

# THÈSE

présentée à  
L'UNIVERSITÉ DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES DE LILLE

pour obtenir le grade de  
DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ  
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 soutenir publiquement le 17 décembre 2001  
devant le jury composé de:



M. Claude CAMY-PEYRET	Professeur, LPMA, Paris	Rapporteur
M. Didier FUSSEN	Directeur 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	CNRS, LPCE, Orléans	Examineur
Mme. Colette BROGNIEZ	Professeur, LOA, Lille	Directrice de Thèse

**Laboratoire 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 prédécesseur 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 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 coefficients 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 coefficients 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.

# Table des matières

<b>Acronymes</b>	<b>11</b>
<b>Introduction</b>	<b>13</b>
<b>1 L'Atmosphère terrestre et l'ozone : Les enjeux, le futur...</b>	<b>17</b>
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 gaz 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

<b>2</b>	<b>L'Optique Atmosphérique</b>	<b>47</b>
2.1	Définitions 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 coefficient 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 techniques 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'absorption . . . . .	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	Coefficient d'absorption du $NO_3$ . . . . .	72
2.3.6	Coefficient d'absorption du $OCIO$ . . . . .	73
2.3.7	Et les autres constituants . . . . .	74
<b>3</b>	<b>Présentation de l'expérience satellitaire SAGE III</b>	
	<b>Mise en place des algorithmes d'inversion de SAGE III</b>	<b>77</b>
3.1	Présentation 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 modélisation : 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'algorithme d'inversion de SAGE III . . . . .	92
3.3.1	Objectifs de l'inversion . . . . .	92

3.3.2	Principes de l'inversion "dans les bandes résolues" . . . . .	93
3.3.3	Inversion spatiale . . . . .	95
3.3.4	Inversion spectrale . . . . .	97
3.3.5	Estimation des incertitudes . . . . .	100
3.3.6	Présentation de la méthode d'inversion globale . . . . .	103
3.4	Résultats . . . . .	106
3.4.1	Application de l'inversion dans les bandes résolues . . . . .	106
3.4.2	Analyse des résultats pour les constituants minoritaires . . . . .	113
3.4.3	Choix de l'inversion spatiale . . . . .	113
3.4.4	Exploration de l'espace . . . . .	115
3.5	Application à des modèles d'atmosphères variés . . . . .	117
3.5.1	Modélisation des huit atmosphères . . . . .	117
3.5.2	Résultats de l'inversion sans les incertitudes . . . . .	124
3.5.3	Influence de l'incertitude sur les profils de transmission . . . . .	134
3.5.4	Influence de l'incertitude sur le profil de température . . . . .	152
3.6	Conclusions . . . . .	153
<b>4</b>	<b>Application aux mesures ballon AMON et SALOMON</b>	<b>155</b>
4.1	Application aux mesures AMON . . . . .	156
4.1.1	Description de l'instrument AMON . . . . .	156
4.1.2	Campagne de mesures AMON du 27 Février 1997 . . . . .	157
4.1.3	Présentation succincte de l'algorithme d'inversion du LPCE . . . . .	159
4.1.4	Adaptation de l'algorithme de SAGE III pour les mesures ballons . . . . .	161
4.1.5	Application aux mesures réelles de AMON . . . . .	167
4.1.6	Conclusion des résultats préliminaires des mesures AMON . . . . .	178
4.2	Application aux mesures SALOMON . . . . .	179
4.2.1	Présentation de l'expérience SALOMON . . . . .	179
4.2.2	Campagne de mesures SALOMON du 22 Février 2000 . . . . .	180
4.2.3	Résultats . . . . .	184
4.2.4	Dépendance spectrale des coefficients d'extinction des aérosols . . . . .	211
4.3	Conclusions . . . . .	221
	<b>Conclusion Générale</b>	<b>225</b>
	<b>Glossaire des symboles</b>	<b>229</b>

<b>Publications</b>	<b>235</b>
<b>Article 1 : An Overview of LOA SAGE III Inversion Algorithm</b>	<b>237</b>
<b>Article 2 : Inference of nitrogen trioxide and chlorine dioxide profile from simulated SAGE III transmission measurements</b>	<b>243</b>
<b>Article 3 : SAGE III measurements : a study on the retrieval of ozone, nitrogen dioxide and aerosol extinction coefficients</b>	<b>255</b>
<b>Article 4 : Applications of SAGE III Inversion algorithm to SALOMON measurements</b>	<b>287</b>
<b>Bibliographie</b>	<b>301</b>

# 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 physico-chimiques, 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 satellitaires 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

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 expériences "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 coefficients d'extinction obtenus par ces deux méthodes d'inversion ainsi que par une comparaison entre les différentes propriétés physiques et optiques des aérosols obtenues.

# 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 coefficients d'extinction des aérosols 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 chlore.

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 THESEO 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. Il 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

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 bien 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'infrarouge 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.

## Bibliographie

- [1] 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. Schneider, *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 algorithm*, Geophys. Res. Lett. **27** (2000), no. 15, 2225 – 2228.
- [8] A. Bazureau, C. Brogniez, and J.-B. Renard, *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 September, 2000.
- [15] G.J.S. Bluth, S.D. Doiron, C.C. Schnetzler, A.J. Krueger, and L.S. Walter, *Global tracking of the SO<sub>2</sub> 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. Parisee, 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. Ramanananahérisoa, 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 Petersburg, Russia, ed.), 1999.
- [23] A. Bucholtz, *Rayleigh-scattering for the terrestrial atmosphere*, *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 NO<sub>2</sub> in the 231 - 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 O<sub>3</sub> 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*, Ph.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** (1930), 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.P. 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 septembre 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 Physics and Remote Sensing. University of Bremen. 28334 Bremen. Germany*, Personal communication, 1998.
- [40] G.M.B. Dobson, *Forty years' research on atmospheric ozone at Oxford: a History*, 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, *Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal ClOx/NOx interactions*, Nature **315** (1985), 207–210.
- [44] A.I. Flossmann and P. Laj, *Aerosols, 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. Geophys. Res. **101** (1996), no. D2, 3879–3884.

- [46] D. Fussen, E. Arijs, D. Nevejans, F. Van Hellefont, C. Brogniez, and J. Lenoble, *Validation of the ORA spatial inversion algorithm with respect to the Stratospheric Aerosol and Gas 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'atmosphère 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. Debrebian, D.W. Rusch, J.J. Olivero, C. Brogniez, 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. Burkholder, and A.R. Ravishankara, *Absorption measurements of Oxygen between 330 and 1140 nm*, J. Geophys. Res. **95** (1990), no. D11, 18,577–18,582.
- [50] J. E. Hansen and J.W. Hovenier, *Interpretation of the polarisation of Venus*, J. Atmos. Sci. (1974), 1137 – 1159.
- [51] J.W. Harder, J.W. Brault, P.V. Johnston, and G.H. Mount, *Temperature dependent NO<sub>2</sub> cross sections at high spectral resolution*, J. Geophys. 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 dynamics*, From urban air pollution to extra-solar planets, 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. Haywood and O. Boucher, *Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: a review*, Rev. 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 N<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 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. Kent, D.M. Winker, M.T. Osborn, and K.M. Skeens, *A model for the separation of cloud and aerosol 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. Labeyrie, *L'homme et le climat*, Collection Points Sciences, Editions du Seuil, 1993.
- [67] K. Labitzke and M.P. McCormick, *Stratospheric temperature increases due to Pinatubo aerosols*, 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, 1982 eruption of El Chichon, Mexico*, Geophys. Res. Lett. **10** (1983), 24–26.

- [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. Brogniez, *Information on stratospheric aerosol characteristics contained in the SAGE 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. Debresian, C.E. Randall, D.W. Rusch, C. Brogniez, R. Ramanananahérisoa, E. P. Shettle, J.J. Olivero, J. Lenoble, and P. Pruvost, *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 functional description*, *Opt. Eng.* **24** (1985), no. 2, 307 – 312.
- [75] E.J. McCartney, *Optics of the Atmosphere: Scattering by molecules and particles*, John Wiley, New York, 1976.
- [76] J.P. McCormack, 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 period*, *Geophys. Res. Lett.* **24** (1997), no. 22, 2729–2732.
- [77] M.P. McCormick, P. Hamill, T.J. Pepin, W.P. Chu, T.J. Swissler, and L.R. McMaster, *Satellite studies of stratospheric aerosol*, *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* **321** (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. Mégie, *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 chlorofluoromethanes : chlorine atome-catalysed destruction of ozone*, Nature **249** (1974), 810–812.
- [87] M.F. Mérienne, A. Jenouvrier, and B. Coquart, *The NO<sub>2</sub> 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 NO<sub>2</sub> 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 NO<sub>3</sub>. 1. observations of NO<sub>3</sub> 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 Venus*, 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. Lefèvre, H. Kanzawa, and Y. Sasano, *Diurnal and nocturnal distribution of stratospheric NO<sub>2</sub> from solar and stellar occultation measurements in the Arctic vortex : Comparison with models and ILAS satellite measurements*, J. Geophys. Res. **104** (1999), no. D17, 21585 – 21593.

- [93] D. Pelat, *Bruits et signaux : Introduction aux méthodes de traitement des signaux*, Tech. report, Ecole Doctorale d'Ile de France, 1989.
- [94] T.J. Pepin, M.P. McCormick, W.P. Chu, F. Simon, T.J. Swissler, R.R. Adams, K.H. Crumbly, and W.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 clouds 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), 551–554.
- [98] R. Ramanananahérisoa, *Analyse des mesures de l'expérience 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 NO<sub>3</sub> 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. Pommereau, 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*