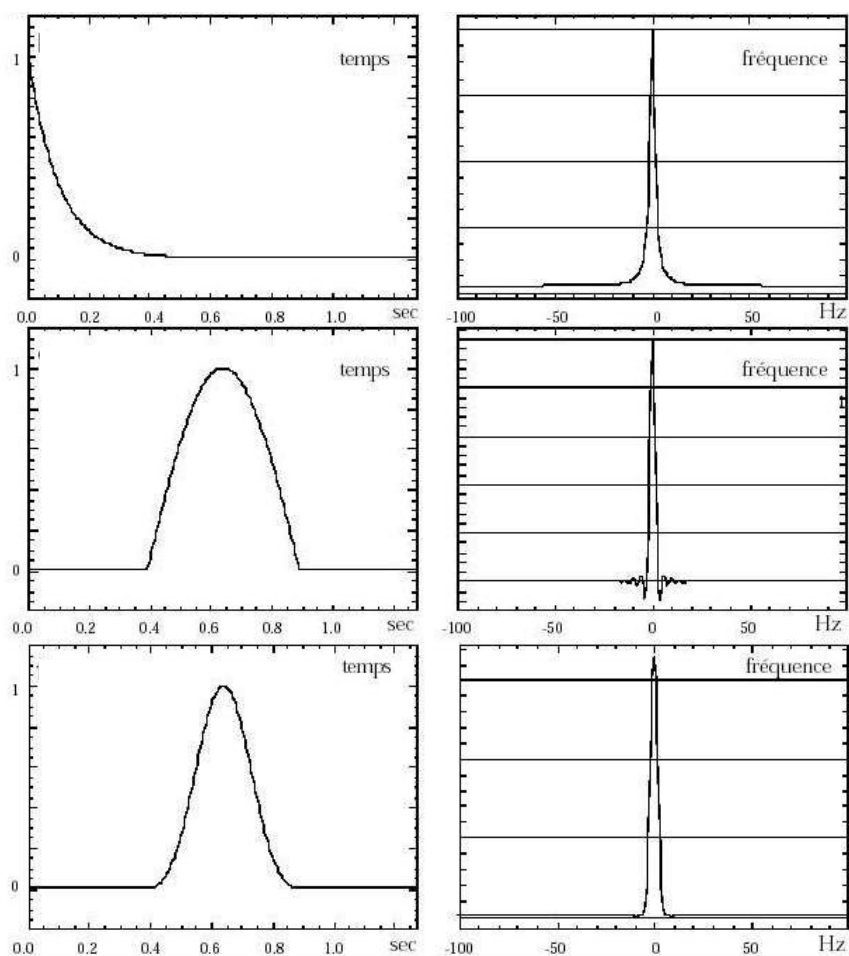


Figure 4 - Quelques exemples de fenêtre d'apodisation et leurs équivalents fréquentiels. De haut en bas, fenêtres : exponentielle, cosinus et de Blackman.

La fonction instrumentale peut être sujette à des distorsions si, par exemple, l'instrument n'est pas parfaitement aligné. Certaines de ces distorsions peuvent toutefois être tenues en compte dans la plupart des codes d'inversion. Le code SFIT-2 que nous avons utilisé pour obtenir les résultats présentés au Chapitre 4 permet de modéliser les distorsions de la fonction rectangle qui multiplie l'interférogramme grâce à une fonction dite d'apodisation. L'utilisateur a le choix de la définir comme un polynôme de degré  $N$ , comme une série de Fourier ou comme toute autre fonction tabulée définie point par point. Dans tous les cas, la valeur de la fonction utilisée à ZPD est fixée à 1. Le paramètre d'apodisation effective (EAP) représente la valeur de cette fonction d'apodisation à la différence de marche maximum; une valeur de EAP proche de 1 témoigne d'un instrument bien aligné, dans le cas où la fonction d'apodisation est définie par une droite.

### Ouverture d'entrée finie

A ce stade, nous avons supposé que la seule limite portant sur la résolution spectrale est liée à la longueur d'enregistrement de l'interférogramme; cela suggère par conséquent que la résolution peut être améliorée indéfiniment en allongeant simplement la différence maximum de trajet optique. Toutefois en pratique, cela n'est pas le cas : l'utilisation (nécessaire) d'une ouverture d'entrée de taille non nulle permet aux rayons inclinés par rapport à l'axe optique de pénétrer dans l'interféromètre ce qui engendre une diminution du signal aux grandes différences de chemin optique.

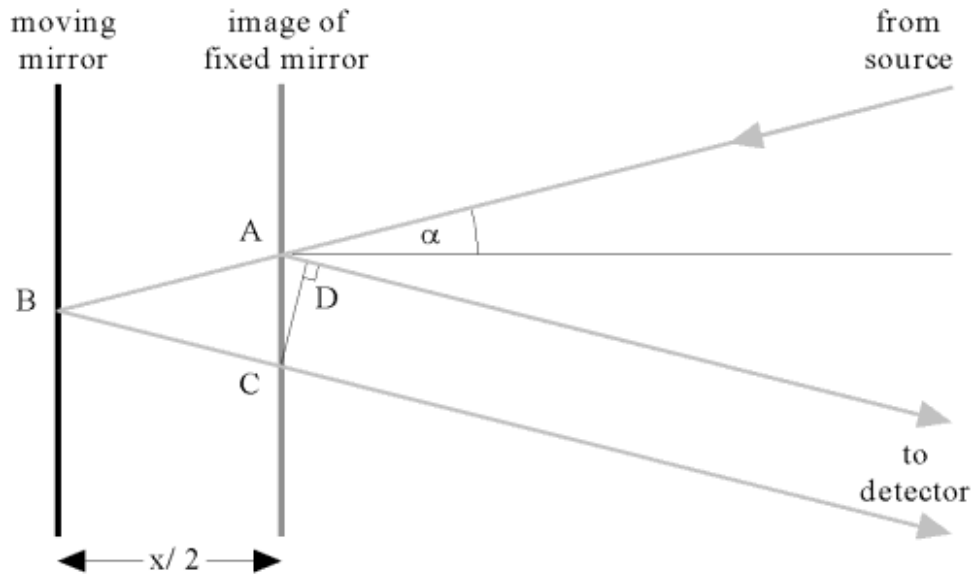


Figure 5 - Différence de trajet optique au sein d'un interféromètre disposant d'une ouverture d'entrée non nulle.

La Figure 5 illustre la progression d'un rayon lumineux incliné par rapport à l'axe optique à l'intérieur de l'interféromètre. Lorsqu'il atteint le point A, une partie du faisceau est réfléchi vers le détecteur tandis que le reste continue à se propager vers le miroir mobile où il sera ensuite également réfléchi vers le détecteur. Si  $\alpha$  désigne l'angle d'inclinaison du rayon lumineux par rapport à l'axe optique, la différence de chemin optique associée sera notée  $x_\alpha$ ; celle-ci est telle que  $x_\alpha = x$  lorsque  $\alpha = 0$ . Lorsque  $\alpha > 0$ , la différence de chemin optique est donnée par (Figure 5) :

$$x_\alpha = (AB + BC) - AD = x \cos(\alpha) \quad (14)$$

Il existe ainsi une différence de phase entre les rayons lumineux obliques et ceux parallèles à l'axe optique. La phase d'un rayon lumineux peut s'exprimer selon :

$$\varphi_\alpha = 2\pi x \cos(\alpha) \quad (15)$$

Par conséquent, la différence de phase entre les rayons axiaux et inclinés sera :

$$\varphi - \varphi_\alpha = 2\pi x (1 - \cos(\alpha)) \quad (16)$$



Il est évident que lorsque cette différence de phase est égale à  $\pi$ , les deux rayons vont interférer de manière destructive et le signal vaudra zéro. Dans l'approximation des petits angles,  $\cos(\alpha) \approx 1 - \frac{\alpha^2}{2}$  et en introduisant l'angle solide  $\Omega = \pi\alpha^2$  pour une entrée supposée circulaire, nous obtenons dans ce cas précis :

$$\varphi - \varphi_\alpha = \pi = 2\pi\sigma x \left(1 - \frac{\alpha^2}{2}\right) \Rightarrow x_e = \frac{\pi}{\sigma\Omega} \quad (17)$$

où  $x_e$  représente la différence de chemin optique pour laquelle le signal chute à zéro pour la première fois (différence de marche d'extinction) et  $\Omega$  l'ouverture d'entrée correspondante. La relation (17) indique donc que lorsque l'ouverture d'entrée augmente, la différence de marche d'extinction diminue. Puisque nous avons vu à la section précédente qu'une diminution de la différence de marche engendre une diminution de la résolution, nous pouvons en conclure qu'une augmentation de l'ouverture d'entrée  $\Omega$  entraînera elle aussi une diminution de la résolution. Le choix le plus communément utilisé du diamètre  $d$  de l'ouverture d'entrée se fait selon :

$$d = f_c \sqrt{\frac{8}{R}} \quad (18)$$

avec  $f_c$  la longueur focale de la lentille de collimation et  $R$  la résolution. On peut montrer (Chamberlain, 1979) que l'effet total de la présence de rayons inclinés par rapport à l'axe optique au sein de l'interféromètre due à une ouverture d'entrée de taille finie conduit en outre à la convolution du spectre par une fonction rectangle de largeur  $\frac{\sigma\Omega}{2\pi}$ . Chaque raie du spectre subit également un décalage vers les basses fréquences donné par :

$$\sigma = \sigma_0 \left(1 - \frac{\Omega}{4\pi}\right) \quad (19)$$

où  $\sigma_0$  correspond à la fréquence originale (non décalée) de la raie.

### 3.2.4. Conclusions

On peut se demander pourquoi un instrument relativement délicat du point de vue des réglages et exigeant de tels calculs est utilisé. Un avantage spécifique aux spectromètres par transformée de Fourier réside dans le fait que l'interférogramme est enregistré pendant tout le temps de la mesure en superposant sur le détecteur les signaux provenant de tous les éléments spectraux : c'est ce qu'on appelle l'avantage *multiplex*. Cet avantage conduit à une amélioration du rapport signal/bruit par rapport à un spectromètre classique (à prisme ou à réseau) à balayage qui doit partager le temps de mesure entre les éléments spectraux étudiés successivement. En effet, si l'on considère que la principale source de bruit est le bruit associé au détecteur, ce qui est en général le cas lorsque l'on travaille dans l'infrarouge avec un détecteur InSb, le temps de mesure supplémentaire alloué à chaque longueur d'onde augmente le rapport signal/bruit d'un facteur  $\sqrt{N}$ , où  $N$  est le nombre de points dans l'interférogramme. Un autre avantage des spectromètres par transformée de Fourier provient de l'utilisation d'un diaphragme d'entrée circulaire, ce qui les rend plus lumineux que les spectromètres à réseau où le diaphragme d'entrée est constitué d'une fente étroite. Le développement des ordinateurs et en particulier d'algorithmes de transformées de Fourier rapides (FFT - *Fast Fourier Transform*) a permis de rendre aisé le calcul de spectres à haute résolution à partir des interférogrammes. Au cours des vingt dernières années, la spectroscopie FTIR s'est par conséquent imposée comme la méthode standard de spectroscopie à haute résolution pour l'étude de l'atmosphère dans le domaine infrarouge.

### 3.3. Bases de données observationnelles

Les premiers travaux visant à étudier la composition chimique de l'atmosphère ont été effectués à partir de stations scientifiques situées au sol. A partir de ces stations, installées parfois en haute montagne pour des raisons observationnelles, il n'était cependant pas possible d'obtenir toutes les informations indispensables à l'étude de la haute atmosphère, les absorptions moléculaires dans les basses couches masquant très souvent celles produites à des altitudes plus élevées. C'est pour pallier cette difficulté que, parallèlement au développement de nouvelles techniques instrumentales, s'est développé l'emploi de nouvelles «plates-formes» de mesure, permettant une étude plus détaillée des couches supérieures de l'atmosphère terrestre. Les satellites en constituent un exemple de plus en plus commun à notre époque.

Dans cette section, nous nous intéresserons aux trois plates-formes de mesure dont nous avons directement exploité les bases de données observationnelles afin de produire les résultats présentés dans le dernier chapitre de ce travail.

#### 3.3.1. La Station Scientifique Internationale du Jungfraujoch

L'ensemble des spectres dont ont été déduits les résultats présentés au Chapitre 4 a été enregistré à la Station Scientifique Internationale du Jungfraujoch (*International Scientific Station of the Jungfraujoch - ISSJ*; Figure 6). Située dans les Alpes bernoises (46.55°N, 8.98°E) à 3580 m d'altitude, cette station offre d'excellentes conditions d'observations qui ont amené l'Université de Liège à y développer une instrumentation spécifique à l'enregistrement de spectres solaires, permettant l'étude d'un grand nombre de composants atmosphériques.

C'est en 1950 que M. Migeotte débute les premières observations solaires infrarouges au Jungfraujoch. La sécheresse de l'air (la quantité d'eau présente sous forme de vapeur y est généralement au moins vingt fois plus faible qu'au niveau de la mer) et la quasi absence de pollution locale (pas d'industries importantes dans un rayon de 20 km) expliquent principalement le choix d'un site situé en haute altitude. Le premier spectromètre installé au Jungfraujoch par l'Université de Liège est un spectromètre à réseau dont la longueur focale de 1 m lui permet d'atteindre des résolutions allant de 0.12 à 0.40  $\text{cm}^{-1}$ .

Ces résolutions étaient déjà suffisantes pour enregistrer les bandes d'absorption caractéristiques de composés tels que  $\text{CO}$  et  $\text{CH}_4$ , découvertes par Migeotte (Migeotte and Neven, 1950; Nielsen and Migeotte, 1952). Huit ans plus tard, L. Delbouille et G. Roland y installent un spectromètre à réseau plus performant, d'une longueur focale de 7.3 m. Cet instrument, recevant la lumière solaire par l'intermédiaire d'un coelostat installé à l'extérieur, sera essentiellement utilisé pour la publication de deux atlas du spectre solaire dans l'infrarouge proche, le visible et l'UV proche (Delbouille et Roland, 1963; Delbouille *et al.*, 1973). La plupart des abondances des éléments dans le soleil actuellement retenues proviennent de ces observations. Ce n'est que suite à la détection de la présence de HF dans l'atmosphère terrestre par R. Zander en 1975 (Zander, 1975) et aux multiples observations liées à la destruction de l'ozone stratosphérique (Crutzen, 1970; Johnston, 1971; Farman *et al.*, 1985) que les observations menées au Jungfraujoch se focaliseront à nouveau vers l'étude de la composition chimique de l'atmosphère terrestre. Les abondances de composés tels que HCl, HF,  $\text{CH}_4$  ou  $\text{C}_2\text{H}_6$  sont ainsi déterminées de manière routinière à l'aide du spectromètre à réseau adapté à l'exploration du domaine infrarouge moyen.



Figure 6 - La Station Scientifique Internationale du Jungfrauoch (46.55°N, 8.98°E, 3580 m d'altitude). L'Université de Liège y possède un laboratoire de physique solaire et atmosphérique depuis 1950.

Le premier spectromètre par transformée de Fourier est installé au Jungfrauoch en 1974. Conçu et réalisé à Liège, ce spectromètre mènera, dans les années qui suivront, des observations dans l'infrarouge conjointement avec le grand spectromètre à réseau. En 1979, il est rendu plus rapide (passage à un mode d'observation continu plutôt que pas à pas) de sorte à pouvoir enregistrer des spectres atmosphériques au lever et au coucher du soleil, lorsque les conditions d'observations changent rapidement. Alimenté par un télescope de 76 cm de diamètre, sa résolution optimale est de 2.5 mK ( $1\text{mK} = 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ ). A ce jour, cet instrument est toujours en fonctionnement.

En 1990, la spectroscopie par transformée de Fourier atteint le stade de technique commercialement disponible et le spectromètre à réseau est remplacé par un spectromètre par transformée de Fourier de type IFS-120HR fourni par la firme Bruker (Figure 7). Alimenté par un coelostat (Figure 7), cet instrument fonctionne de façon routinière depuis 1992 et est disponible pour des mesures de jour. Comme il a déjà été mentionné à la section 3.2.1., les positions d'échantillonnage de l'interférogramme sont déterminées par les passages par zéro du signal d'interférence produit par un laser. Le laser de l'instrument Bruker 120HR est un laser HeNe d'une longueur d'onde de 632.8 nm. L'espacement minimum entre deux points échantillonnés est ainsi de  $1/31600 \text{ cm}$ . L'instrument Bruker IFS-120HR peut en outre enregistrer des spectres solaires avec une différence de chemin optique maximale de 500 cm (résolution optimale de 1 mK). Les différences de marche utilisées en pratique sont toutefois optimisées par rapport aux largeurs des raies d'absorption des gaz cibles et sont par conséquent plus petites : à haute résolution, la différence de marche optique est proche de 175 cm, ce qui correspond à une résolution de 2.85 mK. Chaque spectre résulte de la moyenne de 3 à 5 spectres qui eux-mêmes sont les moyennes de 3 à 5 enregistrements. Les rapports signal/bruit sont très élevés (de

l'ordre de plusieurs milliers). En pratique, afin de diminuer le temps d'observation lorsque le soleil est bas sur l'horizon (c'est à dire lorsque les conditions d'observation changent rapidement), on utilise des différences de marche plus petites.

Les deux spectromètres par transformée de Fourier présents au Jungfraujoch disposent chacun de deux détecteurs : l'un est un élément photorésistif au HgCdTe utilisé pour l'étude de la région allant de 5.6 à 14  $\mu\text{m}$  (infrarouge moyen); l'autre est une cellule photovoltaïque en InSb sensible dans la région s'étendant de 2 à 5.6  $\mu\text{m}$  (infrarouge proche). Ces détecteurs sont refroidis à l'azote liquide afin d'en augmenter la sensibilité. Une procédure de modernisation est actuellement en cours afin d'augmenter encore les performances des deux spectromètres : l'enregistrement de spectres en modes aller et retour (pour la Bruker), l'emploi simultané de deux détecteurs ainsi qu'une augmentation de la précision relative aux points d'échantillonnage en constituent des exemples. L'ensemble des observations recueillies par ces deux instruments depuis leurs mises en service respectives constitue d'ors et déjà une base de données unique au monde de par son étendue dans le temps, sa densité de mesure et sa qualité.

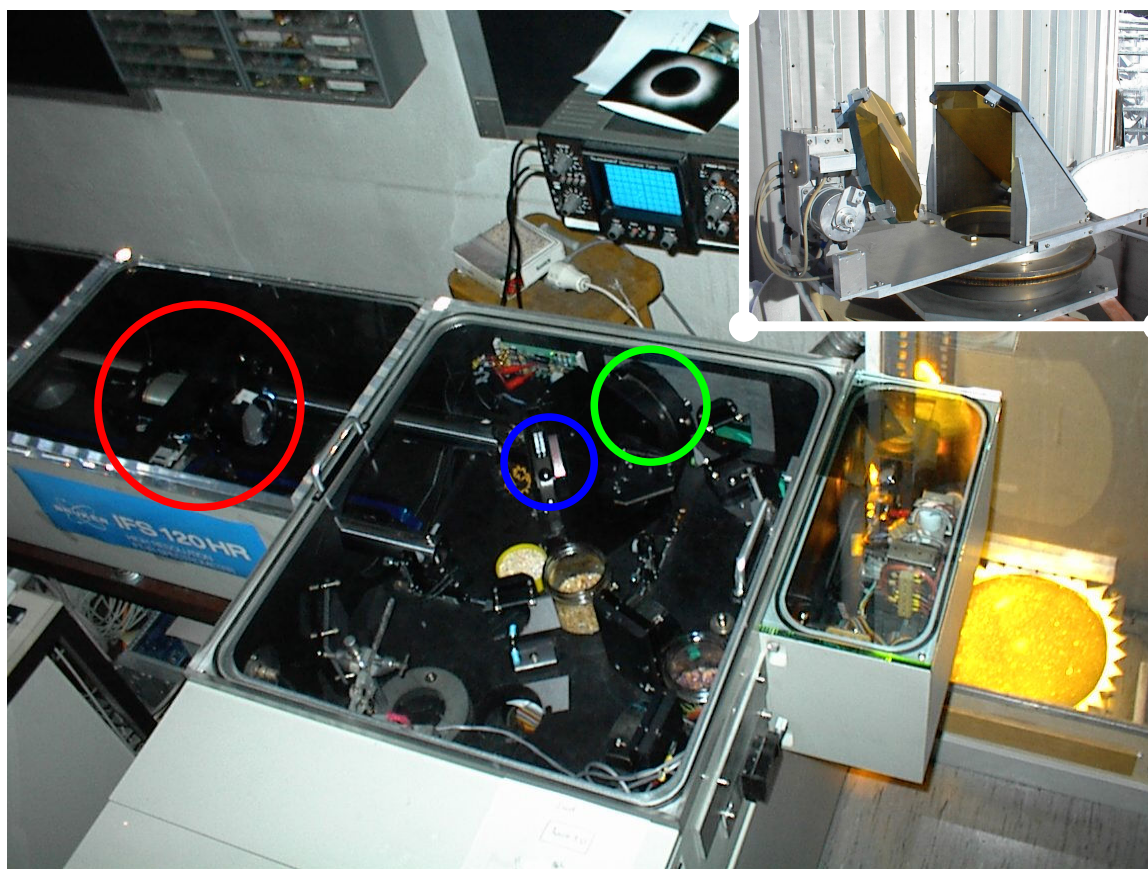


Figure 7 - Le spectromètre par transformée de Fourier IFS-120HR de Bruker installé à la Station Scientifique Internationale du Jungfraujoch avec lequel l'Université de Liège collecte à l'heure actuelle l'essentiel de ses données. Le miroir monté sur chariot mobile, la lame séparatrice et le miroir fixe ont respectivement été entourés en rouge, bleu et vert. En haut à droite, le coelostat extérieur qui collecte la lumière solaire en vue d'alimenter le spectromètre.

Les domaines spectraux couverts permettent ainsi l'étude de l'évolution de l'abondance à court, moyen et long terme de plus d'une vingtaine de composants atmosphériques (Tableau 1), ce qui s'avère primordial dans le contexte des Protocoles de Montréal et de Kyoto.

Catégorie	Gaz
Constituant majoritaire	N <sub>2</sub>
Constituant minoritaire	H <sub>2</sub> O, CO <sub>2</sub> , CH <sub>4</sub> , N <sub>2</sub> O, CO, O <sub>3</sub>
Constituant en traces	C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> , C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> , NO, NO <sub>2</sub> , HNO <sub>3</sub> , HCl, ClONO <sub>2</sub> , CCl <sub>3</sub> F, CCl <sub>2</sub> F <sub>2</sub> , CHClF <sub>2</sub> , HF, COF <sub>2</sub> , SF <sub>6</sub> , HCN, OCS, HDO, H <sub>2</sub> CO, CCl <sub>4</sub> , H <sub>2</sub> CO <sub>2</sub>

Tableau 1 - Principaux gaz dont l'abondance est déduite de façon routinière à partir des observations FTIR effectuées au Jungfraujoch.

La possibilité de comparer les données issues de deux instruments FTIR présents sur le même site est rare. La complémentarité des mesures atmosphériques menées en parallèle au Jungfraujoch constitue d'ailleurs l'une des caractéristiques les plus considérables de cette station puisque, en plus des deux spectromètres FTIR, se trouvent, entre autres et en permanence, les instruments suivants : un spectromètre UV-visible, un système LIDAR, un spectromètre micro-ondes, un spectromètre de masse, divers instruments de mesure *in situ* de gaz et d'aérosols ainsi qu'une station météo. L'ensemble des données fournies par tous ces instruments procure une vision aussi précise que possible de l'état de notre atmosphère de même que le contrôle de la qualité des résultats issus des différents instruments. Fort de cela, le site du Jungfraujoch constitue d'ailleurs l'une des stations primaires alpines du réseau NDSC (*Network for the Detection of Stratospheric Change* - <http://www.ndsc.ws>) dès sa création en 1991. L'ensemble des stations primaires et complémentaires de ce réseau maillant la planète est illustré à la Figure 8.

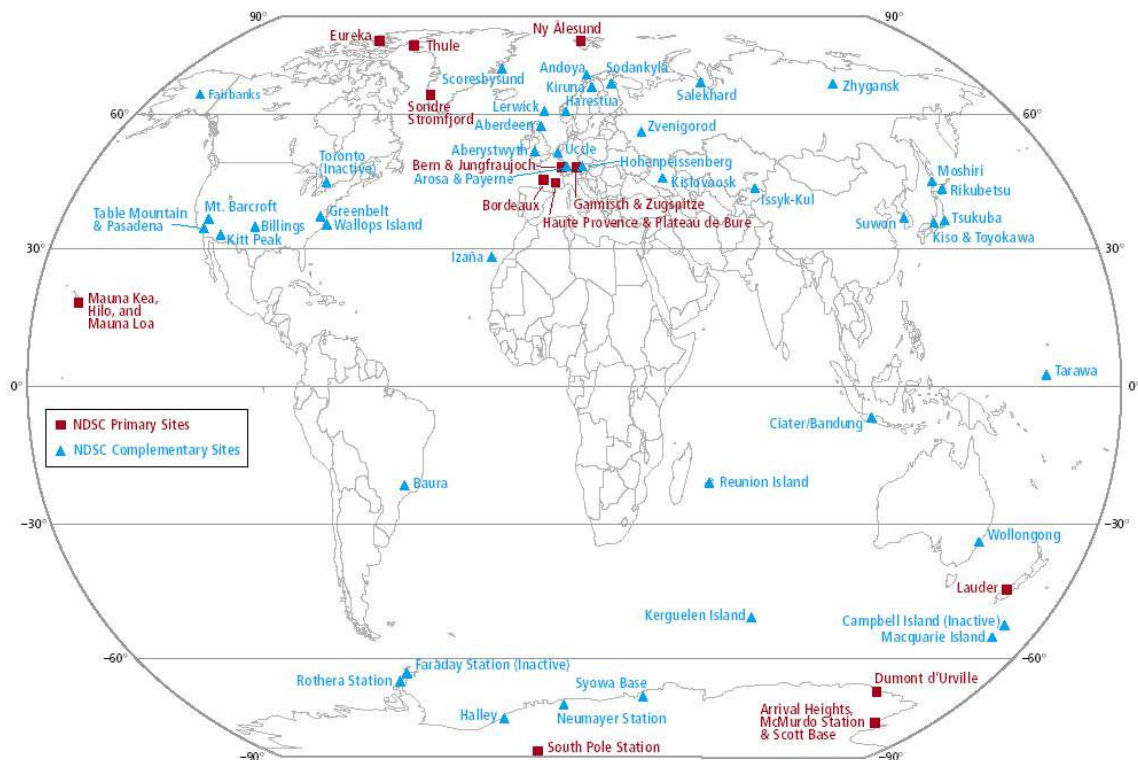


Figure 8 - Stations primaires (carré rouges) et complémentaires (triangles bleus) du réseau NDSC.

### 3.3.2. La mission ACE

C'est le 12 août 2003 que le satellite canadien SCISAT-1, à bord duquel est embarquée l'expérience ACE (*Atmospheric Chemistry Experiment*), a été lancé avec succès en vue de sonder l'atmosphère terrestre pour une mission d'une durée prévue de deux ans (Bernath *et al.*, 2005; Figure 9). Le lancement en orbite basse quasi circulaire (650 km d'altitude, inclinaison de 74°) a été effectué par la NASA, depuis la base militaire de Vandenburg, à partir d'un lanceur de type Pégase XL (Figure 9). Les principaux objectifs scientifiques de la mission ACE, directement calqués sur le succès rencontré au cours des quatre missions ATMOS de 1985, 1992, 1993 et 1994, peuvent se résumer ainsi :

- obtenir une meilleure compréhension des processus chimiques et dynamiques contrôlant la distribution d'ozone dans la stratosphère et la haute troposphère, en particulier aux latitudes polaires
- investiguer le lien étroit existant entre la chimie atmosphérique et les changements climatiques
- étudier l'impact de la combustion de la biomasse sur la troposphère libre
- quantifier le rôle joué par les aérosols et les nuages dans la balance énergétique de la Terre

Opérant principalement en occultation solaire (aux levers comme aux couchers, soit 30 occultations/jour en moyenne), ACE fournit des informations concernant les distributions verticales de température, de pression et de taux de mélange de plusieurs dizaines de molécules dans une gamme d'altitude comprise typiquement entre 10 et 100 km. Les paramètres d'orbite de ACE rendent possible les observations à des latitudes variant de 85°N à 85°S.

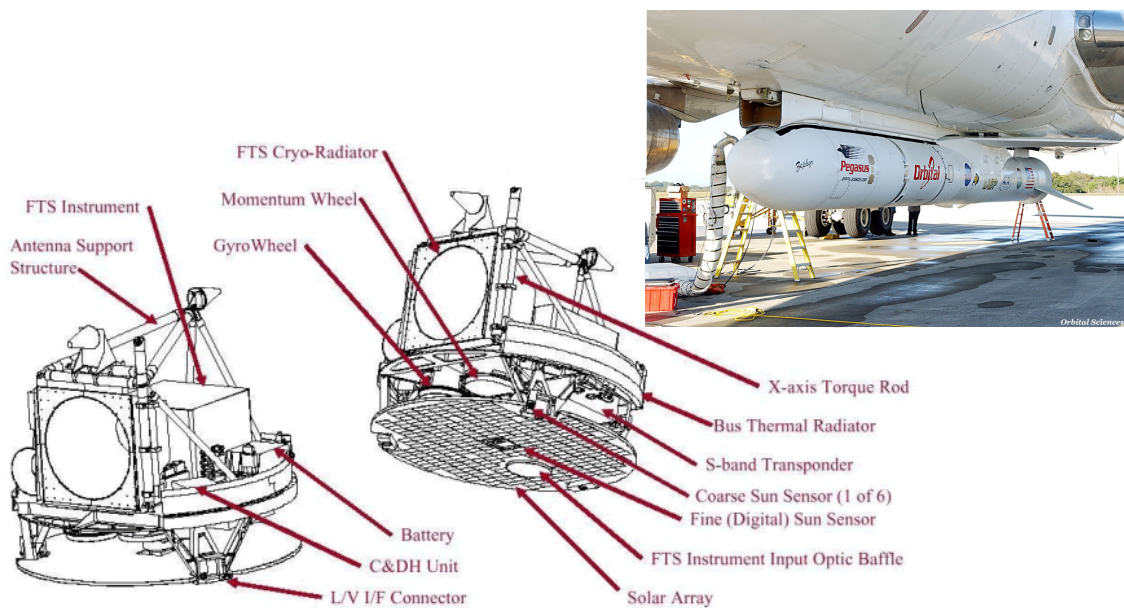


Figure 9 - Charge utile du satellite canadien ACE. En haut à droite, le lanceur Pégase XL arrimé sous son avion porteur.



tout à fait générale, les spectres sont d'excellente qualité avec des rapports signal/bruit supérieurs à 300 dans la plupart des bandes spectrales (Figure 11). C'est uniquement aux limites extrêmes du domaine spectral couvert (en deçà de  $900\text{ cm}^{-1}$  et au-delà de  $3700\text{ cm}^{-1}$ ) que le rapport signal/bruit descend en dessous de 100 : pour les petits nombres d'onde, cela est lié aux performances du détecteur HgCdTe tandis que pour les nombres d'onde plus élevés, cela s'explique par des problèmes de transmission affectant la lame séparatrice. Le rapport signal/bruit diminue également fortement dans la zone de recouvrement des deux détecteurs. Le creux centré à environ  $3250\text{ cm}^{-1}$  est causé par la contamination par la glace de la fenêtre du détecteur InSb. Malgré des décontaminations périodiques régulières qui permettent d'améliorer le rapport signal/bruit dans ce domaine, la glace réapparaît sitôt le processus de réchauffement achevé. Le taux de contamination par la glace tend malgré tout à ralentir à mesure que la mission ACE se poursuit. Plusieurs fois par an, une décontamination complète des détecteurs est également effectuée.

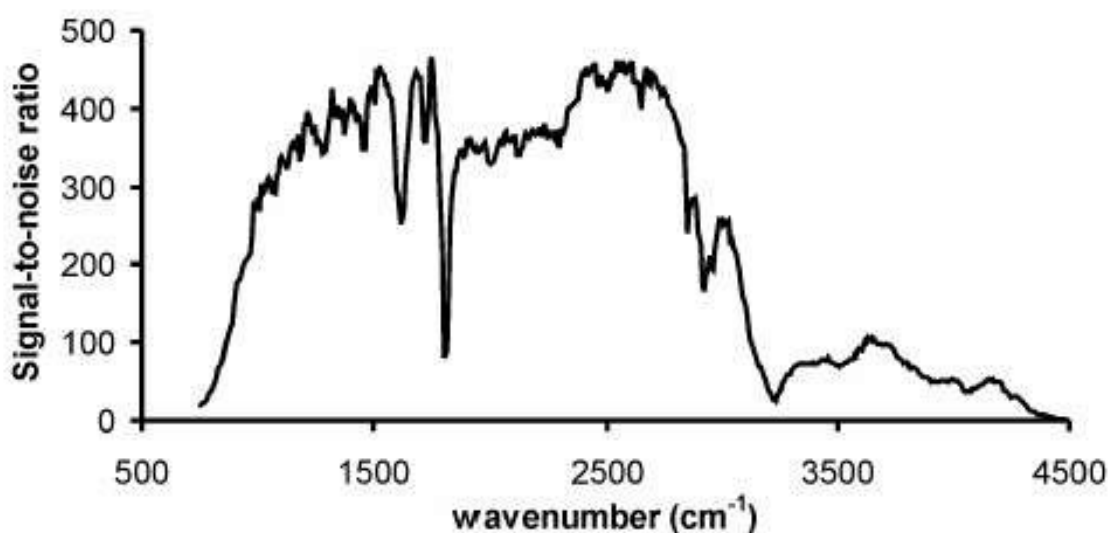


Figure 11 - Variation du rapport signal/bruit du spectromètre ACE-FTS avec le nombre d'onde. La diminution sensible observée vers  $1810\text{ cm}^{-1}$  correspond à la zone de recouvrement des deux détecteurs. Celle observée aux environs de  $3250\text{ cm}^{-1}$  est due à la contamination par la glace du détecteur à l'InSb.

Les données brutes du spectromètre ACE-FTS sont envoyées vers deux stations canadiennes situées au sol en vue d'être traitées et distribuées. La capacité de téléchargement a récemment été augmentée à plus de 2 Gbytes/jour en incluant d'autres stations de collecte au sol, afin de pouvoir rapatrier toutes les occultations. Les interférogrammes y sont d'abord convertis en spectres atmosphériques corrigés des émissions propres à l'instrument grâce aux spectres enregistrés en début de chaque séquence d'acquisition. Chaque spectre atmosphérique ainsi corrigé est alors divisé par la moyenne des spectres d'absorption solaire purs enregistrés à haute résolution afin de se débarrasser de la contribution des raies d'origine solaire. Il est à noter que des résidus de raies purement solaires peuvent malgré tout subsister suite à la variation de la vitesse du satellite par rapport au soleil au cours d'une occultation. La Figure 12 illustre un exemple de spectre ainsi obtenu pour différentes hauteurs tangentielles. Les spectres sont finalement interpolés en nombres d'onde selon une grille standard et une sélection de micro-fenêtres permettra d'en déduire les profils verticaux de concentrations. Signalons qu'avant d'être inversés, les spectres ne sont pas apodisés.



La procédure complète d'inversion des observations ACE en profils verticaux est détaillée dans Boone *et al.* (2005). Nous nous contenterons cependant ici d'en exposer le principe. Le processus de calcul débute avec la détermination des profils verticaux de pression et de température.

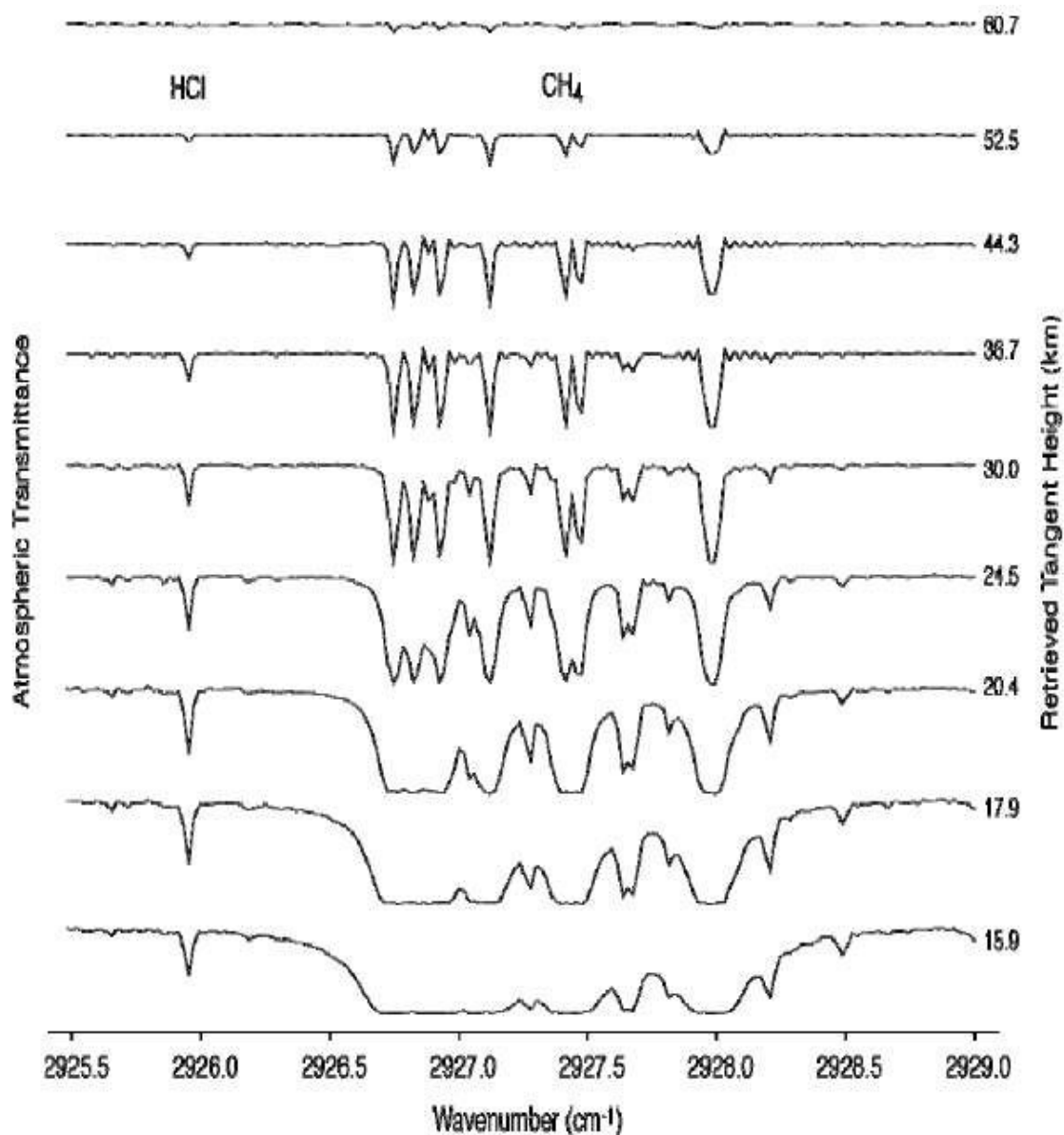
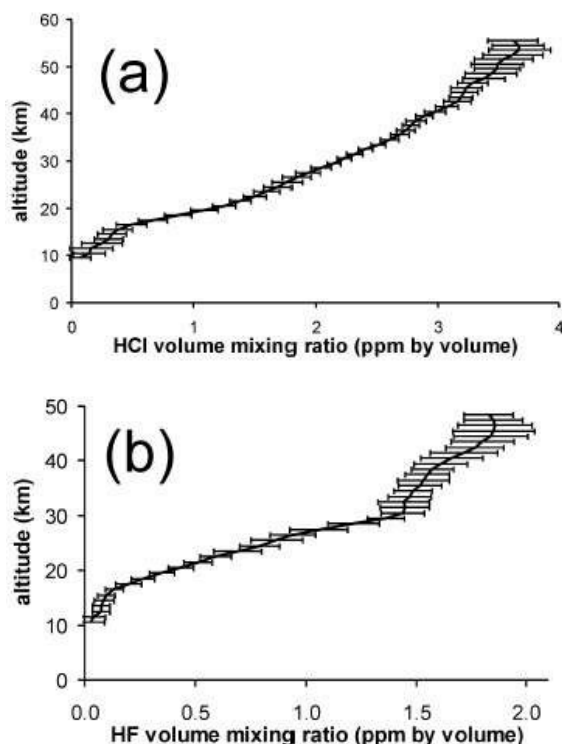


Figure 12 - Représentation d'une portion de spectre enregistré par le spectromètre par transformée de Fourier ACE-FTS pour différentes hauteurs tangentielles. La raie d'absorption située sur la gauche correspond à la raie R(0) de la bande fondamentale de HCl. Le doublet R(9) de méthane situé dans la bande d'absorption  $\nu_3$  a également été repéré.

Le profil de température est déduit à partir du fitting simultané d'un ensemble de 176 raies d'absorption dues au  $\text{CO}_2$ . Chacune de ces raies d'absorption a été choisie de sorte à minimiser les interférences dues à d'autres espèces. Notons qu'en dessous de 70 km d'altitude, le profil vertical de  $\text{CO}_2$  est déduit en même temps que le profil de température. Le profil vertical de pression est ensuite déterminé à partir de la température, en se plaçant sous l'hypothèse de l'équilibre hydrostatique. Finalement, pour chaque espèce atmosphérique, une sélection de micro-fenêtres (de largeur typique de l'ordre de  $0.3 \text{ cm}^{-1}$ ) contenant une ou plusieurs raies d'absorption propres au gaz cible est effectuée en vue de déterminer son profil vertical de concentration. La sélection détaillée des raies d'absorption fittées pour chaque espèce est consultable à l'adresse <https://database.uwaterloo.ca/microwindows>. L'inversion des observations fournit des profils de concentration dont la résolution verticale typique est située entre 3 et 4 km, depuis le sommet de la couche nuageuse jusqu'à 150 km d'altitude. Cette résolution verticale dépend aussi bien du rythme d'enregistrement de l'instrument que de la vitesse de déplacement du satellite sur son orbite. Le rythme d'enregistrement est adapté selon la valeur de l'angle  $\beta$ , qui est l'angle formé par le vecteur vitesse du satellite et le vecteur Terre-soleil. Un angle  $\beta$  proche de zéro correspond aux conditions d'observation les plus variables. La résolution verticale varie ainsi entre 2 km pour les longues observations effectuées selon un angle  $\beta$  élevé (de l'ordre de  $55^\circ$ ) et 6 km pour les occultations rapides effectuées à angle  $\beta$  nul. L'ensemble des profils verticaux sera *in fine* interpolé sur une grille d'altitude de 1 km avant d'être distribué. La Figure 13 reproduit à titre d'exemple deux profils moyens de HCl et de HF mesurés par ACE en juin 2004.

Les profils p/T *a priori* utilisés pour le calcul des distributions verticales de pression et de température sont issus du modèle MSIS de l'US Naval Research Laboratory pour la gamme d'altitude 30-150 km (Picone *et al.*, 2002); pour les altitudes situées en dessous de 30 km, les valeurs *a priori* proviennent des données météorologiques issues du CMC (Canadian Meteorological Centre). Pour chaque gaz cible, les taux de mélange *a priori* sont issus des observations ATMOS. Les paramètres spectroscopiques proviennent de la version 2004 de la base de données HITRAN (<http://www.hitran.com>). Signalons enfin que la procédure d'inversion



des profils de température, de pression et de concentration a connu plusieurs évolutions. La dernière version 2.2 de 2005 est le fruit d'améliorations successives (élimination d'oscillations dans les profils, scaling des profils *a priori* de pression et de température aux hautes altitudes plutôt que simple reproduction, etc..) et constitue actuellement la version officielle des observations ACE. C'est aux profils verticaux ACE générés par cette version que nos résultats seront comparés au chapitre suivant. Le Tableau 2 reprend l'historique des espèces dont les profils verticaux sont mesurés de façon routinière par le spectromètre ACE-FTS au cours de ses différentes évolutions.

Figure 13 - Profils verticaux de concentration résultant de la moyenne de 20 occultations mesurées entre le 27 et le 30 juin 2004 par l'instrument ACE-FTS à des latitudes comprises entre 44 et 54°N. (a): Profil moyen de HCl. (b): Profil moyen de HF.

Version	Année	Gaz mesurés
1.0	Janvier 2004	H <sub>2</sub> O, O <sub>3</sub> , N <sub>2</sub> O, CO, CH <sub>4</sub> , NO, NO <sub>2</sub> , HNO <sub>3</sub> , HF, HCl, N <sub>2</sub> O <sub>5</sub> , ClONO <sub>2</sub> , CFC-11, CFC-12, COF <sub>2</sub> , HCFC-22, HDO, SF <sub>6</sub>
2.0	Novembre 2004	v.1.0 + OCS, HCN, CH <sub>3</sub> Cl, CF <sub>4</sub> , C <sub>2</sub> H <sub>2</sub> , C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> , N <sub>2</sub>
2.1	Mars 2005	v.2.0 + ClO
2.2	Mai 2005	v.2.1 + HOCl, H <sub>2</sub> O <sub>2</sub> , HO <sub>2</sub> NO <sub>2</sub> + quelques isotopes

Tableau 2 - Relevé des espèces atmosphériques dont les profils verticaux sont mesurés de manière routinière au cours des différentes évolutions de la mission ACE.

Parmi les futurs candidats susceptibles de venir allonger cette liste figurent H<sub>2</sub>CO, HCOOH, CFC-113 et HCFC-142b, ces deux dernières espèces ayant été détectées pour la première fois depuis l'espace par le satellite ACE.

### 3.3.3. L'instrument HALOE

L'un des tout premiers exemples d'application d'utilisation de satellite en vue d'étudier la chimie atmosphérique est le satellite UARS (*Upper Atmosphere Research Satellite*; Reber *et al.*, 1993 ; Figure 14). Ce satellite ne compte pas moins de 9 instruments destinés à une étude et une compréhension plus approfondies de la chimie et de la dynamique de la haute atmosphère (principalement la stratosphère) mais aussi de la mésosphère et de la basse thermosphère. Lancé par la navette Discovery le 12 septembre 1991, UARS a permis de constituer à ce jour l'une des bases de données les plus complètes en ce qui concerne le bilan énergétique, la composition chimique, les vents et la température caractérisant notre atmosphère. Placé sur une orbite inclinée à 57° à une altitude de 600 km, les 9 instruments embarqués couvrent les latitudes comprises entre 80°N et 80°S. Parmi ces instruments, 3 sont destinés à la mesure de l'énergie solaire pénétrant la haute atmosphère, 2 mesurent les vents et 4 permettent d'obtenir les profils verticaux de température et de constituants atmosphériques (Tableau 3). L'ensemble des instruments conçus pour l'étude de la composition chimique de notre atmosphère procède par visée au limbe. Ils fonctionnent également dans des domaines spectraux différents et observent soit en absorption, soit en émission. Parmi ceux-ci, l'instrument HALOE (*HALogen Occultation Experiment*) utilise le soleil comme source de rayonnement afin de mesurer son absorption dans l'infrarouge par notre atmosphère (Russell *et al.*, 1993).



Figure 14 - Le satellite UARS à bord duquel se trouve notamment l'instrument HALOE.

Il peut ainsi en déduire par occultation les profils verticaux de température et des constituants suivants : HCl, HF, CH<sub>4</sub>, NO, NO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O et O<sub>3</sub>. La gamme d'altitude couverte varie de 15 km à 60-130 km selon l'espèce et le canal de mesure. Les paramètres de son orbite lui permettent de bénéficier en moyenne de 15 levers et de 15 couchers de soleil par jour. L'instrument HALOE permet également d'obtenir les profils d'extinction des aérosols à 4 longueurs d'onde infrarouges

différentes de même que la composition et la distribution de la taille de ceux-ci. La résolution typique des profils verticaux obtenus est de 1.6 km.

<b>Instrument</b>	<b>Signification de l'acronyme</b>	<b>Type de mesure</b>
ISAMS	Improved Stratospheric and Mesospheric Sounder	Composition atmosphérique
MLS	Microwave Limb Sounder	Composition atmosphérique
HALOE	Halogen Occultation Experiment	Composition atmosphérique
CLAES	Cryogenic Limb Array Etalon Spectrometer	Composition atmosphérique
HRDI	High Resolution Doppler Imager	Etude des vents
WIND II	Wind Imaging Interferometer	Etude des vents
SOLSTICE	Solar-stellar Irradiance Comparison Experiment	Energie solaire incidente
SUSIM	Solar Ultraviolet Spectral Irradiance Monitor	Energie solaire incidente
PEM	Particle Environment Monitor	Energie solaire incidente

Tableau 3 - Usage scientifique des instruments embarqués à bord du satellite UARS.

Après une période de dégazage, l'instrument HALOE a été mis en service dès octobre 1991. Prévu initialement pour une durée de vie de 3 ans, l'instrument a été mis en «stand by» à la fin de l'année 2001 après presque 10 ans de fonctionnement quasi ininterrompu.