



Université de Lille – Faculté des Sciences  
UMR 8518  
Laboratoire d'Optique Atmosphérique



Ecole doctorale des Science de la matière, du rayonnement, et de l'environnement

## **Thèse**

Pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE**

Par : Marie-Thérèse El Kattar

**Soutenue le 19/02/2021**

---

# **Caractérisation instrumentale et capacité de mesure des GES du prototype instrumental CHRIS.**

---

M. Hervé HERBIN	Université de Lille	Directeur
M. Sébastien PAYAN	Sorbonne Université	Rapporteur
M. Cyril CREVOISIER	Ecole polytechnique	Président du jury
M. Denis JOUGLET	CNES	Examineur
M. Laurent LABONNOTE	Université de Lille	Examineur
Mme. Frédérique AURIOL	Université de Lille	Examinatrice



## **Remerciements**

Je tiens à remercier chaleureusement toutes les personnes qui m'ont aidée et soutenue lors de cette aventure de doctorat qui a duré trois ans. Je pense tout d'abord à mon directeur de thèse, Hervé, avec qui j'ai partagé des discussions scientifiques vivantes et très enrichissantes. Tous ces "si j'étais toi" m'ont motivé à donner le meilleur de moi-même. Merci de m'avoir toujours fait confiance, de m'avoir conseillée et de m'avoir fait évoluer pendant ces trois années.

Pour mener à bien ce travail, il m'a fallu un algorithme d'inversion. Je remercie donc Fabrice Ducos pour son soutien pratique, « algorithmique » et humain. Je remercie également Maxime Catalfamo pour son aide logistique, notamment lors des campagnes de mesure. J'ai une pensée particulière pour Frédérique Auriol qui a non seulement accepté de faire partie de mon jury mais qui a également été présente dans les différentes étapes de mon travail de thèse et les campagnes de mesure.

Ensuite, je tiens à remercier particulièrement les membres de mon jury de thèse : tout d'abord Cyril Crevoisier pour m'avoir fait l'honneur de présider mon jury de thèse, Sébastien Payan qui a eu la patience de rapporter ce travail, puis Denis Jouglet et Laurent Labonnote pour avoir accepté de le juger, malgré cette pandémie. Ils ont pris le soin de lire avec attention mon manuscrit de thèse et ont donné lieu à des discussions scientifiques très intéressantes pendant et après la soutenance.

Enfin, je remercie tous les membres du laboratoire, avec qui j'ai partagé mon quotidien durant ces trois années et qui ont su mettre de la vie et de l'action dans ce monde de recherche et lors des conseils de laboratoire.

Et pour finir, je remercie du fond du cœur toute ma famille et particulièrement mes parents, Rima et Khalil, mes sœurs, Rita, Carla et Melissa, car ils ont toujours cru en moi et m'ont soutenue jusqu'à la dernière seconde.

Le tout, sans oublier mes amis d'enfance, qui ont su me faire prendre le recul nécessaire parfois, et m'ont encouragée à chaque instant, Toni, Rimane, Yara, Anita et Rim. Et bien sûr, je remercie avec affection Mario, qui partage ma vie depuis si longtemps et qui m'a soutenue et accompagnée pendant ces trois ans.

Merci...





## **Résumé**

Pour quantifier l'influence des activités humaines sur l'évolution de la composition atmosphérique, il est essentiel de disposer de mesures précises et continues des gaz à effet de serre (GES) tels que le CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub>. Les mesures infrarouges à haute résolution spectrale au sol sont un moyen efficace d'obtenir des abondances troposphériques précises de différentes espèces gazeuses. De nombreux spectromètres sont utilisés dans les réseaux NDACC et TCCON pour valider les données satellitaires de niveau 2, mais leurs grandes dimensions et leur masse importante les rendent inadaptés aux campagnes de terrain. Afin de surmonter cet inconvénient, l'utilisation de spectromètres portables a été récemment étudiée. Dans ce contexte, le travail de cette thèse a consisté, dans un premier temps, à caractériser le prototype instrumental CHRIS (Compact High-Spectral-Resolution Infrared Spectrometer). Cet instrument présente des caractéristiques uniques telles que sa haute résolution spectrale (0,135 cm<sup>-1</sup> non apodisé) et sa large gamme spectrale (680 à 5200 cm<sup>-1</sup>). Son principal objectif est la caractérisation des gaz et des aérosols dans les domaines thermique et infrarouge à ondes courtes. C'est pourquoi il nécessite une grande précision radiométrique et une grande exactitude, qui sont obtenues en effectuant les calibrations spectrale et radiométrique ainsi que la caractérisation de sa fonction d'appareil. En outre, les capacités de CHRIS à restituer des profils verticaux de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub> sont présentées par le biais d'une étude complète de contenu en information, d'une sélection de canaux et d'une estimation du bilan d'erreur dans l'optique de participer aux campagnes de mesures en cours et à venir, telle que MAGIC (Monitoring of Atmospheric composition and Greenhouse gases through multi-Instruments Campaigns) pour surveiller les GES et valider les missions spatiales actuelles et futures telles que IASI-NG et Microcarb.

---

## **Abstract**

To quantify the influence of human activities on the evolution of atmospheric composition, accurate and continuous measurements of greenhouse gases (GHGs) such as CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> are essential. Ground-based high-spectral-resolution infrared measurements are an efficient way to obtain accurate tropospheric abundances of different gaseous species. Many ground-based spectrometers are used in the NDACC and TCCON networks to validate the Level 2 satellite data, but their large dimensions and heavy mass make them inadequate for field campaigns. To overcome this drawback, the use of portable spectrometers was recently investigated. In this context, the work of this thesis consisted in characterizing the instrumental prototype CHRIS (Compact High-Spectral-Resolution Infrared Spectrometer). This instrument has unique characteristics such as its high spectral resolution (0.135 cm<sup>-1</sup> non-apodized) and its wide spectral range (680 to 5200 cm<sup>-1</sup>). Its main objective is the characterization of gases and aerosols in the thermal and shortwave infrared regions. Therefore, it requires high radiometric precision and accuracy, which are obtained by performing spectral and radiometric calibrations as well as the characterization of its instrumental line shape. Furthermore, CHRIS's capabilities to retrieve vertical CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> profiles are presented through a complete information content analysis, a channel selection and an error budget estimation in the attempt to join ongoing campaigns such as MAGIC (Monitoring of Atmospheric composition and Greenhouse gases through multi-Instruments Campaigns) to monitor GHGs and validate the actual and future space missions such as IASI-NG and Microcarb.



<b>Résumé-Abstract.....</b>	<b>5</b>
<b>Sommaire.....</b>	<b>7</b>
<b>Liste des figures.....</b>	<b>11</b>
<b>Liste des tableaux.....</b>	<b>17</b>
<b>Introduction générale.....</b>	<b>19</b>

## Chapitre 1 : Contexte.

Introduction.....	22
1.1. Structure et composition de l'atmosphère terrestre.....	22
1.1.1. La structure verticale de l'atmosphère.....	22
1.1.2. La composition de l'atmosphère terrestre.....	24
1.2. Dynamique de l'atmosphère.....	25
1.2.1. Bilan radiatif de l'atmosphère.....	25
1.2.2. Effet de serre.....	27
1.3. GES : Importance du dioxyde de carbone et du méthane.....	29
1.3.1. Le dioxyde de carbone.....	29
1.3.1.1.Origines et sources.....	29
1.3.1.2.Puits.....	31
1.3.1.3.Variabilités et impacts sur le vivant et la terre.....	33
1.3.2. Le méthane dans l'atmosphère.....	34
1.3.3. Estimation des flux.....	38
1.4. Mesures pour les gaz à effet de serre.....	39
1.4.1. Mesures in-situ.....	39
1.4.2. Télédétection.....	41
1.4.2.1.Télédétection active.....	41
1.4.2.2.Télédétection passive.....	43
1.5. Objectifs de la thèse et conclusion.....	48
Bibliographie.....	50

## Chapitre 2 : Principe de mesures FTIR à visée solaire.

Introduction.....	56
2.1.Transfert radiatif.....	56
2.1.1. Equation de transfert radiatif en milieu absorbant.....	56
2.1.2. Spectre solaire.....	58
2.2.La spectroscopie d'absorption infrarouge.....	61
2.2.1. Positions des raies.....	61
2.2.1.1.Généralités.....	61

2.2.1.2.Spectroscopie rovibrationnelle d'absorption.....	63
2.2.2. Profils des raies.....	66
2.2.2.1.Elargissement naturel.....	66
2.2.2.2.Elargissement par pression.....	66
2.2.2.3.Elargissement par effet Doppler.....	67
2.2.2.4.Profil de Voigt.....	67
2.2.3. CIA et continua d'absorption.....	70
2.2.4. Line-mixing et sections efficaces.....	71
2.3.Résolution de l'équation de transfert radiatif (ETR).....	72
2.3.1. Bases de données.....	72
2.3.2. Codes LBL.....	73
Conclusion.....	74
Bibliographie.....	76

## Chapitre 3 : Caractérisation instrumentale de CHRIS.

Introduction.....	79
3.1. Spectromètres à Transformée de Fourier.....	79
3.2. CHRIS.....	83
3.2.1. Caractéristiques générales.....	83
3.2.2. Méthode d'acquisition.....	86
3.2.3. Gain échantillon et préampli.....	87
3.2.4. Artefacts spectraux.....	88
3.2.4.1. Aliasing.....	88
3.2.4.2. L'effet Picket-fence.....	89
3.2.4.3. Correction de phase.....	89
3.2.4.4. Artefact spécifique à CHRIS.....	89
3.2.5. Mesures et analyses.....	91
3.2.5.1. Rapport signal sur bruit (SNR).....	91
3.2.5.2. ILS et résolution spectrale.....	92
3.2.5.3. Stabilité radiométrique.....	98
3.2.5.4. Calibration radiométrique.....	99
3.2.5.5. Calibration spectrale.....	100
Conclusion.....	102
Bibliographie.....	104

## Chapitre 4 : Capacité de mesure de CHRIS.

Introduction.....	106
4.1. Etude de contenu en information.....	106
4.1.1. Principe général.....	106
4.1.2. Le modèle direct.....	107
4.1.3. Bases théoriques de l'analyse de contenu en information.....	109
4.1.4. A priori.....	110
4.1.4.1. Matrice de covariance a priori.....	110
4.1.4.2. Matrice de covariance de mesure.....	112

4.1.4.3. Caractérisation et précision des paramètres non-inversés.....	113
4.2. Analyse de contenu en information pour les GES.....	113
4.2.1. Averaging kernel et estimation du budget d'erreurs.....	114
4.2.2. Incertitude et estimation de l'erreur sur la colonne totale.....	118
4.3. Etude complémentaire et comparative de l'analyse de contenu en information pour l'EM27/SUN, IFS125HR et CHRIS.....	119
4.3.1. Etude complémentaire avec l'EM27/SUN.....	120
4.3.2. Etude comparative avec l'IFS125HR.....	121
4.4. Sélection de canaux.....	123
Conclusion.....	126
Bibliographie.....	128

## Chapitre 5 : Première exploitations.

Introduction.....	131
5.1. Les campagnes de mesure.....	131
5.2. Les campagnes MAGIC.....	132
5.2.1. Objectifs.....	132
5.2.2. Instrumentation.....	133
5.2.2.1. Mesures satellitaires et sur avion.....	133
5.2.2.2. Instrumentation sous ballons.....	135
5.2.2.3. Mesures depuis le sol.....	138
5.3. Exploitations.....	139
Conclusion.....	143
Bibliographie.....	145

<b>Conclusion générale.....</b>	<b>147</b>
---------------------------------	------------

<b>Bibliographie.....</b>	<b>150</b>
---------------------------	------------

<b>Liste des Acronymes.....</b>	<b>159</b>
---------------------------------	------------

<b>Annexes .....</b>	<b>162</b>
----------------------	------------



## Liste des figures :

<b>Figure 1.1:</b> Structure verticale de la température de l'atmosphère s'étendant de la surface de la Terre jusqu'à une altitude d'environ 110 km, comme indiqué dans l'US Standard Atmosphere (1976). Les principales couches définies par cette structure de température et les limites entre elles sont présentées. Comme indiqué, l'ozone se trouve principalement dans la stratosphère. La pression est illustrée à gauche en millibars (1 mb=100 Pascal) et l'altitude géométrique à droite (km). (source: Schlatter 2010)	23
<b>Figure 1.2:</b> Répartition du volume des gaz constituant l'air sec (sans H <sub>2</sub> O).....	24
<b>Figure 1.3:</b> Bilan global d'énergie du système climatique dans les conditions actuelles. Les chiffres indiquent les flux d'énergie exprimés en W.m <sup>-2</sup> . (Source : NASA/science) .....	26
<b>Figure 1.4:</b> Le rayonnement réfléchi et émis par la terre comme mesuré depuis l'instrument CERES à bord des satellites Aqua et Terra. (Source : NASA/Goddard Space Flight Center Scientific Visualization Studio) .....	26
<b>Figure 1.5:</b> Bilan radiatif annuel (W.m <sup>-2</sup> ) de l'atmosphère (net radiation) en fonction de la latitude, défini comme différence entre le rayonnement entrant (incoming radiation) et celui sortant (outgoing radiation) par l'atmosphère. (Source : (Herbin and Dubuisson 2016)) .....	27
<b>Figure 1.6:</b> Contribution à l'effet de serre naturel des différents gaz présents dans l'atmosphère. ....	28
<b>Figure 1.7:</b> Concentrations atmosphériques des gaz à effet de serre : dioxyde de carbone (CO <sub>2</sub> , vert), méthane (CH <sub>4</sub> , orange) et protoxyde d'azote (N <sub>2</sub> O, rouge) déterminées à partir des données de carottes de glace (points) et des mesures atmosphériques directes (lignes). (Source: IPCC 2014) .....	29
<b>Figure 1.8:</b> Schéma simplifié du cycle global du carbone montrant les échelles de temps de renouvellements typiques pour les transferts de carbone à travers les principaux réservoirs. (Source : IPCC 2013) .....	30
<b>Figure 1.9:</b> Émissions annuelles de CO <sub>2</sub> d'origine anthropique et leur répartition entre l'atmosphère, la terre et les océans (PgC/an) de 1750 à 2011. (Haut) Les émissions de CO <sub>2</sub> des combustibles fossiles et du ciment par catégorie sont présentées. (Bas) Les émissions et puits de CO <sub>2</sub> sont représentées : les émissions des combustibles fossiles et du ciment de la partie en haut (partie grise), les émissions de CO <sub>2</sub> dues au changement net d'utilisation des terres, principalement la déforestation (partie jaune), le taux de croissance du CO <sub>2</sub> atmosphérique (partie bleu clair), le puits de CO <sub>2</sub> de l'océan (partie en bleu foncé) et le puits terrestre résiduel (partie verte) calculé à partir du résidu des autres termes, et représente le puits de CO <sub>2</sub> anthropique dans les écosystèmes terrestres naturels. Les émissions et leur répartition n'incluent que les flux qui ont changé depuis 1750, et non les flux naturels de CO <sub>2</sub> . (Source : IPCC 2013) .....	32
<b>Figure 1.10:</b> Évolution des émissions quotidiennes mondiales de CO <sub>2</sub> fossile par secteur (Mégatonnes de CO <sub>2</sub> /jour). Les zones ombrées représentent les fourchettes d'incertitude sur l'ensemble des estimations. Les changements sont relatifs à la moyenne annuelle des émissions quotidiennes de ces secteurs en 2019. (Source : (Le Quéré et al. 2020)).....	34
<b>Figure 1.11:</b> Schéma du cycle global du méthane. Les chiffres représentent les flux annuels en Tg(CH <sub>4</sub> ) /an (terra grammes par an) et les réserves de méthane en Tg(CH <sub>4</sub> ) : l'atmosphère et trois réservoirs géologiques (hydrates sur terre et dans le fond des océans et réserves de gaz) estimés pour la période 2000-2009. Les flèches noires indiquent les flux naturels depuis 1750, les flèches rouges indiquent les flux anthropiques, et la flèche de couleur marron indique un flux naturel et anthropique à la fois. (Source : IPCC 2013) .....	36

<b>Figure 1.12:</b> Le changement de la concentration atmosphérique du méthane au cours de l'ère industrielle, déterminé à partir des carottes de glaces (points en jaune) et de mesures atmosphériques directes (ligne bleue). (Source : IPCC 2013) .....	37
<b>Figure 1.13:</b> L'image de gauche montre l'augmentation des concentrations de méthane dans le bassin du Permien, tandis que l'image de droite met en évidence la fuite du méthane. (Source : ESA).....	37
<b>Figure 1.14:</b> Les profils NCEP et CAMS du CO <sub>2</sub> (gauche) et CH <sub>4</sub> (droite) sur la verticale atmosphérique.....	39
<b>Figure 1.15:</b> Une vue globale de l'analyseur G2401m utilisé pour la mesure du dioxyde de carbone, le méthane, le monoxyde de carbone et la vapeur d'eau (Source : NASA/airborne science). ....	40
<b>Figure 1.16:</b> Les différents instruments : SPIRIT sol (gauche) et SPIRIT avion (droite). (Source : LPC2E) .....	41
<b>Figure 1.17:</b> Schéma d'une mesure du satellite MERLIN. Ce lidar utilise la petite fraction du rayonnement laser émis qui est réfléchi par une cible "dure" (surface de la Terre ou sommet d'un nuage) vers le récepteur de l'instrument, puis convertie en signaux électriques par un photodétecteur. Les signaux des impulsions en ligne ( $\lambda_{on}$ ) et hors ligne ( $\lambda_{off}$ ) sont numérisés et corrigés en fonction de l'énergie des impulsions laser émises qui sont contrôlées dans l'instrument. Ces paires d'impulsions sont accumulées le long du trajet au sol de l'instrument pour augmenter la précision des mesures. La contribution des facteurs autres que le gaz trace est généralement constante à l'échelle spectrale, comme le montrent les lignes en pointillés dans le coin droit. (Source : (Ehret et al. 2017)) .....	42
<b>Figure 1.18:</b> Carte mondiale regroupant les différentes stations de mesures au sol du réseau .....	45
<b>Figure 1.19:</b> (a) Le tracker solaire et la station météorologique de l'instrument FTIR à l'observatoire de Maïdo sur l'île de la Réunion. (b) Le spectromètre infrarouge à haute résolution spectrale (IFS125HR) se trouve dans la pièce en dessous du tracker (Baray et al. 2013). ....	46
<b>Figure 2.1:</b> Illustration de l'observation du rayonnement provenant des couches atmosphériques (1) et du soleil (2) en mode de visée au zénith. ....	58
<b>Figure 2.2:</b> Spectre solaire au sommet de l'atmosphère (TOA) et modélisé au niveau de la mer (BOA). L'enveloppe de ces courbes est le spectre d'un corps noir à une température moyenne de 5800 K. (Source : (Herbin and Dubuisson 2016)) .....	59
<b>Figure 2.3:</b> La fonction de Planck solaire calculée à partir de Trishchenko 2006 (courbe noire) et le fit polynomial de degré 6 de cette fonction (courbe rouge). ....	60
<b>Figure 2.4:</b> Convolution de la fonction de Planck (courbe rouge de la Figure 2.3) avec le spectre de pseudo-transmittance de Toon (2015). ....	60
<b>Figure 2.5:</b> Principaux effets de l'interaction lumière-matière. ....	62
<b>Figure 2.6:</b> Diagramme énergétique des transitions d'une bande rovibrationnelle pour une molécule linéaire. (Source : (Banwell 1983)).....	64
<b>Figure 2.7:</b> Les vibrations fondamentales (modes normaux de vibration) de la molécule linéaire de dioxyde de carbone, où la vibration d'étirement symétrique (en haut à gauche) n'absorbe pas dans l'infrarouge contrairement aux autres. (Herbin and Dubuisson 2016) .....	65
<b>Figure 2.8:</b> Spectre d'absorption infrarouge de la bande $2\nu_1 + \nu_3$ de CO <sub>2</sub> enregistré avec CHRIS à Izaña. ....	65
<b>Figure 2.9:</b> Formes spectrales de raie : la courbe noire correspond à une pure fonction Gaussienne (élargissement par effet Doppler) et la courbe rouge à une pure fonction Lorentzienne (élargissement par la pression). La convolution de ces deux profils de raies est approximée à un profil de Voigt couramment utilisé pour modéliser la forme des raies d'absorption atmosphérique (courbe verte). ..	68
<b>Figure 2.10:</b> Spectre de transmission du CO simulé avec le code de transfert radiatif du LOA (ARAHMIS), où les branches P et R sont clairement visibles. ....	70



<b>Figure 2.11:</b> Comparaison entre les spectres simulés par Arahmis avec et sans le CIA de N <sub>2</sub> -air (respectivement en rouge et noir). .....	71
<b>Figure 2.12:</b> Diagramme montrant la méthode utilisée pour interpoler les coordonnées d'une grille irrégulière (p,T) des données de la section efficace. Les points noirs représentent l'ensemble des coordonnées (p,T) des données tabulées et les lignes pointillées la grille de triangulation ajustée. Si une coordonnée(p,T) requise se trouve dans la grille (rouge), sa valeur est interpolée à partir des trois points tabulés qui forment le triangle local. Si le point se trouve en dehors de la grille (bleu), sa valeur est obtenue à la limite la plus proche de la grille, point (indiqué par une flèche) des deux points tabulés adjacents.....	72
<b>Figure 3.1:</b> Le schéma de principe d'un interféromètre de Michelson. (Source : (Griffiths and de Haseth 2007)).....	80
<b>Figure 3.2:</b> La fonction Boxcar utilisée pour l'intégration de l'interférogramme sur un domaine de distance fini.....	82
<b>Figure 3.3:</b> (a) Transformée de Fourier d'une fonction Boxcar d'amplitude égale à 1 s'étendant de $+\Delta$ qui représente l'OPDmax à $-\Delta$ ; cette fonction a la forme d'une fonction sinc x. (b) Transformée de Fourier d'un interférogramme sinusoïdal généré par une ligne monochromatique ayant un nombre d'onde $\nu_1$ . (Source : (Griffiths and de Haseth 2007)) .....	82
<b>Figure 3.4:</b> le Sun-Tracker de CHRIS et de l'EM27/SUN. ....	84
<b>Figure 3.5:</b> Vue intérieure de CHRIS. Les flèches rouges illustrent le chemin optique du faisceau solaire à l'intérieur du spectromètre. ....	84
<b>Figure 3.6:</b> Principe d'un miroir en coin de cube : les deux miroirs sont bien alignés, il n'y a donc pas de différence essentielle avec le cas d'un interféromètre de Michelson à miroir plan. (Source : (Griffiths and de Haseth 2007)) .....	85
<b>Figure 3.7:</b> a) Roue à filtres qui peut être équipée jusqu'à 5 filtres optiques d'un diamètre de 25 mm chacun ; b) diaphragme d'ouverture réglable. ....	85
<b>Figure 3.8:</b> Différents types d'interférogrammes : a) interférogramme single-sided; b) interférogramme double-sided; c) interférogramme single-sided forward-backward; d) interférogramme double-sided forward-backward. ....	86
<b>Figure 3.9:</b> Réponse du détecteur MCT en fonction du flux entrant. ....	87
<b>Figure 3.10:</b> L'onglet Optique avec les différentes options modifiables : vitesse de balayage, gain et préampli... ..	88
<b>Figure 3.11:</b> Spectres du corps noir externe avec deux vitesses de balayage différentes : 120 KHz (noir) et 160 KHz (gris clair). ....	90
<b>Figure 3.12:</b> Spectres du corps noir interne de CHRIS avec des vitesses de balayage de 40 KHz (noir) avec les « ghosts » dans les cadres noirs et 120 KHz (gris clair). ....	90
<b>Figure 3.13:</b> Amélioration du SNR avec différents scans et une vitesse de balayage fixe de 120 KHz. ....	91
<b>Figure 3.14:</b> a) Spectre de bruit de fond de CHRIS, b) Estimation du rapport signal-sur-bruit en fonction du nombre d'onde. ....	92
<b>Figure 3.15:</b> La variation du SNR avec le nombre de scans. ....	92
<b>Figure 3.16:</b> Expérience de détermination de l'ILS au laboratoire PC2A. ....	93
<b>Figure 3.17:</b> Le spectre du corps noir obtenu à 1523 K après circulation du CO dans la cellule à gaz. Le cadre en orange représente la bande de CO entre 2050 et 2250 cm <sup>-1</sup> et le cadre vert montre les oscillations liées à la réflexion du signal sur les miroirs de la cellule. ....	94
<b>Figure 3.18:</b> Schéma de la réponse de l'instrument (fonction ILS) expérimentale dérivée du spectre CO de corps noir (en noir) et celle théorique (en bleu). ....	95

<b>Figure 3.19:</b> Expérience de détermination de l'ILS au centre du CNES sur le site de Aire-sur-l'Adour.	96
<b>Figure 3.20:</b> Schéma de l'ILS expérimentale dérivée d'une raie de vapeur d'eau du spectre de corps noir (en rouge) et celle théorique (en bleu).	97
<b>Figure 3.21:</b> Schéma de la réponse de l'instrument (fonction ILS) expérimentale dérivée du spectre CO de corps noir (en noir), théorique (en bleu) et celle dérivée de LINEFIT (en rouge).	98
<b>Figure 3.22:</b> La stabilité radiométrique de l'instrument obtenue en suivant les variations du corps noir interne au cours de multiples campagnes de terrain. IZA: Izana; MBR: M'Bour; VDA: Villeneuve d'Ascq; ASA: Aire-sur-l'Adour.	98
<b>Figure 3.23:</b> Installation de l de calibration radiométrique.	99
<b>Figure 3.24:</b> Les spectres corps noir cavité (CN) aux deux températures : 1273 K (en rouge) et 1473 K (en noir).	100
<b>Figure 3.25:</b> Le processus de calibration (spectrale et radiométrique) transforme le spectre non calibré (gris clair) en un spectre en luminance (noir) qui correspond à la fonction de Planck solaire expliquée dans le Chapitre 2 (ligne grise continue).	101
<b>Figure 4.1:</b> Le spectre CHRIS mesuré et simulé en transmission en conditions de ciel clair à l'observatoire d'Izaña. Chaque bande est calculée à partir de l'algorithme ARAHMIS et des spectres de pseudo-transmittance solaire rapportés par (Toon 2015).	108
<b>Figure 4.2:</b> La matrice de covariance a priori de <b>a)</b> CO <sub>2</sub> (ppm) et <b>b)</b> CH <sub>4</sub> (ppb) exprimées en Log <sub>10</sub> , similaires à celle utilisée dans Eguchi et al. 2010.	112
<b>Figure 4.3:</b> Averaging kernels et les bilans d'erreur des profils verticaux de CO <sub>2</sub> pour les bandes BT, B1 et B3 séparément et toutes les bandes ensemble pour un SZA de 10° pour CHRIS. Les lignes rouges et noires pleines représentent respectivement les erreurs a priori (S <sub>a</sub> ) et a posteriori (S <sub>x</sub> ) ; les erreurs de lissage (S <sub>smoothing</sub> ), de mesure (S <sub>meas</sub> : ) et de paramètres du modèle direct (S <sub>fwd:mod</sub> : ) sont respectivement représentées par des tirets/points, des tirets/étoiles et des points.	115
<b>Figure 4.4:</b> Idem figure 4.3, mais pour CH <sub>4</sub> avec les bandes BT, B2, B3 et toutes les bandes simultanément.	117
<b>Figure 4.5:</b> Averaging kernels et bilan d'erreurs des profils verticaux de CO <sub>2</sub> et CH <sub>4</sub> pour toutes les bandes pour EM27/SUN et CHRIS combinés pour un angle de 10°. Les lignes rouges et noires représentent respectivement les erreurs a priori (S <sub>a</sub> ) et a posteriori (S <sub>x</sub> ) ; les erreurs de lissage (S <sub>smoothing</sub> ), de mesure (S <sub>meas</sub> :), et les paramètres du modèle direct (S <sub>fwd:mod</sub> : ) sont respectivement représentées par des tirets/points, des tirets/étoiles et des points.	121
<b>Figure 4.6:</b> Averaging kernels et bilans d'erreur des profils verticaux de CO <sub>2</sub> et de CH <sub>4</sub> pour toutes les bandes de l'IFS125HR pour un angle de 10°. Les lignes rouges et noires représentent respectivement les erreurs a priori (S <sub>a</sub> ) et a posteriori (S <sub>x</sub> ) ; les erreurs de lissage (S <sub>smoothing</sub> ), de mesure (S <sub>meas</sub> ) et les paramètres du modèle direct (S <sub>fwd:mod</sub> ) sont respectivement représentées par des tirets/points, des tirets/étoiles et des points.	122
<b>Figure 4.7:</b> Évolution du DOFS avec le nombre de canaux sélectionnés pour CO <sub>2</sub> (noir) et CH <sub>4</sub> (gris).	124
<b>Figure 5.1:</b> Carte mondiale regroupant les différentes campagnes de mesure effectuées par CHRIS : I) Villeneuve d'Ascq (France), II) Etna et Stromboli (Italie), III) M'Bour (Sénégal), IV) Izaña (Iles Canaries), V) Aire-sur-l'Adour (France) et Trainou (France).	132
<b>Figure 5.2:</b> Les campagnes MAGIC multi-instruments sol-avions-ballons. (Source : MAGIC/Aeris)	133
<b>Figure 5.3:</b> Les profils de concentration de CO <sub>2</sub> (à gauche) et de CH <sub>4</sub> (à droite) mesurés par le Falcon20 de SAFIRE et l'AirCore (LMD) le 24 mai 2018. (Source : MAGIC/Aeris)	134

<b>Figure 5.4:</b> Mesures effectuées lors de MAGIC2020 (11 septembre) : Les trajectoires et les altitudes du Falcon20 sont indiquées, ainsi que les lieux de lâcher de 5 dropdsondes, les 4 spectromètres au sol (3 EM27/SUN et notre instrument CHRIS) et le site d'atterrissage des AirCore et des Amulse lancé sous des ballons météorologiques depuis Aire-sur-l'Adour. (Source : MAGIC/Aeris).....	135
<b>Figure 5.5:</b> Les profils de CO <sub>2</sub> montants et descendants de l'AMULSE mesurés au jour J durant la campagne MAGIC2019. ....	137
<b>Figure 5.6:</b> Les profils de CO <sub>2</sub> descendants de l'AMULSE et de l'AirCore mesurés au jour J durant la campagne MAGIC2019. ....	138
<b>Figure 5.7:</b> L'exercice d'inter-comparaison réalisé à Trainou avec les EM27/SUN (droite), CHRIS (gauche) et l'IFS125HR du TCCON. ....	139
<b>Figure 5.8:</b> Récapitulatif des mesures effectuées par l'équipe LOA durant la campagne MAGIC2019. ....	139
<b>Figure 5.9:</b> Comparaison des différents profils de CO <sub>2</sub> (gauche) pour la journée du 18 Juin 2019 à ASA.....	140
<b>Figure 5.10:</b> Le modèle direct calculé pour les bandes de CO <sub>2</sub> de CHRIS à partir d'ARAHMIS pour les différents profils fournis durant la campagne MAGIC2019. Le cadre rouge permet de distinguer les quatre simulations différentes.....	141



## **Liste des tableaux :**

<b>Tableau 1.1:</b> Missions spatiales actuelles et futures pour le suivi des gaz à effet de serre.....	44
<b>Tableau 3.1:</b> Différentes fonctions d'apodisations et leur largeur de raie (résolution) correspondante. .....	83
<b>Tableau 4.1:</b> Paramètres du vecteur d'état a priori. ....	113
<b>Tableau 4.2:</b> Les DOFS et les erreurs de colonne (%) du CO <sub>2</sub> pour chaque bande et pour chaque instrument. ....	116
<b>Tableau 4.3:</b> Les DOFS et les erreurs de colonne (%) de CH <sub>4</sub> pour chaque bande et pour chaque instrument. ....	118
<b>Tableau 4.4:</b> Le total des erreurs de colonne pour les profils de CO <sub>2</sub> et de CH <sub>4</sub> pour CHRIS pour les deux SZA. Les incertitudes sont indiquées en pourcentages (%). ....	119
<b>Tableau 4.5:</b> Caractéristiques instrumentales de CHRIS, EM27-SUN et IFS125HR de NDACC et TCCON. ....	120
<b>Tableau 4.6:</b> Nombre correspondant de canaux sélectionnées pour le DOFS de CO <sub>2</sub> et de CH <sub>4</sub> et leur pourcentage respectif du nombre total de canaux pour CHRIS. ....	125
<b>Tableau 5.1:</b> Les colonnes totales de CO <sub>2</sub> calculées pour les différentes bandes de CHRIS. ....	142



## **Introduction générale**

L'atmosphère terrestre est le siège de nombreuses interactions chimiques complexes à différentes échelles de temps et d'espace. La composition chimique, en particulier, n'a cessé d'évoluer notamment depuis le début de l'ère industrielle. L'augmentation brusque de la population mondiale a conduit à une multiplication des moyens de transports et donc à l'augmentation des émissions des gaz traces. En plus, le progrès technique et l'expansion des activités industrielles et agricoles contribuent aussi à ces émissions. Ces facteurs anthropiques (liés à l'activité humaine) ont accéléré les changements physico-chimiques de notre atmosphère, et par conséquent l'effet de serre.

La réponse du système climatique à la perturbation due à ces facteurs est très difficile à quantifier et nécessite encore beaucoup de recherches. La conséquence de ces changements sur les modes de vies présents et futurs s'avère être un des grands défis à relever pour l'ensemble des écosystèmes, l'économie mondiale et la santé humaine. Dans le but de réduire les risques sanitaires et les impacts de nos sociétés sur notre environnement, des mesures réglementaires ont été mises en place par les pays signataires de la convention cadre des nations unies comme l'Accord de Paris (*FCCC/CP/2015/4*). Ce dernier ayant pour objectif de diminuer l'impact du réchauffement climatique puisqu'il engage tous les pays du monde à réduire leurs émissions de gaz à effet de serre (GES).

Pour toutes ces raisons, la communauté scientifique doit travailler en synergie pour pouvoir mieux mesurer les gaz à effet de serre. Des mesures précises signifient une meilleure quantification des concentrations des GES, donc une meilleure compréhension de leur dynamique spatiale et temporelle. Cela conduit à une estimation de flux précise et donc une distinction des sources et puits des GES. Dans ce contexte, il est évident que les observations continues de la composition atmosphérique sont indispensables, ainsi que la comparaison de ces données avec des modèles climatiques pour comprendre et quantifier d'une manière efficace tous les mécanismes impliqués dans ces phénomènes.

Les mesures de CO<sub>2</sub>, qui est l'un des principaux gaz à effet de serre, ont débuté dans les années 1960 au sommet de l'Observatoire de Mauna Loa, Hawaï, Etats Unis (*Keeling 1960*). Au début des années 1970, des programmes d'observations par satellites étaient développés afin d'obtenir une couverture spatiale plus grande, dont on trouve une revue dans (*Persky 1995*). Les plateformes satellitaires effectuent des mesures à une échelle plus grande que celle depuis le sol, voire globale pour les satellites héliosynchrones. Pour cela, l'instrumentation au sol n'est pas seulement complémentaire aux satellites, mais aussi, grâce à des mesures locales précises, une méthode de validation satellitaire.

La télédétection passive à transformée de Fourier permet d'observer la colonne atmosphérique d'une manière non-intrusive, et d'analyser simultanément de multiples composants atmosphériques grâce à sa couverture spectrale très large. Les spectres mesurés contiennent plusieurs milliers de signatures spectrales caractéristiques des différentes molécules rencontrées qui permettent d'étudier l'évolution de la concentration atmosphérique au cours de la journée puisque chaque mesure correspond à un état de l'atmosphère, en terme d'abondance gazeuse, à un instant donné.

Le travail de cette thèse a consisté à caractériser le prototype instrumental CHRIS (Compact High-spectral Resolution Infrared Spectrometer) qui est un spectromètre infrarouge à Transformée de Fourier fonctionnant en mode de visée solaire. En outre, grâce à la comparaison des mesures et d'analyse par différents instruments ayant des résolutions et des couvertures spectrales différentes, ce travail présente un intérêt méthodologique : Est-il possible de mesurer, avec une précision acceptable, les concentrations de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> atmosphérique en utilisant ce nouveau prototype instrumental ? Les

résultats sont-ils en accord avec ceux obtenus par d'autres instruments ou méthodes ? Y a-t-il un intérêt à faire de la synergie spectrale TIR (Thermal Infrared) + SWIR (Short Wave Infrared) + NIR (Near Infrared) ?

Les objectifs scientifiques de ce travail de thèse sont de répondre à ces questions en procédant comme suit :

- Caractérisation complète de CHRIS en termes de fonction d'appareil, de calibration radiométrique et spectrale ;
- La mesure des GES lors de campagnes de terrain ;
- Exploitation des mesures de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> et éventuellement les gaz traces en étudiant le modèle direct et la méthode inverse pour l'éventuelle comparaison avec les restitutions provenant d'autres instruments ;
- La comparaison des résultats issus de CHRIS avec ceux obtenus à partir des mesures à haute résolution de l'instrument IFS125HR du réseau TCCON et l'étude de complémentarité avec l'EM27/SUN dans le cadre de la campagne MAGIC. Le but étant d'évaluer l'impact de la résolution spectrale et la synergie spectrale sur la restitution du CO<sub>2</sub>.

Le Chapitre 1 rappelle l'état actuel de la compréhension du système climatique et les propriétés des gaz à effet de serre anthropiques. Ensuite, le Chapitre 2 présente les caractéristiques de la spectroscopie infrarouge à haute résolution et les différents paramètres amenant à la résolution de l'équation de transfert radiatif. Pour aboutir aux objectifs mentionnés ci-dessus, le Chapitre 3 sera consacré à la présentation et la caractérisation complète de CHRIS. La nécessité d'avoir des mesures continues à long termes de ces gaz a encouragé la communauté française à établir une campagne de mesure nationale annuelle appelée MAGIC (Monitoring of Atmospheric composition and Greenhouse gases through multi-Instruments campaigns). CHRIS est impliqué dans cette campagne ainsi que d'autres instruments depuis le sol comme l'IFS125HR du réseau TCCON et l'EM27/SUN. Dans ce contexte, en plus de l'étude de contenu en information de CHRIS nous présentons dans le Chapitre 4 une étude similaire pour les deux autres instruments au sol. Une étude comparative avec l'instrument IFS125HR est alors présentée. Puisque CHRIS et l'EM27/SUN ont une bande commune dans la région SWIR, on présente aussi une étude de complémentarité qui montre l'impact de la synergie spectrale sur la quantification du couplage TIR-NIR-SWIR pour ces deux instruments. En outre, on décrira aussi la sélection des canaux qui nous permet d'adapter au mieux les canaux de CHRIS par rapport aux vecteurs d'états choisis. Finalement, le Chapitre 5 présente une première comparaison de colonnes totales de CO<sub>2</sub> obtenues par les différents instruments impliqués dans MAGIC.





## Chapitre 1 : Contexte.

### **Introduction**

Les conséquences du réchauffement climatique sont au cœur des préoccupations sociétales actuelles, avec une évolution rapide et inédite depuis l'essor des activités industrielles. Ce réchauffement se traduit par une augmentation du niveau moyen des océans, et la diminution de l'albédo de surface des terres interprété par une réduction des quantités de glace sur les continents et dans les océans au pôle nord. L'explosion des activités industrielles et agricoles suivie par la multiplication des moyens de transports ont entraîné une modification progressive de la composition chimique de l'atmosphère terrestre.

Certains gaz minoritaires appelés « gaz à effet de serre » (GES) peuvent absorber le rayonnement infrarouge et donc impacter l'équilibre radiatif de la planète. Ces gaz sont naturellement présents dans l'atmosphère (vapeur d'eau, dioxyde de carbone, méthane, etc.) et contribue à l'effet de serre naturel qui rend la terre habitable. Toute modification de la concentration atmosphérique d'un GES induit une modification de l'équilibre radiatif, et peut s'accompagner d'une dégradation de la qualité de l'air. Ici, on s'intéresse aux principaux gaz à effet de serre d'origine anthropique (liés à l'activité humaine) qui sont le CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub> qui participent activement à l'effet de serre.

Plusieurs décisions réglementaires ont été prises pour limiter l'impact de l'homme sur l'environnement comme le protocole de Kyoto en 1997 (*Ki-moon 2008*) et l'accord international de Paris lors de la COP21 en décembre 2015. Dans ce contexte, le suivi de l'évolution de la concentration atmosphérique de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> est un enjeu majeur au cœur des recherches climatiques. En conséquence, l'urgence maintenant est de pouvoir mieux mesurer les GES en développant des techniques innovantes pour quantifier les émissions de ces gaz. La restitution de la concentration de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> aboutit à une meilleure compréhension de leur répartition spatiale et temporelle et donc la capacité d'anticiper les conséquences du réchauffement climatique.

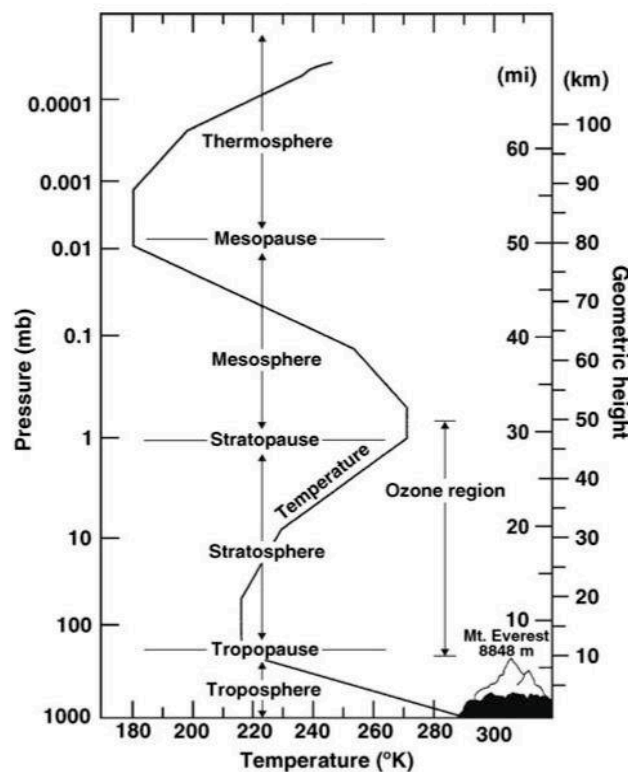
### **1.1. Structure et composition de l'atmosphère terrestre.**

#### **1.1.1. La structure verticale de l'atmosphère.**

L'atmosphère terrestre est une enveloppe gazeuse découpée en quatre couches principales qui dépendent du gradient de la température. La limite de chaque couche indique un changement brusque du gradient de la température. Ces couches sont classées dans l'ordre croissant d'altitude : la couche limite débutant au niveau de la mer et s'élevant à 2 km, est directement influencée par la présence de la surface terrestre. Cette couche réagit aux forçages de la surface avec un temps très court, donc sa hauteur varie très rapidement. Une des techniques utilisées pour identifier et vérifier la variabilité de la couche limite, est le lidar (cf. section 1.4.2.1). La troposphère libre, dont la température diminue avec l'altitude, débute à 2 km et s'élève en moyenne jusqu'à 8 km d'altitude en régions polaires, 12 km sous les latitudes moyennes et 18 km sous les tropiques (altitudes de la tropopause). Cette couche est très importante car, d'une part elle est le siège de phénomènes météorologiques intenses qui sont en lien direct avec les activités anthropiques, et d'autre part, elle contient la majeure partie de la vapeur d'eau ainsi que 80 à 90% de la masse totale de l'air. Au-dessus de la tropopause se trouve la stratosphère allant jusqu'à 60 km d'altitude avec une augmentation de la température en fonction de l'altitude. Cette couche contient principalement le diazote (N<sub>2</sub>) et l'oxygène (O<sub>2</sub>) mais aussi l'ozone qui absorbe le rayonnement solaire ultraviolet nocif à l'organisme vivant. Cette absorption provoque

une élévation de la température dans la stratosphère puisqu'elle est accompagnée d'un dégagement d'énergie sous forme de chaleur. Au-dessus de 60 km ; se situe la mésosphère avec une nouvelle chute de température dû à l'émission infrarouge du CO<sub>2</sub>. Finalement, la couche la plus haute de l'atmosphère est la thermosphère qui se situe au-delà de 90 km où les rayons solaires UV de longueur d'onde inférieure à 175 nm entraînent l'augmentation de la température et la dissociation des molécules d'air et provoquent une ionisation des atomes. C'est dans cette couche que se produisent les aurores boréales. Après cette dernière couche, la densité des molécules est très faible donc elles peuvent parcourir des centaines de kilomètres sans collision, ce qui permet aux particules de s'échapper constamment vers l'espace. Le taux de perte de l'hydrogène, qui est le gaz le plus volatile, est de 259.2 tonnes par jour (Catling and Zahnle 2009). Généralement, on considère l'altitude limite en fonction des applications, par exemple en aéronautique elle est fixée à 100 km, tandis que pour les applications météorologiques elle varie entre 100 et 120 km.

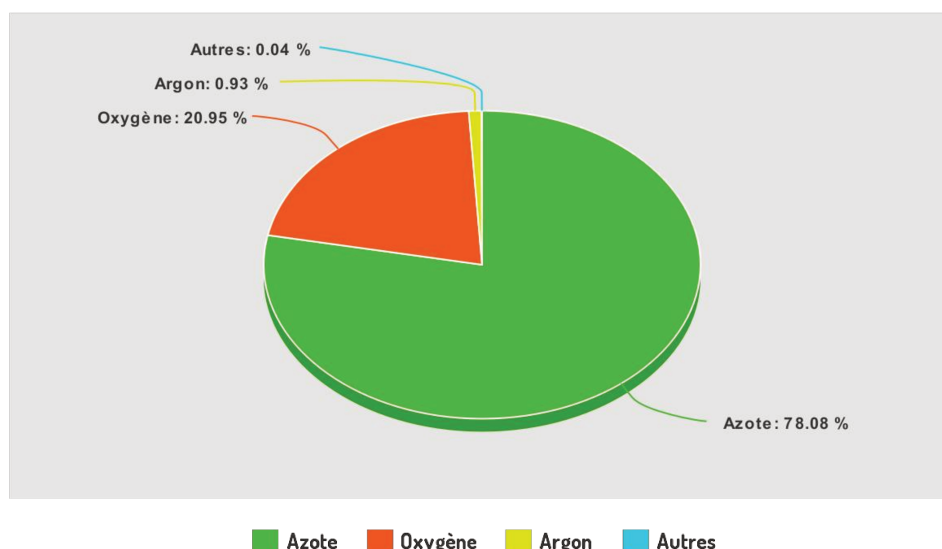
L'atmosphère standard est une représentation idéalisée de l'atmosphère basée sur des conditions moyennes à long terme, très utile en instrumentation. L'atmosphère standard américaine (1976) (National Geophysical Data Center 1992), est un standard très largement utilisé. Cette dernière est illustrée sur la **Figure 1.1** qui montre la structure verticale des températures de l'atmosphère, représentative des conditions des latitudes moyennes, jusqu'à un peu plus de 100 km d'altitude, ainsi que les couches et limites atmosphériques. La température diminue avec l'altitude dans la troposphère, augmente dans la stratosphère, diminue à nouveau dans la mésosphère, puis ré-augmente dans la thermosphère.



**Figure 1.1:** Structure verticale de la température de l'atmosphère s'étendant de la surface de la Terre jusqu'à une altitude d'environ 110 km, comme indiqué dans l'US Standard Atmosphere (1976). Les principales couches définies par cette structure de température et les limites entre elles sont présentées. Comme indiqué, l'ozone se trouve principalement dans la stratosphère. La pression est illustrée à gauche en millibars (1 mb=100 Pascal) et l'altitude géométrique à droite (km). (source: Schlatter 2010)

### 1.1.2. La composition de l'atmosphère terrestre.

L'air « sec » est composé principalement de diazote ( $N_2$ , 78.08%), de dioxygène ( $O_2$ , 20.95%) et d'argon (Ar, 0.93%). L'air sec mélangé à la vapeur d'eau constitue l'air humide. D'autres gaz, dits mineurs, peuvent être également trouvés avec un volume inférieur à 0.03% (voir **Figure 1.2**), appelés gaz traces. Ces derniers peuvent avoir un impact important malgré leur très faible concentration. En effet, ces gaz jouent un rôle déterminant dans la physico-chimie de l'atmosphère, sur l'effet de serre ( $H_2O$ ,  $CO_2$ ,  $O_3$ ,  $CH_4$ ) ou sur la qualité de l'air ( $N_2O$ ,  $CO$ ,  $SO_2$ ).



*Figure 1.2: Répartition du volume des gaz constituant l'air sec (sans  $H_2O$ ).*

L'abondance des espèces atmosphériques peut s'exprimer en densité moléculaire ( $\text{molécules.cm}^{-3}$ ), ou plus couramment par un rapport de mélange en volume, noté vmr pour volume mixing ratio, qui exprime le rapport entre le nombre de molécules d'une espèce et le nombre total des molécules d'air dans un volume donné. Il peut être exprimé en ppm (particules par million,  $10^{-6}$ ), en ppb (particules par billion,  $10^{-9}$ ) ou en ppt (particules par trillion,  $10^{-12}$ ).

Une autre quantité appelée fraction molaire moyenne d'air sec, est utilisée à la place de la colonne totale puisqu'elle est moins sensible aux variations de la pression de surface et de la vapeur d'eau. Cette caractéristique est avantageuse pour les études du cycle du carbone car elle permet de comparer directement les mesures des gaz traces pendant des saisons différentes, entre les sites et avec les mesures in situ. Pour calculer ces fractions, la colonne totale du gaz d'intérêt est divisée par la colonne d'air sec, que nous mesurons en utilisant l'oxygène, multiplié par une fraction molaire d'air sec supposée être de l' $O_2$  (0.2095) :

$$X_G = \frac{\text{column}_G}{\text{column } O_2} \times 0.2095 \quad 1.1$$

La précision de ces valeurs est définie par l'organisation météorologique mondiale (WMO) comme l'accord entre des mesures répétées dans des conditions spécifiées. Pour cela, les valeurs de  $X_G$  obtenues sont liées aux données obtenues à l'étalon actuellement accepté par cette organisation.

Dans la suite de ce manuscrit, le « profil vertical » d'une espèce désigne la distribution verticale de son rapport de mélange. Tandis que, la « colonne » d'une espèce symbolise la quantité intégrée de la distribution verticale de la densité moléculaire. Ces quantités sont exprimés en fonction de l'air sec.

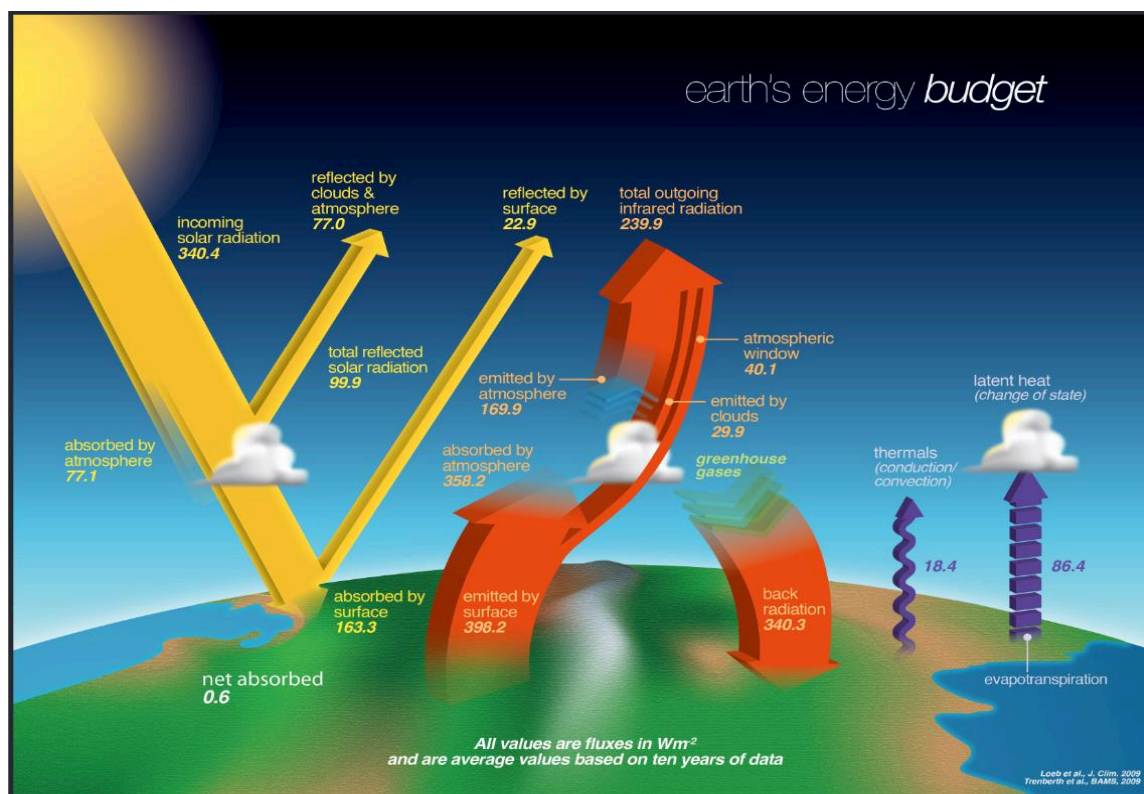
## **1.2. Dynamique de l'atmosphère.**

### **1.2.1. Bilan radiatif de l'atmosphère.**

Le rayonnement solaire est la source principale d'énergie du système climatique terrestre, donc il est à l'origine de la plupart des phénomènes physiques. L'énergie reçue, réfléchie, absorbée et émise par la terre forme les composantes du bilan radiatif de la Terre, exprimée en  $\text{W.m}^{-2}$ . Le principe de conservation d'énergie nous permet de déduire que ce bilan radiatif représente l'équilibre trouvé lorsque le rayonnement solaire absorbé (entrant moins sortant) est égal au rayonnement émis dans l'infrarouge. Un bilan déséquilibré peut entraîner une augmentation ou une diminution de la température de l'atmosphère et, à terme, affecter le climat.

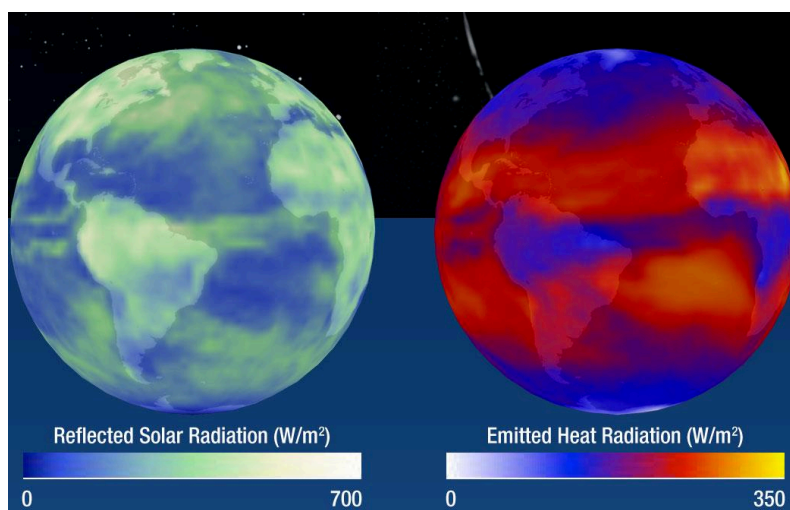
Le rayonnement provenant du soleil est constitué des rayons ultraviolets, visibles et une partie de l'infrarouge. Ce système reçoit en moyenne une énergie d'environ  $1361 \text{ W.m}^{-2}$  au sommet de l'atmosphère et une énergie de  $340 \text{ W.m}^{-2}$  à la surface de la terre (voir **Figure 1.3**). Une partie de ce rayonnement entrant est réfléchi par les nuages ( $100 \text{ W.m}^{-2}$ ) et une autre est absorbée par l'atmosphère. Il reste donc  $240 \text{ W.m}^{-2}$  d'énergie solaire absorbée par la Terre, qui est presque équilibrée par l'émission thermique vers l'espace. Les constituants de l'atmosphère interagissent avec le rayonnement et en absorbent une partie, ce qui provoque un réchauffement de l'atmosphère. Le système étant chauffé, il émet vers l'espace de l'énergie sous forme de rayonnement infrarouge (grandes longueurs d'ondes) qui réchauffe la basse atmosphère, et à son tour réchauffe la surface de notre planète.

Si la quantité d'énergie absorbée est égale à la quantité d'énergie émise ou réfléchi, on dit qu'il y a équilibre radiatif du système climatique illustré sur la **Figure 1.3**. Sinon, il y a modification de l'équilibre radiatif qui entraîne ce qu'on appelle « forçage radiatif ». Ce dernier exprimé aussi par  $\text{W.m}^{-2}$ , décrit la perturbation du bilan radiatif du système climatique par des facteurs extérieurs, tels que les émissions anthropiques de gaz à effet de serre. S'il est positif, il y a réchauffement du système ; et refroidissement dans le cas inverse.



**Figure 1.3:** Bilan global d'énergie du système climatique dans les conditions actuelles. Les chiffres indiquent les flux d'énergie exprimés en  $W.m^{-2}$ . (Source : NASA/science)

Les échanges d'énergie entre le soleil, la terre et l'espace sont observés à partir de plateformes spatiales et l'instrument CERES (Clouds and the Earth's Radiant Energy System, (Wielicki *et al.* 1996)) est l'un des plus connus. Cet instrument est à bord des satellites Aqua et Terra de la NASA, et mesure avec précision le rayonnement à courtes longueurs d'ondes réfléchi et le rayonnement à grandes longueurs d'ondes émis dans l'espace comme illustré dans la **Figure 1.4**. Ces mesures ont permis de déterminer le bilan radiatif total de la Terre (Loeb *et al.* 2009, Kato *et al.* 2013).

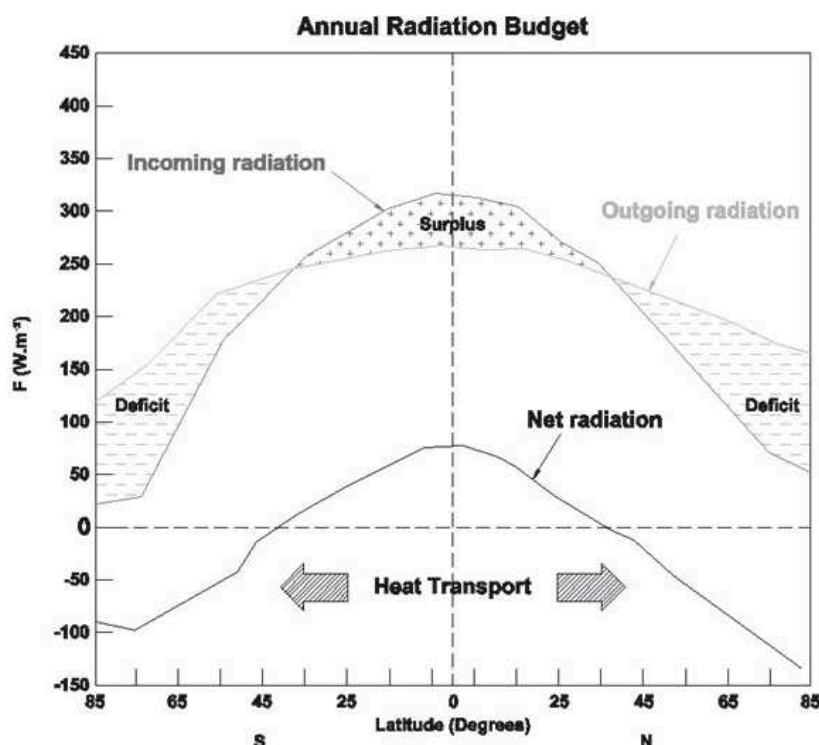


**Figure 1.4:** Le rayonnement réfléchi et émis par la terre comme mesuré depuis l'instrument CERES à bord des satellites Aqua et Terra. (Source : NASA/Goddard Space Flight Center Scientific Visualization Studio)

Cependant, il y a un déséquilibre qui apparaît en fonction de la latitude : il y a un excédent d'énergie aux basses latitudes et un déficit d'énergie au-delà de  $45^\circ$  de latitude comme indique la



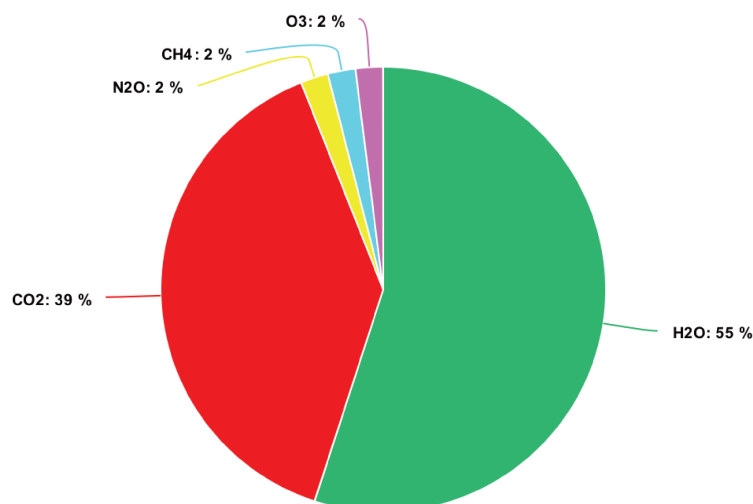
**Figure 1.5.** Cela entraîne un transfert d'énergie des basses vers les hautes latitudes, responsable en partie de la dynamique atmosphérique mais aussi océanique. A l'échelle globale, seules les zones de moyennes latitudes sont en équilibre radiatif.



**Figure 1.5:** Bilan radiatif annuel ( $\text{W.m}^{-2}$ ) de l'atmosphère (net radiation) en fonction de la latitude, défini comme différence entre le rayonnement entrant (incoming radiation) et celui sortant (outgoing radiation) par l'atmosphère. (Source : (Herbin and Dubuisson 2016))

### 1.2.2. Effet de serre.

Le rayonnement infrarouge (grandes longueurs d'ondes) émis par la surface (voir section précédente) est absorbé par des gaz appelés gaz à effets de serre GES ( $\text{H}_2\text{O}$  et  $\text{CO}_2$  principalement) ce qui réchauffe notamment la basse atmosphère. À son tour, l'atmosphère réchauffée émet des radiations de grandes longueurs d'ondes, dont une partie rayonne vers la surface de la terre et la réchauffe : c'est l'effet de serre. Malgré leurs faibles concentrations dans l'atmosphère, ces gaz donnent une température moyenne à la surface de  $15^\circ\text{C}$  au lieu de  $-18^\circ\text{C}$  (s'il n'y avait pas d'atmosphère) ce qui les rend essentiels pour le maintien de la vie. L'augmentation des concentrations des GES augmente la température de la basse atmosphère en limitant le passage vers l'extérieur du rayonnement émis, ce qui entraîne un "réchauffement climatique". Les principaux gaz à effet de serre naturel sont  $\text{H}_2\text{O}$  (55%),  $\text{CO}_2$  (39%),  $\text{CH}_4$  (2%),  $\text{N}_2\text{O}$  (2%) et  $\text{O}_3$  (2%) comme le montre la figure suivante.



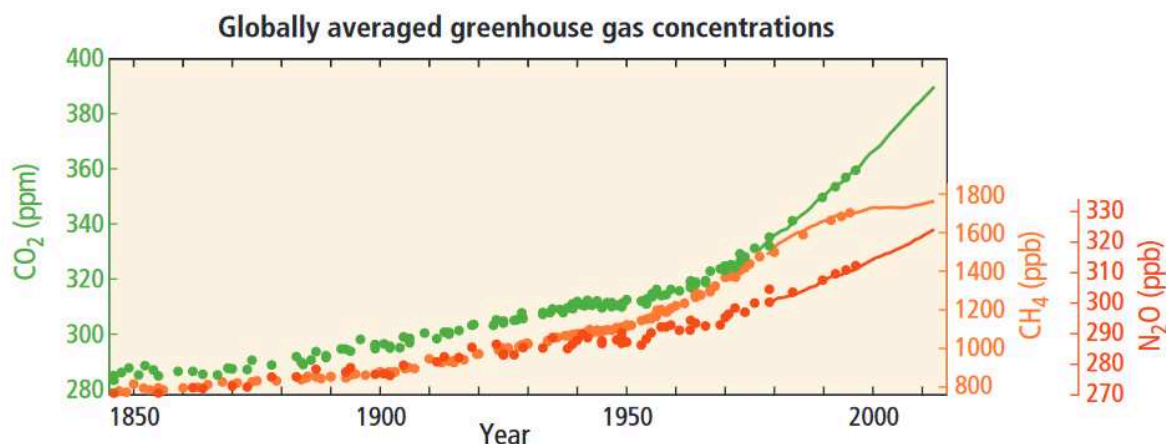
**Figure 1.6:** Contribution à l'effet de serre naturel des différents gaz présents dans l'atmosphère.

En plus des gaz déjà mentionnés, les halocarbures (groupe de gaz comprenant le fluor, le chlore ou le brome), tels que les chlorofluorocarbones (CFC) et hydrofluorocarbures (HCFC) modifient les capacités oxydantes de l'atmosphère puisqu'ils atteignent la stratosphère, grâce à leur stabilité moléculaire, où la dissociation par le rayonnement ultraviolet libère des atomes de chlore, qui catalysent la destruction de l'ozone stratosphérique (*Harrison 2018*). Le protocole de Montréal en 1987 a conduit à l'élimination progressive de la production et de l'utilisation des CFC dans le monde entier. Par contre, on arrive toujours à les détecter, notamment le CFC-11 et -12, puisqu'ils ont une durée de vie dans l'atmosphère largement supérieure à 50 ans.

On note également la présence des gaz réactifs, dérivés du carbone, de l'azote ou du soufre qui contribuent à la formation photochimique de l'ozone et dont l'oxydation produit des acides parfois sous forme de précipitations (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, HNO<sub>3</sub>). Ces gaz ont un effet nocif sur la faune et la flore. Leurs concentrations ont augmenté considérablement depuis le XIX<sup>e</sup> siècle, principalement du fait des activités humaines.

Depuis l'ère industrielle, les émissions anthropiques des gaz à effet de serre n'ont cessé d'augmenter, en grande partie sous l'effet de la croissance économique et démographique, entraînant une augmentation de la température de la terre. La période de 1983 à 2012 a été la période la plus chaude des 800 dernières années dans l'hémisphère nord (*IPCC 2014*), où les données montrent un réchauffement de 0,85°C sur la période 1880-2012. Ces émissions anthropiques ont conduit à des concentrations atmosphériques de dioxyde de carbone et de méthane et de protoxyde d'azote sans précédent (**Figure 1.7**).





**Figure 1.7:** Concentrations atmosphériques des gaz à effet de serre : dioxyde de carbone ( $\text{CO}_2$ , vert), méthane ( $\text{CH}_4$ , orange) et protoxyde d'azote ( $\text{N}_2\text{O}$ , rouge) déterminées à partir des données de carottes de glace (points) et des mesures atmosphériques directes (lignes). (Source: IPCC 2014)

Ces données alarmantes ont poussé la communauté internationale à se réunir afin de réduire les émissions des gaz à effet de serre pour lutter contre les changements climatiques. De nos jours, des actions politiques et économiques sont mises en place, comme par exemple l'Accord de Paris qui est l'accord international obtenu à la COP21 sur le changement climatique en 2015. C'était la 21<sup>ème</sup> session annuelle de la Conférence des Parties (COP). L'accord est entré en vigueur en 2016 lorsqu'il a été rejoint par 55 pays qui représentent ensemble au moins 55 % de l'effet de serre mondial, dont les trois premiers sont la Chine, les États-Unis et l'Union Européenne.

### 1.3. GES : Importance du dioxyde de carbone et du méthane.

Dans cette section, on s'intéresse à l'étude des gaz à effet de serre d'origine anthropique qui sont le  $\text{CO}_2$  et le  $\text{CH}_4$  et leur potentiel de réchauffement (GWP : Global Warming Potential). Ce dernier est défini comme le forçage radiatif intégré dans le temps dû à une émission d'un composant donné, par rapport à une émission d'une masse égale de  $\text{CO}_2$ . Evidemment, le dioxyde de carbone a un GWP = 1, tandis que le méthane possède un potentiel de réchauffement 28 fois plus élevé que le  $\text{CO}_2$  sur un horizon de 100 ans (Zhou et al. 2018). La concentration élevée du  $\text{CO}_2$  le classe comme le gaz le plus nocif pour le climat ce qui fait du méthane le deuxième gaz à effet de serre anthropique le plus important.

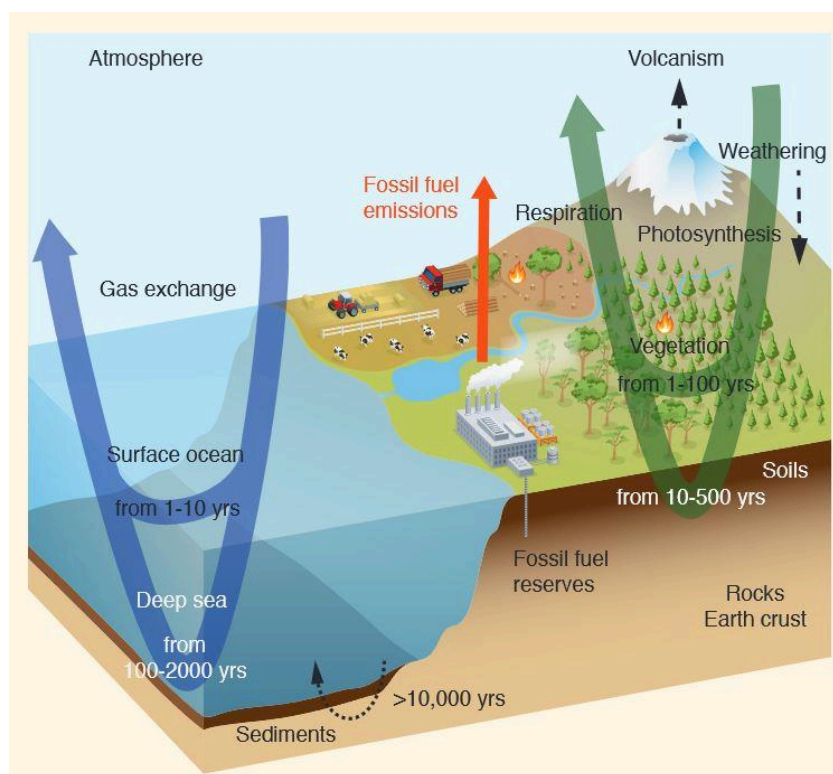
#### 1.3.1. Le dioxyde de carbone.

Le dioxyde de carbone est le deuxième gaz absorbant à effet de serre naturel (après la vapeur d'eau) tandis qu'il est le principal GES d'origines anthropiques. Ce gaz peut être considéré comme la composante mobile du cycle du carbone défini comme une série de réservoirs de carbone dans le système terrestre, qui sont reliés par des flux d'échange de carbone. Les autres principaux gaz traces du carbone sont le méthane  $\text{CH}_4$  (discuté en détails dans la Section 1.3.2) et le monoxyde de carbone  $\text{CO}$ .

##### 1.3.1.1. Origines et sources.

Le cycle de carbone contient deux domaines dénommés « domaine lent » et « domaine rapide ». Ce dernier est constitué du carbone dans l'atmosphère, l'océan, les sédiments océaniques de surface et sur terre dans la végétation, les sols et les eaux douces avec d'importants flux d'échange et

une rotation relativement "rapide" des réservoirs. Le temps de renouvellement des réservoirs, varie de quelques années pour l'atmosphère à des millénaires pour les principaux réservoirs de carbone terrestre et océanique. Le deuxième domaine lent est constitué par les énormes réserves de carbone dans les roches et les sédiments qui échangent du carbone avec le domaine rapide par le biais des émissions volcaniques de CO<sub>2</sub>, de l'altération chimique, de l'érosion et de la formation de sédiments sur le fond marin. Les temps de renouvellement des réserves (principalement géologiques) du domaine lent sont de 10 000 ans ou plus. La **Figure 1.8** présente un schéma simplifié du cycle global du carbone où les flèches indiquent les transferts des atomes de carbone à travers les différents réservoirs.



**Figure 1.8:** Schéma simplifié du cycle global du carbone montrant les échelles de temps de renouvellements typiques pour les transferts de carbone à travers les principaux réservoirs. (Source : IPCC 2013)

Les flux d'échange naturels entre le domaine lent et le domaine rapide du cycle du carbone étaient relativement constants jusqu'à la révolution industrielle qui a conduit à une consommation plus importante de combustibles fossiles. Cette source anthropique a provoqué une perturbation sans précédent du cycle du carbone, induite par l'homme et par conséquent une augmentation de la concentration du CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère.

Le carbone des combustibles fossiles provient de dépôts géologiques de charbon, de pétrole et de gaz qui ont été enfouis dans la croûte terrestre pendant des millions d'années. Les émissions mondiales de CO<sub>2</sub> provenant de cette source ont augmenté de 3,2% par an en moyenne au cours des années 2000-2009, contre 1,0% par an dans les années 1990 (IPCC 2013).

La deuxième source majeure d'émissions anthropiques de CO<sub>2</sub> est due au changement d'utilisation des sols, principalement la déforestation ainsi que la conversion des écosystèmes naturels en écosystèmes gérés pour la production d'aliments pour les êtres vivants. Les émissions de cette source sont donc liées à la combustion de matières végétales, la décomposition des plantes mortes ainsi qu'au carbone organique du sol. Depuis le milieu du 18<sup>ème</sup> siècle, les changements anthropiques d'utilisation des terres ont entraîné l'utilisation d'environ 50 millions de km<sup>2</sup> de terres cultivées et de

pâturages, ce qui correspond à environ 38% de la superficie totale des terres exploitables, comparée à une superficie estimée entre 7,5 et 9 millions de km<sup>2</sup> vers 1750.

Depuis le début de l'ère industrielle, les émissions anthropiques cumulées de CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère ont entraîné une augmentation de 40% de la concentration de CO<sub>2</sub> passant de 278 ppm en 1750 à 390.5 ppm en 2011. La variation de la concentration de ce gaz est établie à partir des observations sols depuis 1957 (*Foucher et al. 2011*). Environ 40% de ces émissions sont restées dans l'atmosphère ; le reste a été retiré de l'atmosphère et stocké sur terre (dans les plantes et les sols) et dans l'océan. L'océan a absorbé environ 30% du CO<sub>2</sub> anthropique émis, entraînant une acidification des océans.

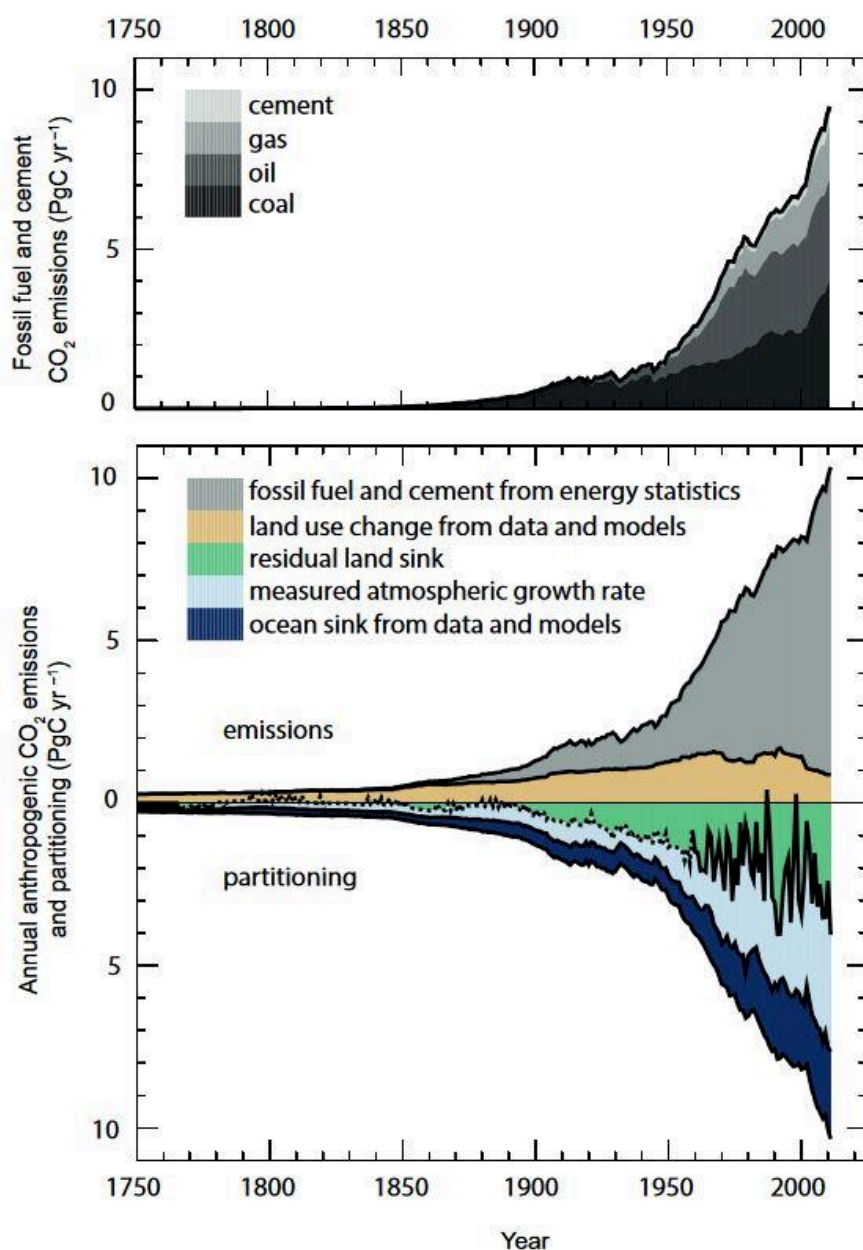
### **1.3.1.2.Puits.**

Il est bien établi que l'augmentation atmosphérique observée de la concentration globale de CO<sub>2</sub> depuis la révolution industrielle est due aux émissions anthropiques de CO<sub>2</sub>. La combustion de combustibles fossiles et le changement d'affectation des terres ont été identifiés comme les principales sources anthropiques. Ces sources émettent dans l'atmosphère 555 PgC (péta grammes de carbone) de carbone anthropique. Moins de la moitié de cette quantité (240 PgC) s'accumule dans l'atmosphère.

Le reste du carbone anthropique est absorbé par les océans et la biosphère terrestre qui constitue les "puits" de carbone, représentés dans la **Figure 1.9**. Ces puits sont dus à des processus physiques, biologiques et chimiques agissant à différentes échelles de temps et qui dépendent également de la façon dont l'excès de carbone est transformé et redistribué dans les réservoirs de puits. Le puits terrestre dues aux changements d'affectation des terres accumule 180 PgC de carbone anthropique. Un excès de CO<sub>2</sub> atmosphérique favorise la photosynthèse du CO<sub>2</sub> par les plantes, qui est stocké sous forme de biomasse végétale. La durée de vie du carbone stocké sur terre varie de quelques jours à plusieurs siècles.

L'augmentation de la concentration de CO<sub>2</sub> a entraîné une absorption de ce gaz par l'océan et donc un puits océanique pour le CO<sub>2</sub>. L'excès de ce dernier est absorbé par l'océan de surface ou transporté vers l'océan par les systèmes aquatiques (par exemple, les rivières, les eaux souterraines). Ensuite, il est enfoui dans les sédiments côtiers ou transporté vers les eaux profondes où il est stocké pendant des décennies, voire des siècles. Le carbone des profondeurs de l'océan peut dissoudre les sédiments carbonatés de l'océan pour stocker l'excès de CO<sub>2</sub> sur un intervalle de temps allant de plusieurs siècles à plusieurs millénaires. L'océan a stocké 155 PgC de carbone anthropique depuis l'ère industrielle.

Il existe un troisième puits appelé le « puits de carbone résiduel » des terres, c'est-à-dire l'absorption de CO<sub>2</sub> dans les écosystèmes et les sols à l'exclusion des effets du changement d'affectation des terres. Dans ce cas, il y a augmentation du stockage de carbone dans l'écosystème terrestre due à photosynthèse accrue et à des dépôts d'azote plus élevés, ainsi qu'à des changements climatiques favorisant les puits de carbone, tels que des saisons de croissance d'herbes plus longues aux latitudes moyennes et élevées.



**Figure 1.9:** Émissions annuelles de CO<sub>2</sub> d'origine anthropique et leur répartition entre l'atmosphère, la terre et les océans (PgC/an) de 1750 à 2011. (Haut) Les émissions de CO<sub>2</sub> des combustibles fossiles et du ciment par catégorie sont présentées. (Bas) Les émissions et puits de CO<sub>2</sub> sont représentées : les émissions des combustibles fossiles et du ciment de la partie en haut (partie grise), les émissions de CO<sub>2</sub> dues au changement net d'utilisation des terres, principalement la déforestation (partie jaune), le taux de croissance du CO<sub>2</sub> atmosphérique (partie bleu clair), le puits de CO<sub>2</sub> de l'océan (partie en bleu foncé) et le puits terrestre résiduel (partie verte) calculé à partir du résidu des autres termes, et représente le puits de CO<sub>2</sub> anthropique dans les écosystèmes terrestres naturels. Les émissions et leur répartition n'incluent que les flux qui ont changé depuis 1750, et non les flux naturels de CO<sub>2</sub>. (Source : IPCC 2013)

Le taux de croissance du CO<sub>2</sub> est la résultante de l'équilibre entre les émissions et les puits. Plusieurs observations, ont amené la communauté scientifique à en déduire que l'utilisation des combustibles fossiles et le changement d'affectation des terres sont les sources principales de l'augmentation du taux de croissance du CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère :

- La diminution observée de la teneur en oxygène de l'atmosphère au cours des deux dernières décennies, notamment dans l'hémisphère nord, sont compatibles avec l'utilisation des combustibles fossiles ;
- La plupart des émissions de CO<sub>2</sub> provenant des combustibles fossiles ont lieu dans les pays industrialisés au nord de l'équateur. En conséquence, en moyenne annuelle, les stations de mesure dans l'hémisphère nord enregistrent des concentrations de CO<sub>2</sub> plus élevées que les stations dans l'hémisphère sud, comme par exemple l'observatoire de Mauna Loa, Hawaii et celui du pôle sud.

### **1.3.1.3. Variabilités et impacts sur le vivant et la terre.**

L'exploitation des ressources naturelles par l'homme a fait augmenter la concentration de CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère de 280 ppm à l'époque préindustrielle à 390 ppm en 2011. Il n'est pas surprenant que cette grande perturbation ait des conséquences importantes sur le climat et sur le vivant. Le CO<sub>2</sub> a renforcé l'effet de serre de 1.46 W.m<sup>-2</sup> depuis l'époque préindustrielle, ce qui correspond à 55 % du forçage radiatif de tous les gaz à effet de serre et de l'ozone à la fois (*Houweling et al. 2004*). Les réponses climatiques à ce forçage, telles que les changements de température et de précipitations, se répercutent sur le cycle du carbone en influant sur les écosystèmes dans diverses zones climatiques.

La teneur en CO<sub>2</sub> de l'atmosphère est soumise aux variations temporelles et spatiales avec une variation de l'ordre de  $\pm 50$  ppm/jour. Cela est dû au fait que le matin, la photosynthèse débute et on observe une diminution de la teneur en CO<sub>2</sub>, dont on observe un minimum journalier dans l'après-midi (fin de la photosynthèse). La nuit, le niveau de CO<sub>2</sub> revient à son maximum. Une variation saisonnière est aussi observée : par exemple en été, pour l'hémisphère nord, la concentration de CO<sub>2</sub> est minimale puisque les forêts absorbent de plus en plus ce gaz (*Ciais et al. 2019*).

De nos jours, il existe un besoin croissant de réduire les émissions des gaz à effet de serre. Pour cela, une motivation politique à long terme est établie dans le cadre du protocole de Kyoto (*Oliver 2005*) sur la convention des Nations Unies sur le changement climatique, afin de réduire ces émissions. En juillet 2003, 111 pays ont rejoint ce protocole, s'engageant ainsi à réduire leurs émissions de gaz à effet de serre au cours de la période 2008-2012 d'un certain pourcentage par rapport à l'année de référence 1990. Cependant, la vérification de ces réductions, qui incluent les changements dans les réservoirs naturels de carbone, à l'échelle nationale reste très difficile.

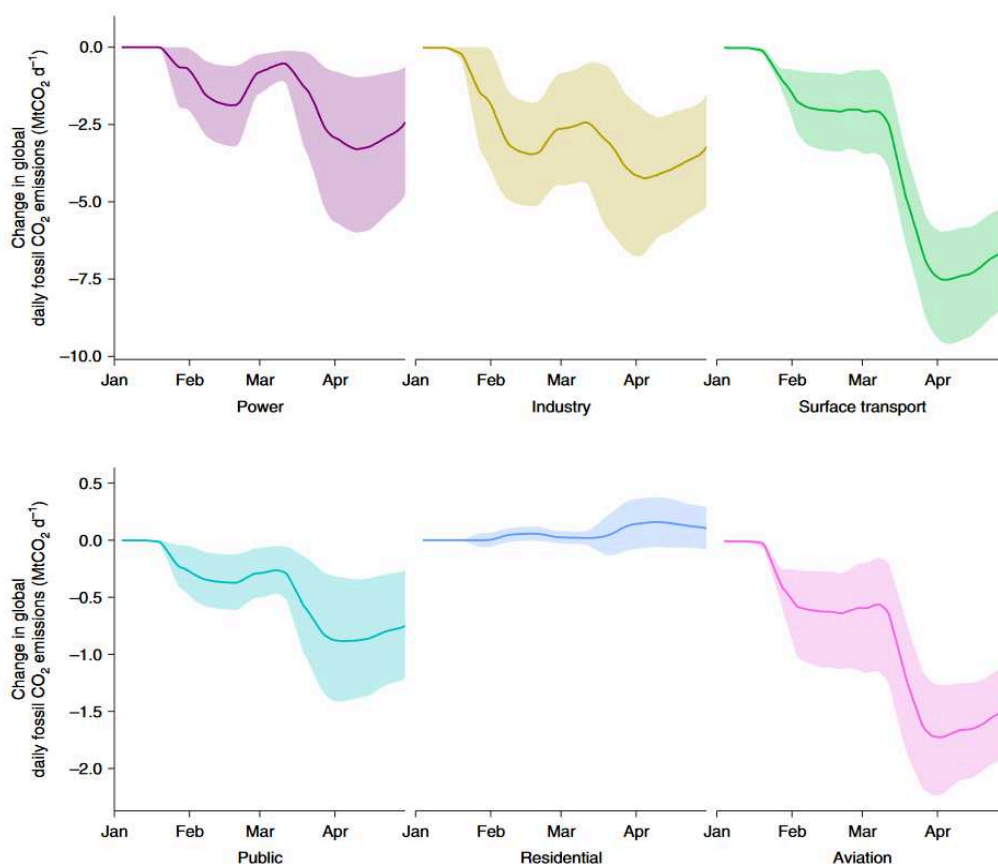
La crise financière mondiale de 2008-2009 n'a entraîné qu'une baisse de courte durée des émissions mondiales (-0,3%), avec le retour à des taux de croissance annuels élevés de 5,1% et 3,0% en 2010 et 2011, respectivement.

L'émergence du COVID-19 a été identifiée pour la première fois le 30 décembre 2019 et déclarée pandémie mondiale par l'organisation mondiale de la santé (WHO) le 11 mars 2020. A cause de sa propagation rapide, d'abord en Chine en Janvier, puis en Europe (principalement l'Italie, la France et l'Espagne) et aux États-Unis, des mesures de plus en plus strictes ont été mises en place par les gouvernements pour lutter contre ce virus. Les mesures imposées sont passées de l'isolement des individus symptomatiques à l'interdiction des rassemblements de masse, à la fermeture obligatoire des écoles et même au confinement total de la population. Ces politiques gouvernementales ont radicalement modifié la consommation de l'énergie dans le monde qui a entraîné des impacts sur les émissions de CO<sub>2</sub>, notamment celles liées aux combustibles fossiles.

Puisque les populations ont été confinées chez elles et de nombreuses frontières internationales ont été fermées, les émissions mondiales quotidiennes de CO<sub>2</sub> ont diminué de -17% au début du mois

d'avril 2020 par rapport aux niveaux moyens de 2019 (*Le Quéré et al. 2020*). Cette évolution est représentée sur la **Figure 1.10** où une diminution évidente peut être repérée sur l'émission de CO<sub>2</sub> fossile dans tous les secteurs. Pourtant, elles ne correspondent qu'au niveau des émissions de 2006. La diminution annuelle associée sera beaucoup plus faible (-4,2 à -7,5 % selon (*Le Quéré et al. 2020*)). Ces changements seront probablement temporaires, notamment après la reprise des systèmes économiques après-confinement.

(*Forster et al. 2020*) ont utilisé des analyses ascendantes (bottom-up) des tendances d'émissions qui reposent sur la collecte de divers indicateurs et statistiques liés à l'industrie de l'énergie. Ils estiment que l'effet direct de la réponse de la pandémie sera négligeable, avec un refroidissement d'environ  $0,01 \pm 0,005^{\circ}\text{C}$  d'ici 2030 par rapport à un scénario de référence qui suit les politiques internationales actuelles.



**Figure 1.10:** Évolution des émissions quotidiennes mondiales de CO<sub>2</sub> fossile par secteur (Mégatonnes de CO<sub>2</sub>/jour). Les zones ombrées représentent les fourchettes d'incertitude sur l'ensemble des estimations. Les changements sont relatifs à la moyenne annuelle des émissions quotidiennes de ces secteurs en 2019. (Source : (*Le Quéré et al. 2020*)).

### 1.3.2. Le méthane dans l'atmosphère.

Le méthane étant le deuxième GES anthropique avec une longue durée de vie comparée aux gaz traces qui est d'environ 8 à 10 ans (*Kirschke et al. 2013*). Cela indique que ce gaz a eu le temps de bien se mélanger dans la basse atmosphère entraînant de grandes incertitudes quant à la localisation et à l'intensité des sources d'émission. Environ 17 % de l'augmentation totale du forçage radiatif entre 1750 et 2010 concernant les gaz à effet de serre à longue durée de vie en l'atmosphère est due au CH<sub>4</sub>, avec un forçage radiatif de  $0.48 \text{ W.m}^{-2}$  (*IPCC 2013*).



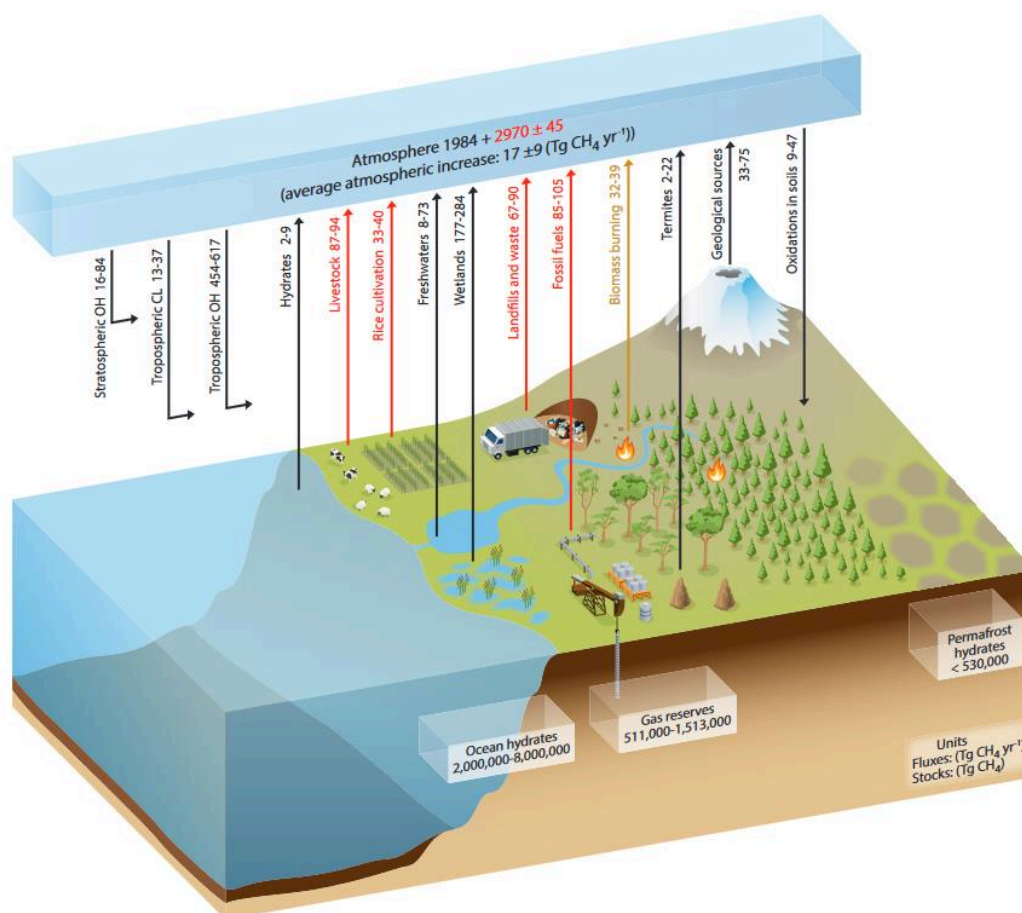
Les émissions de méthane dans le monde sont d'origine biogénique, thermogénique ou pyrogène (Neef, van Weele, and Velthoven 2010), et elles peuvent être le résultat direct d'activités humaines et/ou processus naturels. Les sources biogènes sont dues à la dégradation de la matière organique dans des conditions anaérobies (zones humides naturelles, ruminants, déchets, décharges, rizières, eaux douces, termites). Les sources thermogènes proviennent de la lente transformation de la matière organique en combustibles fossiles (gaz naturel, charbon, pétrole). Les sources pyrogènes sont dues à la combustion incomplète de la matière organique (combustion de biomasse et de biocarburants). Certaines sources peuvent éventuellement combiner une origine biogénique et une origine thermogénique (par exemple, les sources géologiques naturelles telles que les volcans de boue ou les hydrates de méthane).

Au cours des années 2000, les sources naturelles de CH<sub>4</sub> représentent 35 à 50 % des émissions mondiales moyennes. La source naturelle de CH<sub>4</sub> la plus importante est constituée par les émissions provenant des zones humides. Le terme « zones humides » désigne ici une variété d'écosystèmes émettant du CH<sub>4</sub> sous les tropiques et les hautes latitudes : sols humides, marécages et tourbières. (van Groenigen, Osenberg, and Hungate 2011) attribuent l'augmentation de ce type d'émissions à l'augmentation de l'humidité du sol due à la réduction de la demande en eau des plantes sous l'effet d'une augmentation du CO<sub>2</sub>.

Les émissions provenant de la fonte du pergélisol et des hydrates de CH<sub>4</sub> constituent une autre source naturelle de méthane qui deviendra importante au 21<sup>ème</sup> siècle, car elles pourraient augmenter considérablement en raison du réchauffement climatique rapide de l'Arctique et des grands réservoirs de carbone qui y sont stockés (Tarnocai et al. 2009). La combustion de la biomasse des forêts tropicales et boréales et la combustion traditionnelle de biocarburants (sources pyrogènes) joue un rôle beaucoup plus faible que les zones humides dans le flux global des émissions des années 2000, sauf pendant les périodes de feux intenses.

Cependant, les sources anthropiques du méthane représentent entre 50 et 65 % des émissions mondiales pour les années 2000. L'augmentation massive du nombre de ruminants, les émissions provenant de l'extraction et de l'utilisation de combustibles fossiles (mines de charbon, industries du gaz et du pétrole), l'expansion de la riziculture et les émissions provenant des décharges et le traitement des déchets sont les principales sources anthropiques de CH<sub>4</sub> (Razavi et al. 2009). En conséquence, sa concentration a été multipliée par 2,5 depuis l'époque préindustrielle, passant de 722 ppb en 1750 à 1803 ppb en 2011 et à 1900 ppb actuellement.

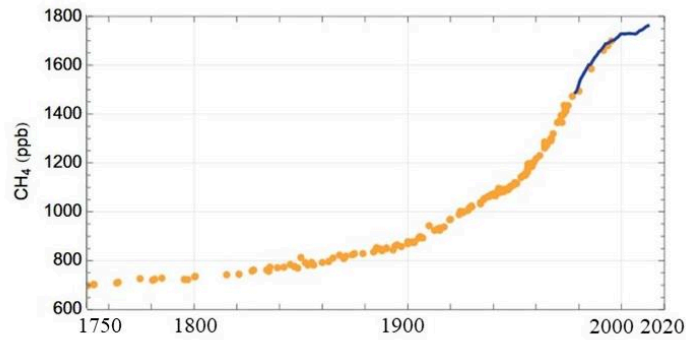
Le méthane joue un rôle clé dans les processus chimiques troposphériques et stratosphériques, où il réagit avec les radicaux OH, affectant l'oxydation atmosphérique. Cette réaction est le principal puits de CH<sub>4</sub>, contribuant à plus de 90% de sa perte totale dans la troposphère, c'est-à-dire 9% de la charge totale de CH<sub>4</sub> dans l'atmosphère (IPCC 2014). Un autre puits mineur est la réaction du CH<sub>4</sub> avec les radicaux Cl et O dans la stratosphère, ainsi que l'absorption par le sol et le transport vers la stratosphère où le méthane est rapidement détruit. La **Figure 1.11** représente le cycle global du méthane : les sources naturelles et anthropiques sont présentées par des flèches ascendantes tandis que les puits par des flèches descendantes, ainsi que les flux annuels sont indiqués en Tg(CH<sub>4</sub>)/an (teragrammes par an).



**Figure 1.11:** Schéma du cycle global du méthane. Les chiffres représentent les flux annuels en Tg(CH<sub>4</sub>) / an (terra grammes par an) et les réserves de méthane en Tg(CH<sub>4</sub>) : l'atmosphère et trois réservoirs géologiques (hydrates sur terre et dans le fond des océans et réserves de gaz) estimés pour la période 2000-2009. Les flèches noires indiquent les flux naturels depuis 1750, les flèches rouges indiquent les flux anthropiques, et la flèche de couleur marron indique un flux naturel et anthropique à la fois. (Source : IPCC 2013)

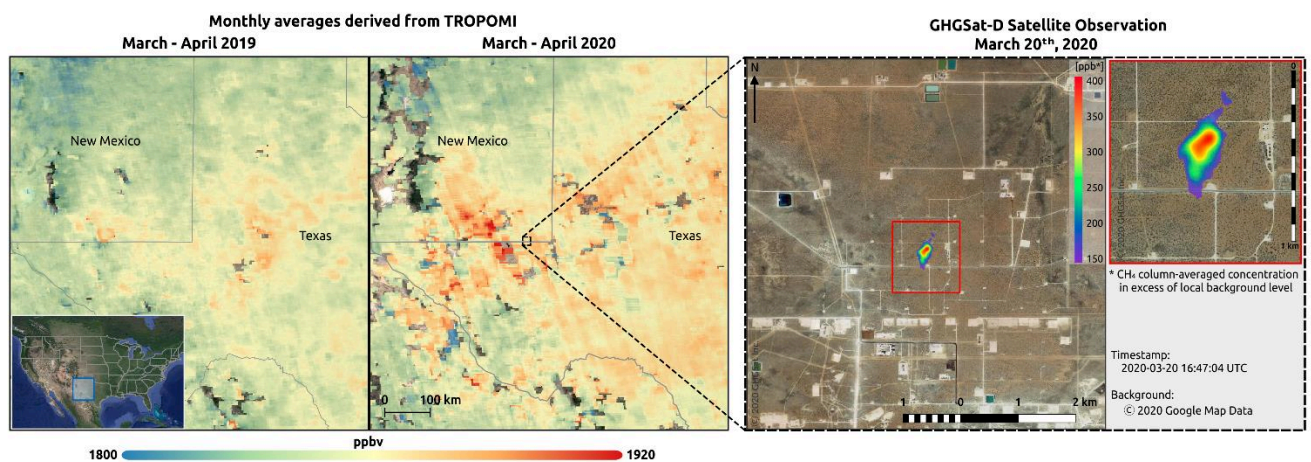
Actuellement, on observe une augmentation exponentielle de la concentration du CH<sub>4</sub> depuis l'ère industrielle comme indique la **Figure 1.12**, qui est un effet cumulatif des émissions anthropogéniques. La concentration a été stable dans les années 1999-2006 avec une nouvelle augmentation à partir de l'année 2007 (Rigby *et al.* 2008). Cela peut être expliqué par l'augmentation des émissions anthropiques, notamment la production d'énergie dans les économies asiatiques en croissance, mais aussi par l'augmentation des surfaces des zones humides. Après 2009, la croissance de la concentration de CH<sub>4</sub> s'est poursuivie avec un taux de 4 à 5 ppb/an.





**Figure 1.12:** Le changement de la concentration atmosphérique du méthane au cours de l'ère industrielle, déterminé à partir des carottes de glaces (points en jaune) et de mesures atmosphériques directes (ligne bleue). (Source : IPCC 2013)

Cependant, le satellite Sentinel-5P (voir section suivante) a mesuré une augmentation substantielle des concentrations de méthane durant la pandémie du COVID-19 par rapport à 2019, notamment sur le bassin Permien qui est la plus grande région productrice de pétrole des États-Unis. La **Figure 1.13** montre l'augmentation de cette concentration dans cette région. Cela pourrait s'expliquer par le fait qu'en raison de la baisse de la demande de gaz due au COVID-19, celui-ci est brûlé et ventilé ce qui entraîne une augmentation des émissions de méthane dans cette région.



**Figure 1.13:** L'image de gauche montre l'augmentation des concentrations de méthane dans le bassin du Permien, tandis que l'image de droite met en évidence la fuite du méthane. (Source : ESA)

Un cycle diurne peut être observé pour le méthane où la concentration de  $\text{CH}_4$  augmente durant la nuit due à l'élévation de la couche limite. Dans l'hémisphère nord, un cycle mensuel a été observé : en octobre et septembre le  $\text{CH}_4$  a une concentration maximale et en mars et avril une valeur minimale. Cela est dû à la fluctuation de la couverture végétale qui peut contribuer à réduire la concentration de méthane.

En conséquence, l'effort maintenant est d'améliorer les estimations des sources et des puits de  $\text{CO}_2$  à des échelles temporelles et spatiales diverses. Les spectres infrarouges acquis par les instruments depuis l'espace et/ou depuis le sol (niveau L1) passent par un processus d'inversion pour la quantification des colonnes totales des gaz (niveau L2) qui sont après moyennés à l'échelle globale (niveau L3), pour aboutir à une carte de flux de GES (niveau L4) qui décrit les sources d'émissions et les puits de ces gaz. Ce travail de thèse fait partie des efforts nationaux puisqu'il s'inscrit dans le cadre des projets visant à une meilleure détermination des concentrations des GES. Notre instrument CHRIS

est compact, ce qui permet d'avoir des mesures infrarouges depuis le sol à des échelles spatiales (différents endroits) et temporelles (le long d'une journée) différentes.

### **1.3.3. Estimation des flux.**

Pour pouvoir déterminer les sources et les puits de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub>, une estimation de flux doit être calculé qui attribue une anomalie à un type d'émission spécifique. Cette estimation n'est pas un problème simple d'autant plus que l'hétérogénéité spatiale et la variabilité temporelle de l'activité des sources et des puits est importante. Un ensemble de modèles suivant deux approches complémentaires sont utilisés pour l'estimation des flux.

La première approche appelée « ascendante » (bottom-up) nous permet de comprendre les mécanismes qui gouvernent les mesures de flux en répertoriant l'ensemble des phénomènes naturels contrôlant les sources et les puits au niveau local puis les extrapoler à l'échelle régionale voire globale. Elle s'appuie sur une modélisation biogéochimique, hydrologique et une connaissance des flux anthropiques à l'exclusion des émissions de combustibles fossiles. Cette méthode contient des inventaires précis des caractéristiques naturelles qui peuvent influencer les flux comme les données d'inventaire des différentes couvertures végétales, la covariance des tourbillons, ainsi que l'étude fine des conditions météorologiques affectant les différentes régions concernées. Par contre, des études statistiques de l'utilisation de l'énergie par les différents secteurs des activités humaines (cf. *Figure 1.10*) sont nécessaires pour décrire les flux liés aux activités anthropiques. La base d'inventaire des émissions anthropiques la plus connue est EDGAR (Emissions Database for Global Atmospheric Research) (*Cheewaphongphan and Chatani 2019*). Cette approche a tendance à surestimer les flux (*IPCC 2013*).

La deuxième approche appelée « descendante » ou inverse (top-down) repose sur la mesure des rapports de mélange atmosphérique des gaz à effet de serre pour inférer les sources et les puits à la surface. Dans la section 1.3.1.3, une explication rapide de cette méthode pour estimer le flux de CO<sub>2</sub> a été présenté. Cette approche relie les observations atmosphériques aux émissions à la surface par le biais de modèles de chimie et de transport atmosphérique. En partant d'une connaissance a priori des flux, la variabilité des constituants atmosphériques est restituée suivant quatre dimensions (latitude, longitude, altitude et temps). Ces modèles sont fondés sur des équations physiques décrivant les processus atmosphériques qui interagissent avec les gaz émis à la surface. Ces équations passent par un processus itératif afin de déterminer les flux optimisés qui permettent un accord optimal entre les concentrations observées et celles restituées.

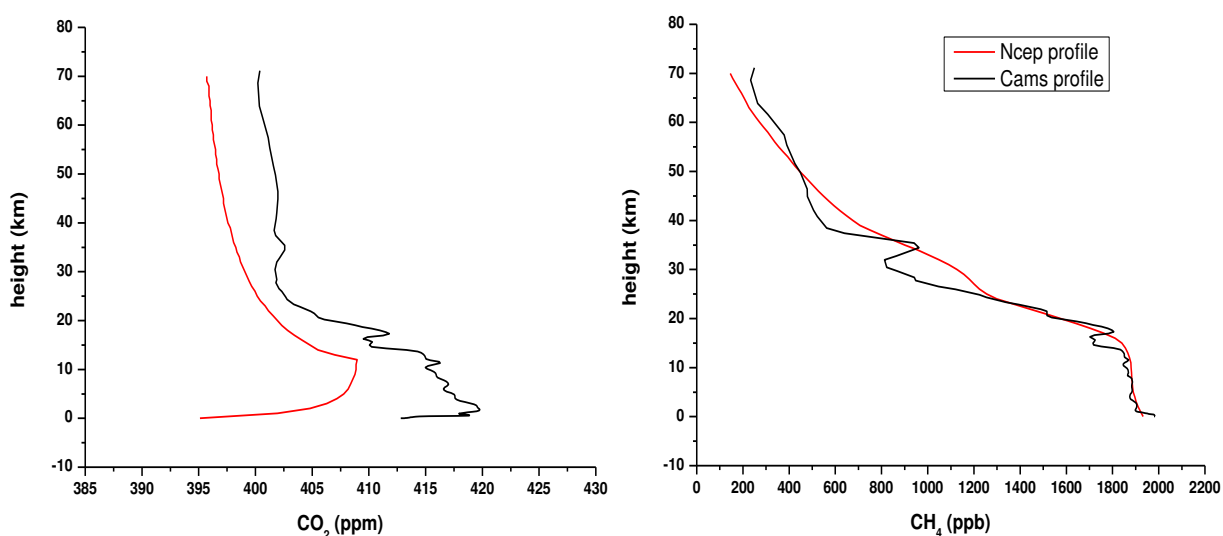
En 2013, l'IPCC a fourni pour la première fois, dans son rapport AR5, une synthèse cohérente du bilan de CH<sub>4</sub> par décennie en utilisant de multiples modèles d'inversion du CH<sub>4</sub> atmosphérique et des approches ascendantes pour attribuer des bilans décennaires aux différents processus émettant du CH<sub>4</sub>. L'approche inverse fournit une contrainte atmosphérique principalement pour la source totale de CH<sub>4</sub> par région, et l'utilisation d'observations supplémentaires (par exemple, les isotopes) permet de déduire les émissions par type de source. Ceci étant, de grandes incertitudes subsistent dans la connaissance actuelle du bilan et de son évolution dans le temps.

Dans le cadre de cette thèse, la modélisation inverse est l'approche utilisée puisqu'elle repose sur des observations atmosphériques multiples. Le dioxyde de carbone, ainsi que le méthane, sont actuellement mesurés par plusieurs types d'instruments à bord de satellite, d'avion ou depuis le sol à l'aide d'instruments de spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier (FTIR) installés dans des réseaux internationaux. Ces différents instruments sont expliqués en détails dans la section suivante.

Le CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub> possèdent une durée de vie assez longue (100 et 10 ans respectivement) donc ils ont le temps de bien se mélanger dans l'atmosphère. En effet, le modèle standard américain (1976), mentionné dans la section 1.1.1, déclare que les concentrations du dioxyde de carbone et du méthane sont constantes (330 ppm et 1700 ppb respectivement) sur la colonne verticale de l'atmosphère (de 0 à 120 km). Toutefois, avec le développement des observations atmosphériques et des outils informatiques, les profils de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> peuvent être maintenant mesurés avec précision. Les deux profils CAMS (Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS)) et NCEP (National Centers for Environmental Prediction) sont illustrés ici pour les comparer avec le modèle standard.

Les profils CAMS sont exploités par l'ECMWF (European Center for Medium-Range Weather), qui fournit des données d'analyse et de prévision en temps quasi réel (*Inness et al. 2019*), ainsi que des données de réanalyse mondiale de la composition de l'atmosphère. Les profils NCEP sont dérivés d'un modèle climatique qui a été initialisé avec une grande variété d'observations météorologiques : navires, avions, données de stations et observations par satellite. L'ensemble de données est maintenu à jour grâce à des observations en temps quasi réel.

La **Figure 1.14** montre les profils de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> pour une journée à Aire-sur-l'Adour qui seront détaillés dans le Chapitre 5. On peut remarquer que les concentrations ne sont pas constantes sur la colonne verticale, d'où l'intérêt de l'instrumentation depuis le sol pour fournir des mesures locales. En plus, la structure verticale de ces profils montre que ces gaz ne sont pas mélangés dans la couche limite.



*Figure 1.14: Les profils NCEP et CAMS du CO<sub>2</sub> (gauche) et CH<sub>4</sub> (droite) sur la verticale atmosphérique.*

## 1.4. Mesures pour les gaz à effet de serre.

Les activités humaines ont fortement impacté la variabilité des concentrations des gaz à effet de serre, ce qui a motivé la communauté internationale à mieux comprendre l'origine de ces émissions. Afin d'obtenir une information suffisante sur la nature (origine/puits) de ces gaz, différents techniques de mesure ont été conçues. Pour cela, on explique dans cette section les différents types de mesures déployés pour l'étude du CO<sub>2</sub> et du CH<sub>4</sub> afin de mieux comprendre leurs répartitions spatiale et temporelle.

### 1.4.1. Mesures in-situ.

La détection in-situ peut être définie comme une méthodologie utilisée pour acquérir des informations sur une source à proximité du capteur, ou encore nommée "détection en place". Dans notre contexte, la méthode de mesure in-situ est utilisée pour quantifier les émissions des gaz à effet de serre, notamment le CO<sub>2</sub>, provenant de sources localisées (Ciais *et al.* 2015), ainsi que pour valider les données obtenues par télédétection (Krings *et al.* 2018). Il faut bien noter que ce type de mesure peut être effectué depuis le sol, à bord d'un ballon troposphérique ou stratosphérique et utilisé dans des mesures aéroportées. Plusieurs instruments in-situ sont déployés dans le monde, mais on présente ici deux techniques fréquemment utilisées dans la communauté française : le Picarro et le Spirit.

Le Picarro est un instrument commercial basé sur la méthode appelée « wavelength-scanned cavity ring down spectroscopy (WS-CRDS) » et développée par Picarro Inc. (Santa Clara, Californie, Etats Unis). Cette cavité utilise un moniteur de longueur d'onde breveté qui règle activement le laser sur des longueurs d'onde absolues avec une grande précision. En ciblant plusieurs longueurs d'onde, une raie d'absorption moléculaire entière est balayée ce qui augmente la précision des mesures.

Un des analyseurs les plus utilisés est le modèle G2401m (voir **Figure 1.15**) qui permet de mesurer le CO<sub>2</sub>, le CH<sub>4</sub>, le CO et la vapeur d'eau en utilisant un laser proche infrarouge. Cet instrument permet de mesurer la concentration du gaz cible avec une haute précision et une très faible sensibilité aux molécules interférentes. Le gaz circule dans une cavité de mesure optique dont la longueur de trajet effective peut atteindre 20 kilomètres. Ainsi, l'analyseur conserve une linéarité, une précision et une exactitude élevées dans des conditions environnementales changeantes, avec une procédure de calibration minimale requise.

Galkowski *et al.* 2020 présente les résultats obtenus avec cet instrument durant la campagne CoMet 1.0 (Carbon dioxide and Methane mission). Ce modèle est aussi utilisé à bord de l'avion Falcon20 de SAFIRE (Service des Avions Français Instrumentés pour la Recherche en Environnement) dans les campagnes MAGIC, ainsi que d'autres modèles utilisés pour interpréter la colonne d'air capturée par l'Aircore (Karion *et al.* 2010) discuté en détails dans le Chapitre 5.

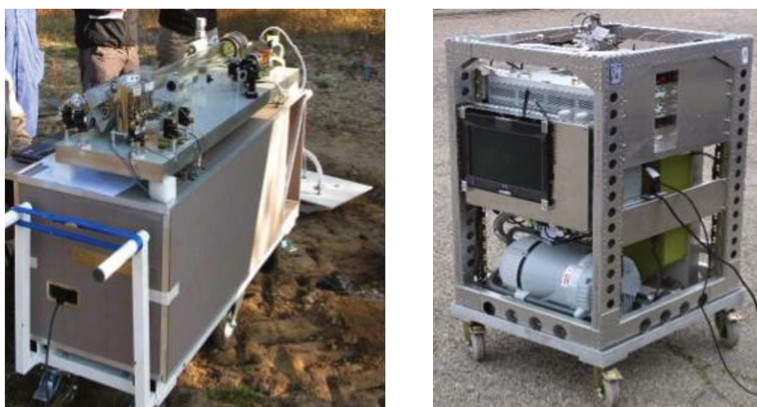


**Figure 1.15:** Une vue globale de l'analyseur G2401m utilisé pour la mesure du dioxyde de carbone, le méthane, le monoxyde de carbone et la vapeur d'eau (Source : NASA/airborne science).



SPIRIT est une série de Spectromètres Infra-Rouges In situ Troposphérique développée par le LPC2E pour la mesure des gaz traces. Cet instrument est décrit en détails dans (Catoire *et al.* 2017). Ce spectromètre utilise des lasers à cascade quantique (QCL) fonctionnant à une température proche de l'ambiante ayant une meilleure qualité spectrale que les diodes lasers classiques. Les faisceaux infrarouges des QCL sont absorbés par les constituants de l'air ambiant échantillonnés dans une cellule multi-passage (83,88 m de trajet optique) à pression réduite (33 hPa), et détectés à l'aide d'un détecteur MCT refroidi. Par conséquent, les raies rovibrationnelles fondamentales fortes sont mesurées avec un temps de scan rapide (1.6s) et une haute résolution spectrale de l'ordre de  $10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ . L'abondance totale des molécules est déduite à partir d'un logiciel développé par le même laboratoire utilisant la base de données HITRAN 2012 (Rothman *et al.* 2013) avec une précision de 0,3 ppb pour le CO.

Ces spectromètres laser à haute résolution spectrale, sont bien évidemment transportables et peuvent être exploités dans différentes versions, notamment depuis le sol ou sur avion ou encore sur ballons. Ils sont utilisés principalement durant les campagnes de mesure sur des ballons stratosphériques (BSO). Le SPIRIT sol (*Figure 1.16a*) a pour objectif les mesures de N<sub>2</sub>O et de CH<sub>4</sub>, et SPIRIT avion (*Figure 1.16b*) installé à bord le Falcon20 pour la mesure de N<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>, H<sub>2</sub>O, CO, NO<sub>2</sub>, NH<sub>3</sub>.



*Figure 1.16: Les différents instruments : SPIRIT sol (gauche) et SPIRIT avion (droite). (Source : LPC2E)*

#### **1.4.2. Téledétection.**

Les techniques de téledétection ont gagné beaucoup de popularité au cours des dernières décennies en raison du besoin croissant de surveillance continue de l'atmosphère. Les gaz à effet de serre et les gaz traces ainsi que les nuages et les aérosols sont détectés et leurs propriétés physiques restitués, améliorant ainsi notre compréhension de la chimie, de la physique et de la dynamique de l'atmosphère. Dans cette section, on explique les méthodes active et passive de la téledétection pour aboutir à l'introduction de notre instrument.

##### **1.4.2.1. Téledétection active.**

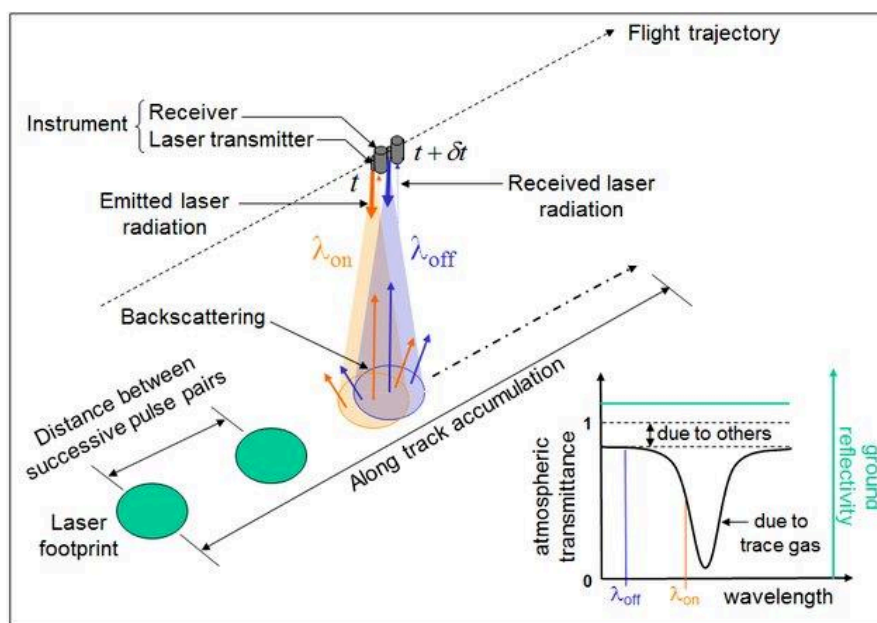
Le lidar (Light Detection And Ranging) est une classe d'instruments qui utilise la technique de téledétection active par un faisceau laser pour étudier, entre autres, les gaz atmosphériques, les aérosols et les nuages. Cette technique peut être employée depuis le sol, sur un avion et sur satellite. Le faisceau laser collimaté est envoyé vers l'atmosphère, dont une partie du rayonnement transmis est diffusé par les composants atmosphériques et revient au lidar pour être recueilli par un télescope (Weitkamp 2005). Cette technique est utilisée sur le satellite CALIPSO (Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation) (Winker *et al.* 2010) à bord de la plateforme CALIOP qui a pour objectif l'étude

du transport et l'interaction des aérosols dans l'atmosphère pour aider à concevoir des stratégies de limitation de la pollution et pour améliorer les prévisions de conditions de qualité de l'air.

Le lidar contribue également de manière significative à la validation des mesures satellitaires (Siva Kumar, Rao, and Krishnaiah 2003). Au LOA, un lidar multi-longueur d'onde-Raman, appelé LILAS, est utilisé pour détailler plus finement les propriétés des aérosols, mais aussi pour déterminer un profil du rapport de mélange de fond de  $\text{CH}_4$  dans la basse troposphère (Veselovskii et al. 2019).

Dans le réseau NDACC, plus de trente instruments lidar basés au sol sont déployés dans le monde pour surveiller l'ozone atmosphérique, la température, les aérosols, la vapeur d'eau et les nuages stratosphériques polaires. L'un des lidars avion les plus utilisés dans la communauté française, notamment dans le projet MAGIC, est le lidar CHARM-F ( $\text{CO}_2$  and  $\text{CH}_4$  remote monitoring-Flugzeug) de l'agence spatiale allemande (DLR). Cet instrument a pour objectif la mesure des fractions molaires des colonnes d'air sec  $\text{XCO}_2$  et  $\text{XCH}_4$  dans l'atmosphère. Ce lidar mesure la lumière diffusée et réfléchiée par la surface de la terre et le sommet des nuages qui sont éclairés par deux impulsions laser de longueurs d'onde légèrement différentes, appelées  $\lambda_{\text{on}}$  et  $\lambda_{\text{off}}$ .

CHARM-F servira également comme démonstrateur technologique pour MERLIN (Methane Remote Sensing Lidar Mission) qui est un projet spatial conjointement développer par le DLR et le CNES, dont le lancement est prévu en 2024 (Wührer et al. 2019). Cette décision a été actée le 8 décembre 2015 au Bourget, dans le cadre de la COP21. Un schéma de principe est illustré dans la **Figure 1.17**. Sa mission est de mesurer avec précision la concentration de méthane dans l'atmosphère pour permettre une caractérisation des différentes sources d'émission, qu'elles soient d'origines naturelle ou anthropique. Ces sources jouent un rôle déterminant dans le réchauffement global ainsi que leur variation constitue un enjeu majeur dans la compréhension de la machine climatique.



**Figure 1.17:** Schéma d'une mesure du satellite MERLIN. Ce lidar utilise la petite fraction du rayonnement laser émis qui est réfléchi par une cible "dure" (surface de la Terre ou sommet d'un nuage) vers le récepteur de l'instrument, puis convertie en signaux électriques par un photodétecteur. Les signaux des impulsions en ligne ( $\lambda_{\text{on}}$ ) et hors ligne ( $\lambda_{\text{off}}$ ) sont numérisés et corrigés en fonction de l'énergie des impulsions laser émises qui sont contrôlées dans l'instrument. Ces paires d'impulsions sont accumulées le long du trajet au sol de l'instrument pour augmenter la précision des mesures. La contribution des facteurs autres que le gaz trace est généralement constante à l'échelle spectrale, comme le montrent les lignes en pointillés dans le coin droit. (Source : (Ehret et al. 2017))

#### **1.4.2.2. Télédétection passive.**

La télédétection passive, contrairement à la télédétection active, capte des rayonnements émis naturellement par le milieu sondé. La majorité des plateformes satellitaires en orbite contiennent des instruments à voix passive effectuant des observations à l'échelle globale. Plusieurs paramètres caractérisent les plateformes satellitaires quel que soit leur type d'orbite ou domaine d'applications définis ci-après :

- Trace au sol : ensemble des points à la surface, situés à la verticale du satellite ;
- Cycle orbital : nombre de révolutions accomplies par un satellite autour du globe pour se retrouver au-dessus de son point de départ ;
- Période de revisite : c'est la période nécessaire pour que l'instrument embarqué sur la plateforme satellitaire observe de nouveau un même point de la surface du globe ;
- IFOV (Instantaneous Field Of View) : c'est l'angle solide (mrad) avec lequel le détecteur de l'instrument est sensible au rayonnement électromagnétique ce qui sert à définir la résolution spatiale de l'instrument.

Plusieurs instruments infrarouges existant ont pour objectifs l'étude du cycle de carbone, ses origines et ses puits ainsi que le suivi continu des gaz à effet de serre primaires : le CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub>. Ces instruments ont surtout l'avantage de pouvoir fournir des mesures spatiales plus étendues que celles obtenues depuis le sol.

Quelques instruments satellitaires actuels et futurs ainsi que leurs paramètres sont présentés dans le **Tableau 1.1**. Dans ce tableau, on peut distinguer trois grandes familles, dont chacune a ses avantages et ses inconvénients. La première étant la mode de visée au limbe comme ACE-FTS qui a une discrétisation verticale très fine y compris à haute altitude, mais il possède une couverture spatiale très faible. Les instruments utilisant le mode de visée nadir dans la partie thermique de l'infrarouge sont par exemple AIRS, IASI/IASI-NG et TANSO-FTS. Cette famille d'instruments fournit des mesures de jour comme de nuit sur la surface des terres et des océans, avec une revisite pouvant aller jusqu'à deux ou trois fois par jour, permettant ainsi une surveillance journalière des variations des GES. Cependant, ces derniers souffrent d'une faible résolution spatiale et d'une sensibilité verticale limitée. La troisième famille dans ce tableau concerne les instruments qui utilisent le mode de visée au nadir mais dans la partie SWIR de l'infrarouge, comme OCO-2 et -3, ainsi que la deuxième partie du spectre de TANSO-FTS, et le futur satellite Microcarb. Ces instruments captent la lumière réfléchiée par la surface ce qui donne une meilleure résolution verticale et une meilleure sensibilité dans les basses couches atmosphériques. Par contre, la résolution spatiale reste modeste avec une faible sensibilité dans la couche limite. De plus, ce type d'observations n'est pas adapté aux mesures de nuit et au-dessus des mers.

<b>Instruments/Plateformes</b>	<b>Dates de lancement</b>	<b>Domaine spectral (cm<sup>-1</sup>)</b>	<b>Période de revisite (jours)</b>	<b>Références</b>
ACE-FTS sur SCISAT-1	Aout 2003	750-4400		(Boone et al. 2004)
AIRS sur Aqua	Mai 2002	650-2665	1	(Aumann et al. 2003)
HIRDLS sur Aura	Juillet 2004	575-1608	16	(Gille et al. 2008)
IASI sur Metop A/B/C	Octobre 2006	645-2760	1	(Clerbaux et al. 2002)
OCO-2	Juillet 2014	CO <sub>2</sub> : 6146-6273, 4790-4894	16	(Crisp 2011)
OCO-3 sur ISS	Mai 2019	CO <sub>2</sub> : 6146-6273, 4790-4894	3	NASA/JPL
TROPOMI/ Sentinel-5P	Octobre 2017	4184-4329	1	ESA/Sentinel-5
TANSO-FTS sur GOSAT	Janvier 2009	700-1800, 4800-13200	3	(Suto et al. 2006)
TanSat/CarbonSat	Décembre 2016	4854, 6211	<16	(Liu et al. 2014)
IASI-NG sur Metop-SG	Prévu pour 2022	645-2760	1	(C Crevoisier et al. 2014)
Microcarb sur Myriade	Prévu pour 2022	4800-6250	25	CNES
CO2M sur Sentinel 7	Prévu pour 2025	12936-13386; 5970-6289 ; 4773-5025	10-12.5	ESA

**Tableau 1.1:** Missions spatiales actuelles et futures pour le suivi des gaz à effet de serre.



Les mesures depuis l'espace s'effectuent à partir des instruments performants pour pallier aux manques de répartition géographique des mesures de référence depuis le sol. Cependant, les mesures sols ont une meilleure résolution spectrale et un meilleur rapport signal sur bruit (SNR). Pour cela, ils servent à la validation satellitaire et complètent les observations depuis l'espace et sont ainsi regroupés dans des réseaux internationaux. Ces derniers fournissent des informations plus précises notamment sur la couche limite, mais aussi sur les espèces de courte durée de vie qui restent dans les basses couches et qui sont difficiles à détecter depuis l'espace.

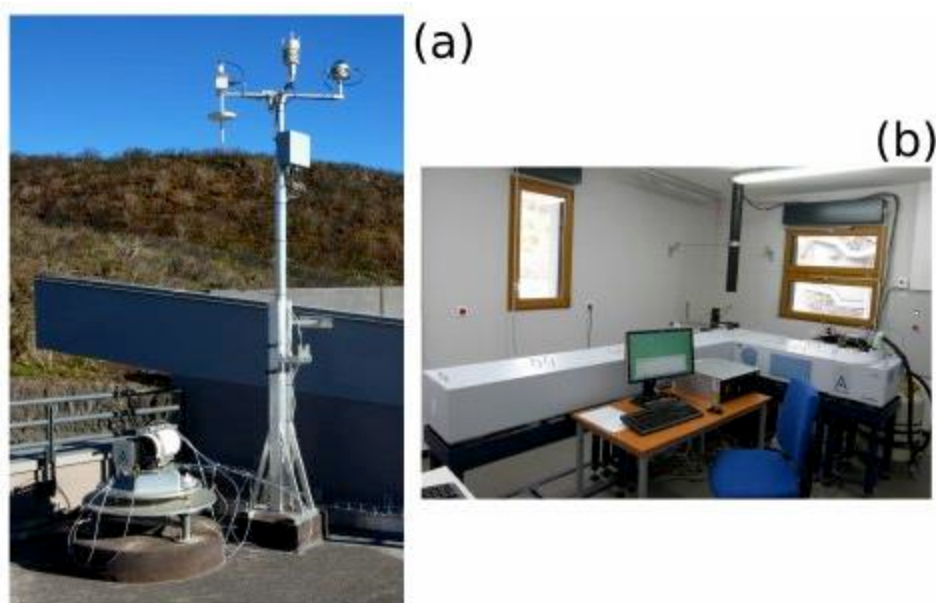
Les mesures sols sont regroupées majoritairement dans deux réseaux internationaux NDACC (network for the detection of atmospheric composition change, <https://www.ndsc.ncep.noaa.gov/>) et TCCON (total carbon column observing network, <https://tccondata.org/>) équipés de spectromètres à transformée de Fourier (FTIR).

Le réseau TCCON comprend un peu plus de 20 stations de mesures (voir **Figure 1.18**) qui ont pour objectif la mesure précise des colonnes totales de CO<sub>2</sub>, CO, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, H<sub>2</sub>O, HF et autres gaz (D. Wunch et al. 2010) afin de valider les missions spatiales. Les instruments TCCON mesurent l'absorption de la lumière solaire directe par les gaz atmosphériques dans la région spectrale du proche infrarouge (NIR). Ce réseau a effectué des mesures durant la campagne MAGIC dont les résultats seront décrits dans le Chapitre 4.



**Figure 1.18:** Carte mondiale regroupant les différentes stations de mesures au sol du réseau TCCON (<https://tccon-wiki.caltech.edu>).

L'un des FTIR de haute précision le plus répandu est l'IFS125HR de Bruker™ avec plus de 30 instruments actuellement déployés dans le monde au sein des deux réseaux mentionnés. Cet instrument particulier (voir **Figure 1.19**) a une grande différence de chemin optique, donc une très haute résolution spectrale ( $0,02$  et  $5 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$  pour les réseaux TCCON et NDACC, respectivement). Cette dernière est au détriment de la taille de l'instrument qui est de  $2\text{m} \times 1\text{m} \times 3\text{m}$  et une masse de plusieurs centaines de kg.



**Figure 1.19:** (a) Le tracker solaire et la station météorologique de l'instrument FTIR à l'observatoire de Maïdo sur l'île de la Réunion. (b) Le spectromètre infrarouge à haute résolution spectrale (IFS125HR) se trouve dans la pièce en dessous du tracker (Baray et al. 2013).

Cependant, ce spectromètre n'est pas adapté aux campagnes de terrain à cause de son grand encombrement et la nécessité d'avoir un personnel qualifié sur place, ce qui limite l'extension au sol des mesures atmosphériques. Plusieurs projets ont été mis en œuvre afin de répondre à ces limitations.

Une alternative est le nouveau IFS125M de Bruker (Pathakoti et al. 2019), qui est la version mobile du spectromètre IFS125HR. Il est identique au IFS125HR, mais il est plus léger et peut être monté et démonté plus facilement, notamment durant les campagnes de mesure. L'IFS125M utilise des miroirs paraboliques à  $60^\circ$  sur les axes, qui sont plus difficiles à aligner. Ce spectromètre offre une haute résolution spectrale, mais il a encore une longueur d'environ 2m et il doit être aligné de manière laborieuse après chaque transport.

Une autre solution consiste à utiliser des instruments plus compacts de moyenne à basse résolution qui sont en cours d'étude, tels qu'un spectromètre à réseau ( $0,16\text{ cm}^{-1}$ ), un interféromètre Fabry-Pérot à fibre (deux configurations présentées dans Kobayashi et al. 2010) et l'IFS66 de Bruker ( $0,11\text{ cm}^{-1}$ ) décrit dans Petri et al. 2012.

L'EM27/SUN est le premier instrument à offrir un spectromètre compact, optiquement stable, transportable (Gisi et al. 2012) avec un rapport signal/bruit (SNR) élevé et qui fonctionne dans la région infrarouge à courte longueur d'onde connu sous le nom SWIR (short-wave infrared region). L'Equinox 55 est un instrument de Bruker qui combine les avantages de la haute résolution de l'IFS66 et la grande stabilité de l'EM27/SUN. Il offre une très grande stabilité par rapport aux perturbations thermiques et mécaniques avec une résolution de  $0,26\text{ cm}^{-1}$  (Petri 2017).

L'EM27/SUN est comparé à un IFS125HR colocalisé du réseau TCCON qui confirme sa stabilité sur des périodes de plusieurs années. Grâce à cette stabilité à long terme de l'EM27/SUN et son efficacité à mesurer les GES, il a été décidé de former un réseau de collaboration pour l'observation de la colonne de carbone COCCON (Frey et al. 2019). Ce dernier deviendra un complément utile au réseau TCCON dans les régions reculées. L'un des principaux objectifs de COCCON est de fournir des services de mesures de performance et de qualité aux EM27/SUN à l'Institut de technologie de Karlsruhe (KIT).

Un prototype appelé CHRIS (Compact High-Spectral-Resolution Infrared Spectrometer), a été conçu pour répondre à des caractéristiques très spécifiques : une haute résolution spectrale ( $0,135\text{ cm}^{-1}$ , meilleure que celle de TANSO-FTS et du futur IASI-NG) et une large gamme spectrale ( $680\text{-}5200\text{ cm}^{-1}$ ) pour couvrir les bandes infrarouges des satellites actuels et futures et optimiser la quantité des espèces mesurées. En outre, ce prototype est transportable et peut fonctionner pendant plusieurs heures sur batterie ( $>12\text{ h}$ ), ce qui le rend adapté aux campagnes de terrain. Avec ce prototype, toutes les régions spectrales de l'infrarouge sont maintenant couvertes soit par l'IFS125HR des réseaux NDACC et TCCON, soit par l'EM27/SUN et CHRIS pour aboutir à une amélioration significative de la restitution lorsque la synergie TIR/NIR/SWIR est utilisée. En plus, CHRIS a pour objectif la comparaison des concentrations des gaz traces à ceux obtenues par les instruments satellitaires comme IASI-NG.

Tous ces efforts rentrent dans la perspective de pouvoir utiliser les mesures des gaz à effet de serre pour l'évaluation des réductions d'émissions telles que spécifiées par les traités internationaux, dont le protocole de Kyoto et l'accord de Paris, et une meilleure compréhension de la machine climatique.

## **1.5. Conclusion.**

Ce chapitre a rappelé l'état actuel de la compréhension scientifique du système climatique ainsi que la composition physico-chimique de l'atmosphère dans les deux premières parties. Ensuite, les deux principaux gaz à effet de serre (GES) d'origine anthropique ( $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ ) sont discutés dans la troisième partie de ce chapitre, en fonction de leurs origines, source, puits et variabilités dans l'atmosphère terrestre.

Pour comprendre les procédés mentionnés ci-dessus, l'observation de l'atmosphère terrestre est essentielle, notamment pour surveiller l'évolution de la concentration des gaz à effets de serre. Dans ce contexte, des initiatives environnementales ont été mises en place pour lutter contre l'augmentation de la concentration des GES. C'est pourquoi les différents types d'instruments (passifs et actifs) ainsi que les différentes méthodes, notamment les plateformes satellitaires et les mesures depuis le sol, ont été présentées dans la quatrième partie de ce chapitre.

En outre, il est indispensable de développer de nouvelles techniques instrumentales plus sensibles afin d'avoir des spectres mieux résolus et ainsi valider les données satellitaires et d'observer l'évolution de la composition atmosphérique de manière routinière à long terme. De plus, on a présenté dans cette partie les synergies instrumentales employées pour sonder l'atmosphère afin d'en déduire le maximum d'informations (structure verticale, étude simultanée de plusieurs gaz traces, comparaison des signatures dans différents domaines spectraux).

Avant de discuter les résultats obtenus dans ce travail, nous rappelons, dans le chapitre suivant, les notions de bases de la spectroscopie et le principe de telles mesures.



## **Bibliographie :**

- Aumann, H, M T Chahine, Catherine Gautier, Mitch Goldberg, Eugenia Kalnay, L M McMillin, Henry Revercomb, et al. 2003. "AIRS/AMSU/HSB on the Aqua Mission: Design, Science Objective, Data Products, and Processing Systems." *Geoscience and Remote Sensing, IEEE Transactions On* 41 (March): 253–64. <https://doi.org/10.1109/TGRS.2002.808356>.
- Baray, J, Y Courcoux, Philippe Keckhut, Thierry Portafaix, Pierre Tulet, J.-P Cammas, Alain Hauchecorne, et al. 2013. "Maïdo Observatory: A New High-Altitude Station Facility at Reunion Island (21 S, 55 E) for Long-Term Atmospheric Remote Sensing and in Situ Measurements." *Atmospheric Measurement Techniques* 6 (October): 2865–77. <https://doi.org/10.5194/amt-6-2865-2013>.
- Boone, Christopher D, Kaley A Walker, Sean D McLeod, Ray Nassar, and Peter F Bernath. 2004. "Atmospheric Chemistry Experiment (ACE): Mission Overview and Early Results." In *Proc.SPIE*. Vol. 5584. <https://doi.org/10.1117/12.579945>.
- Catling, David C, and Kevin J Zahnle. 2009. "The Planetary Air Leak." *Planetary Science*.
- Catoire, Valéry, Claude Robert, Michel Chartier, Patrick Jacquet, Christophe Guimbaud, and Gisèle Krysztofiak. 2017. "The SPIRIT Airborne Instrument: A Three-Channel Infrared Absorption Spectrometer with Quantum Cascade Lasers for in Situ Atmospheric Trace-Gas Measurements." *Applied Physics B* 123 (9): 244. <https://doi.org/10.1007/s00340-017-6820-x>.
- Cheewaphongphan, Penwadee, and Satoru Chatani. 2019. "Exploring Gaps between Bottom-Up and Top-Down Emission Estimates Based on Uncertainties in Multiple Emission Inventories : A Case Study on CH 4 Emissions in China." <https://doi.org/10.3390/su11072054>.
- Ciais, P, J Tan, X Wang, C Roedenbeck, F Chevallier, S.-L. Piao, R Moriarty, et al. 2019. "Five Decades of Northern Land Carbon Uptake Revealed by the Interhemispheric CO<sub>2</sub> Gradient." *Nature* 568 (7751): 221–25. <https://doi.org/10.1038/s41586-019-1078-6>.
- Ciais, Philippe, David Crisp, Hugo Denier van der Gon, Richard Engelen, Greet Janssens-Maenhout, Martin Heimann, Peter Rayner, and Marko Scholze. 2015. "Towards a European Operational Observing System to Monitor Fossil CO<sub>2</sub> Emissions, Final Report from the Expert Group." *European Commission*.
- Clerbaux, Cathy, Juliette Hadji-Lazaro, Sébastien Payan, Claude Camy-Peyret, Jinxue Wang, David P Edwards, and Ming Luo. 2002. "Retrieval of CO from Nadir Remote-Sensing Measurements in the Infrared by Use of Four Different Inversion Algorithms." *Applied Optics* 41 (33): 7068–78. <https://doi.org/10.1364/AO.41.007068>.
- Crevoisier, C, C Clerbaux, V Guidard, T Phulpin, R Armante, B Barret, C Camy-Peyret, et al. 2014. "Towards IASI-New Generation (IASI-NG): Impact of Improved Spectral Resolution and Radiometric Noise on the Retrieval of Thermodynamic, Chemistry and Climate Variables." *Atmos. Meas. Tech.* 7 (12): 4367–85. <https://doi.org/10.5194/amt-7-4367-2014>.
- Crisp, David. 2011. "Measuring Atmospheric Carbon Dioxide from Space: The GOSAT and OCO-2 Missions." *Optics InfoBase Conference Papers* 2. <https://doi.org/10.1364/e2.2011.ewc6>.
- Ehret, Gerhard, Philippe Bousquet, Clemence Pierangelo, Matthias Alpers, Bruno Millet, James Abshire, Heinrich Bovensmann, et al. 2017. "MERLIN: A French-German Space Lidar Mission Dedicated to Atmospheric Methane." *Remote Sensing* 9 (October): 1052. <https://doi.org/10.3390/rs9101052>.

- Forster, Piers M, Harriet I Forster, Mat J Evans, Matthew J Gidden, Chris D Jones, Christoph A Keller, Robin D Lamboll, et al. 2020. “Current and Future Global Climate Impacts Resulting from COVID-19.” *Nature Climate Change* 10 (10): 913–19. <https://doi.org/10.1038/s41558-020-0883-0>.
- Foucher, P. Y., A. Chédin, R. Armante, C. Boone, C. Crevoisier, and P. Bernath. 2011. “Carbon Dioxide Atmospheric Vertical Profiles Retrieved from Space Observation Using ACE-FTS Solar Occultation Instrument.” *Atmospheric Chemistry and Physics* 11 (6): 2455–70. <https://doi.org/10.5194/acp-11-2455-2011>.
- Frey, M, M K Sha, F Hase, M Kiel, T Blumenstock, R Harig, G Surawicz, et al. 2019. “Building the COLlaborative Carbon Column Observing Network (COCCON): Long-Term Stability and Ensemble Performance of the EM27/SUN Fourier Transform Spectrometer.” *Atmos. Meas. Tech.* 12 (3): 1513–30. <https://doi.org/10.5194/amt-12-1513-2019>.
- Gałkowski, Michał, Armin Jordan, Michael Rothe, Julia Marshall, Frank-thomas Koch, Jinxuan Chen, Anna Agusti-panareda, Andreas Fix, and Christoph Gerbig. 2020. “In Situ Observations of Greenhouse Gases over Europe during the CoMet 1.0 Campaign Aboard the HALO Aircraft.” *Atmospheric Measurement Techniques Discussions* 7 (August): 1–29. <https://doi.org/10.5194/amt-2020-287>.
- Gille, John, John Barnett, Philip Arter, Marion Barker, Peter Bernath, Chris Boone, Charles Cavanaugh, et al. 2008. “High Resolution Dynamics Limb Sounder: Experiment Overview, Recovery, and Validation of Initial Temperature Data.” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 113 (D16). <https://doi.org/10.1029/2007JD008824>.
- Gisi, M., F. Hase, S. Dohe, T. Blumenstock, A. Simon, and A. Keens. 2012. “XCO<sub>2</sub>-Measurements with a Tabletop FTS Using Solar Absorption Spectroscopy.” *Atmospheric Measurement Techniques* 5 (11): 2969–80. <https://doi.org/10.5194/amt-5-2969-2012>.
- Groenigen, Kees Jan van, Craig W Osenberg, and Bruce A Hungate. 2011. “Increased Soil Emissions of Potent Greenhouse Gases under Increased Atmospheric CO<sub>2</sub>.” *Nature* 475 (7355): 214–16. <https://doi.org/10.1038/nature10176>.
- Harrison, J J. 2018. “New and Improved Infrared Absorption Cross Sections for Trichlorofluoromethane (CFC-11).” *Atmos. Meas. Tech.* 11 (10): 5827–36. <https://doi.org/10.5194/amt-11-5827-2018>.
- Herbin, H., and P. Dubuisson. 2016. *Observation Infrarouge de l’atmosphère Terrestre*. ISTE editi. <https://doi.org/10.1515/9783110932409-toc>.
- Houweling, S, F.-M. Breon, I Aben, C Rödenbeck, M Gloor, M Heimann, and P Ciais. 2004. “Inverse Modeling of CO<sub>2</sub> Sources and Sinks Using Satellite Data: A Synthetic Inter-Comparison of Measurement Techniques and Their Performance as a Function of Space and Time.” *Atmos. Chem. Phys.* 4 (2): 523–38. <https://doi.org/10.5194/acp-4-523-2004>.
- Inness, A, M Ades, A Agustí-Panareda, J Barré, A Benedictow, A.-M. Blechschmidt, J J Dominguez, et al. 2019. “The CAMS Reanalysis of Atmospheric Composition.” *Atmos. Chem. Phys.* 19 (6): 3515–56. <https://doi.org/10.5194/acp-19-3515-2019>.
- IPCC, 2013. 2013. “IPCC Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Chapter 2: Observations: Atmosphere and Surface.” *Climate Change 2013 the Physical Science Basis: Working Group I Contribution to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* 9781107057: 159–254.

- IPCC, 2014. 2014. “Climate Change 2014: Synthesis Report. Contribution of Working Groups I, II and III to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change.” IPCC, Geneva, Switzerland, 151 pp.
- Karion, Anna, Colm Sweeney, Pieter Tans, and Timothy Newberger. 2010. “AirCore: An Innovative Atmospheric Sampling System.” *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 27 (11): 1839–53. <https://doi.org/10.1175/2010JTECHA1448.1>.
- Kato, Seiji, Norman G Loeb, Fred G Rose, David R Doelling, David A Rutan, Thomas E Caldwell, Lisan Yu, and Robert A Weller. 2013. “Surface Irradiances Consistent with CERES-Derived Top-of-Atmosphere Shortwave and Longwave Irradiances.” *Journal of Climate* 26 (9): 2719–40. <https://doi.org/10.1175/JCLI-D-12-00436.1>.
- Ki-moon, Ban. 2008. “Kyoto Protocol Reference Manual.” *United Nations Framework Convention on Climate Change*, 130. <https://doi.org/10.5213/jkcs.1998.2.2.62>.
- Kirschke, Stefanie, Philippe Bousquet, Philippe Ciais, Marielle Saunoy, Josep G Canadell, Edward J Dlugokencky, Peter Bergamaschi, et al. 2013. “Three Decades of Global Methane Sources and Sinks.” *Nature Geoscience* 6 (10): 813–23. <https://doi.org/10.1038/ngeo1955>.
- Kobayashi, N, G Inoue, M Kawasaki, H Yoshioka, M Minomura, I Murata, T Nagahama, et al. 2010. “Remotely Operable Compact Instruments for Measuring Atmospheric CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> Column Densities at Surface Monitoring Sites.” *Atmos. Meas. Tech.* 3 (4): 1103–12. <https://doi.org/10.5194/amt-3-1103-2010>.
- Krings, Thomas, Bruno Neininger, Konstantin Gerilowski, Sven Krautwurst, Michael Buchwitz, John P. Burrows, Carsten Lindemann, Thomas Ruhtz, Dirk Schüttemeyer, and Heinrich Bovensmann. 2018. “Airborne Remote Sensing and in Situ Measurements of Atmospheric CO<sub>2</sub> to Quantify Point Source Emissions.” *Atmospheric Measurement Techniques* 11 (2): 721–39. <https://doi.org/10.5194/amt-11-721-2018>.
- Liu, Yi, Zhaonan Cai, Dongxu Yang, Yuquan Zheng, Minzheng Duan, and Daren Lü. 2014. “Effects of Spectral Sampling Rate and Range of CO<sub>2</sub> Absorption Bands on XCO<sub>2</sub> Retrieval from TanSat Hyperspectral Spectrometer.” *Chinese Science Bulletin* 59 (14): 1485–91. <https://doi.org/10.1007/s11434-014-0215-8>.
- Loeb, Norman G, Bruce A Wielicki, David R Doelling, G Louis Smith, Dennis F Keyes, Seiji Kato, Natividad Manalo-Smith, and Takmeng Wong. 2009. “Toward Optimal Closure of the Earth’s Top-of-Atmosphere Radiation Budget.” *Journal of Climate* 22 (3): 748–66. <https://doi.org/10.1175/2008JCLI2637.1>.
- National Geophysical Data Center. 1992. “U.S. Standard Atmosphere (1976).” *Planetary and Space Science* 40 (4): 553–54. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0032-0633\(92\)90203-Z](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0032-0633(92)90203-Z).
- Neef, Lisa, M van Weele, and Peter Velthoven. 2010. “Optimal Estimation of the Present-Day Global Methane Budget.” *Global Biogeochemical Cycles* 24 (December): GB4024. <https://doi.org/10.1029/2009GB003661>.
- Oliver, John E. 2005. “Kyoto Protocol BT - Encyclopedia of World Climatology.” In , edited by John E Oliver, 443. Dordrecht: Springer Netherlands. [https://doi.org/10.1007/1-4020-3266-8\\_118](https://doi.org/10.1007/1-4020-3266-8_118).
- Pathakoti, M, S Gaddamidi, B Gharai, S S Mullapudi Venkata Rama, R Kumar Sundaran, and W Wang. 2019. “Retrieval of CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, CO and N<sub>2</sub>O Using Ground- Based FTIR Data and Validation against Satellite Observations over the Shadnagar, India.” *Atmos. Meas. Tech. Discuss.* 2019 (February): 1–19. <https://doi.org/10.5194/amt-2019-7>.



- Petri, Christof. 2017. "Ground Based Remote Sensing of Atmospheric Greenhouse Gases Using Mobile FTIR Spectrometers Dissertation."
- Petri, Christof, Thorsten Warneke, Nicholas Jones, T Ridder, J Messerschmidt, T Weinzierl, M Geibel, and Justus Notholt. 2012. "Remote Sensing of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> Using Solar Absorption Spectrometry with a Low Resolution Spectrometer." *Atmospheric Measurement Techniques* 5 (July): 1627–35. <https://doi.org/10.5194/amt-5-1627-2012>.
- Quéré, Corinne Le, Robert B Jackson, Matthew W Jones, Adam J P Smith, Sam Abernethy, Robbie M Andrew, Anthony J De-Gol, et al. 2020. "Temporary Reduction in Daily Global CO<sub>2</sub> Emissions during the COVID-19 Forced Confinement." *Nature Climate Change* 10 (7): 647–53. <https://doi.org/10.1038/s41558-020-0797-x>.
- Razavi, A., C. Clerbaux, C. Wespes, L. Clarisse, D. Hurtmans, S. Payan, C. Camy-Peyret, and P. F. Coheur. 2009. "Characterization of Methane Retrievals from the IASI Space-Borne Sounder." *Atmospheric Chemistry and Physics* 9 (20): 7889–99. <https://doi.org/10.5194/acp-9-7889-2009>.
- Rigby, M, R G Prinn, P J Fraser, P G Simmonds, R L Langenfelds, J Huang, D M Cunnold, et al. 2008. "Renewed Growth of Atmospheric Methane." *Geophysical Research Letters* 35 (22). <https://doi.org/10.1029/2008GL036037>.
- Rothman, L. S., I. E. Gordon, Y. Babikov, A. Barbe, D. Chris Benner, P. F. Bernath, M. Birk, et al. 2013. "The HITRAN2012 Molecular Spectroscopic Database." *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 130: 4–50. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2013.07.002>.
- Schlatter, Thomas W. 2010. "Vertical Structure of the Atmosphere," 1–12. <https://doi.org/10.1002/9780470686652.eae582>.
- Siva Kumar, V, P B Rao, and M Krishnaiah. 2003. "Lidar Measurements of Stratosphere-Mesosphere Thermal Structure at a Low Latitude: Comparison with Satellite Data and Models." *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 108 (D11). <https://doi.org/10.1029/2002JD003029>.
- Suto, H, Akihiko Kuze, Yugo Kaneko, and Takashi Hamazaki. 2006. "Characterization of TANSO-FTS on GOSAT." *AGU Fall Meeting Abstracts* 1 (November): 903.
- Tarnocai, C, J G Canadell, E A G Schuur, P Kuhry, G Mazhitova, and S Zimov. 2009. "Soil Organic Carbon Pools in the Northern Circumpolar Permafrost Region." *Global Biogeochemical Cycles* 23 (2). <https://doi.org/10.1029/2008GB003327>.
- Veselovskii, I, P Goloub, Q Hu, T Podvin, D N Whiteman, M Korenskiy, and E Landulfo. 2019. "Profiling of CH<sub>4</sub> Background Mixing Ratio in the Lower Troposphere with Raman Lidar: A Feasibility Experiment." *Atmos. Meas. Tech.* 12 (1): 119–28. <https://doi.org/10.5194/amt-12-119-2019>.
- Weitekamp, Claus. 2005. "Lidar, Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere." *Lidar, Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere, Edited by Claus Weitekamp. Berlin: Springer, 2005.* 102 (January). <https://doi.org/10.1007/b106786>.
- Wielicki, Bruce A, Bruce R Barkstrom, Edwin F Harrison, Robert B Lee III, G Louis Smith, and John E Cooper. 1996. "Clouds and the Earth's Radiant Energy System (CERES): An Earth Observing System Experiment." *Bulletin of the American Meteorological Society* 77 (5): 853–68. [https://doi.org/10.1175/1520-0477\(1996\)077<0853:CATERE>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0477(1996)077<0853:CATERE>2.0.CO;2).
- Winker, D M, J Pelon, J A Coakley, S A Ackerman, R J Charlson, P R Colarco, P Flamant, et al. 2010. "The CALIPSO Mission: A Global 3D View of Aerosols and Clouds." *Bulletin of the American Meteorological Society* 91 (9): 1211–30. <https://doi.org/10.1175/2010BAMS3009.1>.

- Wührer, Christian, Christopher Köhl, Stefano Lucarelli, and M Bode. 2019. “MERLIN: Overview of the Design Status of the Lidar Instrument.” In *Proc.SPIE*. Vol. 11180. <https://doi.org/10.1117/12.2535999>.
- Wunch, D., G. C. Toon, P. O. Wennberg, S. C. Wofsy, B. B. Stephens, M. L. Fischer, O. Uchino, et al. 2010. “Calibration of the Total Carbon Column Observing Network Using Aircraft Profile Data.” *Atmospheric Measurement Techniques* 3 (5): 1351–62. <https://doi.org/10.5194/amt-3-1351-2010>.
- Zhou, Minqiang, Bavo Langerock, Corinne Vigouroux, Mahesh Kumar Sha, Michel Ramonet, Marc Delmotte, Emmanuel Mahieu, et al. 2018. “Atmospheric CO and CH<sub>4</sub> Time Series and Seasonal Variations on Reunion Island from Ground-Based in Situ and FTIR (NDACC and TCCON) Measurements.” *Atmospheric Chemistry and Physics* 18 (19): 13881–901. <https://doi.org/10.5194/acp-18-13881-2018>.



## Chapitre 2 : Principe de mesures FTIR à visée solaire.

### **Introduction**

La mesure de télédétection depuis le sol en visée zénithale repose sur principe de l'interaction rayonnement (soleil) - matière (atmosphère) et requiert l'utilisation de la spectroscopie moléculaire afin de déterminer les concentrations de gaz dans l'atmosphère.

La spectroscopie infrarouge à haute résolutions spectrale (IRHSR : Infrared High Spectral Resolution) est une technique très utilisée en télédétection spatiale, notamment car elle offre des observations radiométriquement précises (*Revercomb et al. 1988*). C'est un outil essentiel pour évaluer la composition chimique de l'atmosphère afin d'en déduire son évolution, notamment pour mieux comprendre l'influence des activités anthropiques sur l'environnement.

Les spectres mesurés dépendent des variables de température et de pression, qui sont impliquées dans l'équation de transfert radiatif présentée dans la première section de ce chapitre. Cette dernière implique la connaissance des paramètres spectroscopiques comme la position, l'intensité des transitions et la forme des raies pour pouvoir analyser le spectre. Ces paramètres, ainsi que d'autres phénomènes affectant la forme des spectres à basse fréquence comme les continua et le line-mixing sont expliqués dans la deuxième partie.

La dernière partie est dédiée à la résolution de l'équation de transfert radiatif à l'aide d'un algorithme raie-par-raie. Plusieurs algorithmes utilisés dans les communautés françaises et internationales sont présentés, ainsi que le code ARAHMIS développé au LOA utilisé dans le cadre de cette thèse.

### **2.1. Transfert radiatif.**

Les spectres mesurés par un spectromètre à transformée de Fourier (FTIR) sont interprétés en termes d'abondance, de température et de pression grâce à l'inversion de l'équation de transfert radiatif (ETR) en atmosphère purement absorbante. Dans cette section, on cherche à présenter cette équation ainsi que le spectre solaire qui est la source d'énergie essentielle de notre spectromètre.

#### **2.1.1. Equation de transfert radiatif en milieu absorbant.**

Un spectre mesuré dans la plage spectrale correspondant à l'émission solaire correspond à l'intensité du rayonnement électromagnétique ayant traversé l'atmosphère qui à son tour reflète la composition en concentration des gaz atmosphériques. Ces concentrations sont obtenues à partir d'un algorithme d'inversion des spectres mesurés puisqu'il s'agit d'une mesure indirecte de l'action des gaz sur le rayonnement. Cependant, le cœur d'une méthode d'inversion réside dans la précision du modèle direct (voir section 4.1.2). En même temps que la conception du modèle direct, il faut aussi concevoir le modèle qui calcul les fonctions de poids ou les Jacobiens (section 4.1.2) qui représentent une partie importante du processus d'inversion.

On prend le cas simple où l'ETR est calculée dans une seule dimension verticale. Ainsi, on considérera que le milieu atmosphérique est stratifié en couches homogènes, parallèles et sphériques (voir **Figure 2.1**). Chaque colonne atmosphérique, définie généralement à partir de la température et la pression à ses limites, est considérée comme indépendante et les interactions d'une colonne à l'autre ne sont pas prises en compte. La formulation de l'ETR est issue de la loi de Beer-Lambert qui permet de décrire l'évolution de l'intensité d'une onde électromagnétique  $I(\nu)$ ,  $\nu$  (exprimé en Hz) étant la fréquence, lors de l'interaction avec une couche atmosphérique le long du trajet optique  $dz$  (cm) :

$$dI(\nu) = -k_{\nu}^{abs.} I(\nu) dz \quad 2.1$$

où,  $k_{\nu}^{abs.}$  (exprimé en  $\text{cm}^{-1}$ ) est le coefficient d'absorption du milieu.

La couche atmosphérique traversée émet également un rayonnement décrit par la formule suivante :

$$dI(\nu) = k_{\nu}^{emis.} J(\nu, T) dz \quad 2.2$$

où  $k_{\nu}^{emis.}(\nu)$  est le coefficient d'émission du milieu et  $J(\nu, T)$  est la « fonction source » qui dépend de l'émission thermique de la température du milieu.

En équilibre thermodynamique local, où seule la température provenant de l'émission thermique gouverne la répartition des molécules dans les différents niveaux d'énergie, le rayonnement émis par chaque couche ne dépend que de sa température et  $J(\nu)$  est donné par la fonction de Planck :

$$J(\nu, T) = B(\nu, T) = 2h\nu^3 c^2 [\exp(h\nu/kT) - 1]^{-1} \quad 2.3$$

où  $c$  représente la célérité de la lumière (m/s),  $k$  la constante de Boltzmann ( $1.380649 \times 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$ ) et  $h$  la constante de Planck ( $6.62607015 \times 10^{-34} \text{ J.s}$ ). Cette fonction correspond au rayonnement émis par un corps noir à la fréquence  $\nu$  exprimée en Hz et à la température  $T$  exprimée en K. En appliquant la loi de Kirchhoff à chaque couche de l'atmosphère (les coefficients d'absorption  $k_{\nu}^{abs.}$  et d'émission  $k_{\nu}^{emis.}$  sont égaux), on obtient une nouvelle forme de l'ETR :

$$dI(\nu)/dz = -k_{\nu}[I(\nu) - B(\nu, T)] \quad 2.4$$

En introduisant la transmission gazeuse intégrée  $T_{\Delta\nu}$  sur un intervalle spectral  $\Delta\nu$  et sur un trajet géométrique entre deux altitudes  $z_1$  et  $z_2$ , on peut obtenir la formulation générale pour l'ETR :

$$I(\nu, z) = I_0 T_{\Delta\nu} + \int_{z_1}^{z_2} k_{\nu}(z) B(\nu, T) \exp[-k_{\nu}(z)] dz \quad 2.5$$

avec,

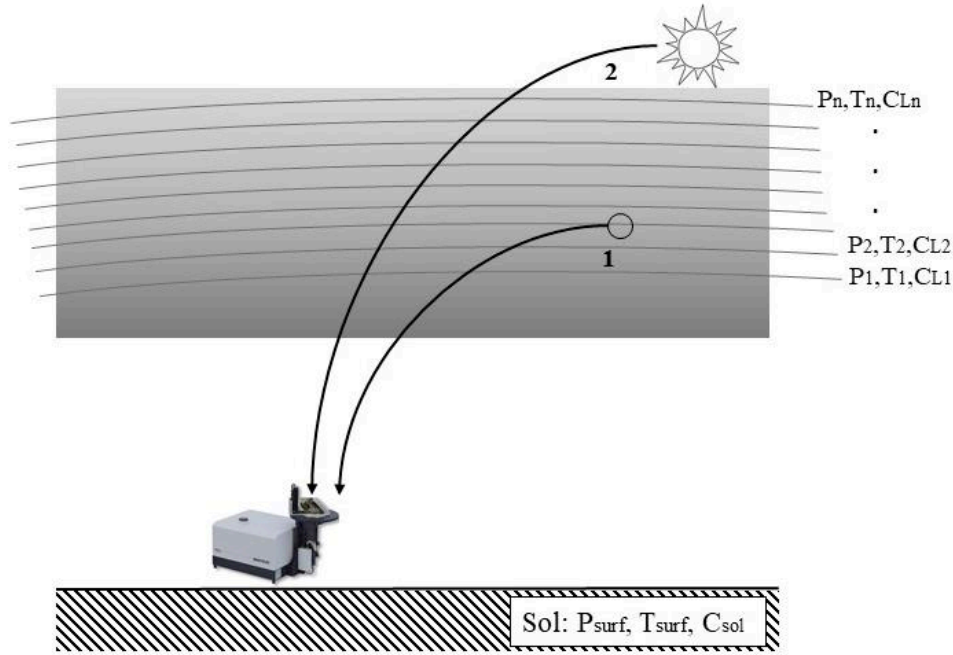
$$T_{\Delta\nu} = \frac{1}{\Delta\nu} \int_{\Delta\nu} d\nu \int_{z_1}^{z_2} \exp[-k_{\nu}(z)] dz$$

où  $I_0$  correspond au rayonnement émis par la source lumineuse, qui dans notre cas est le soleil, en  $z = 0$ . Ainsi, à partir de la formule générale précédente, on peut établir l'équation de la luminance spectrale

(radiance en anglais), dans le cas d'une atmosphère purement absorbante, pour une visée au zénith ou en d'autres termes, pour une mesure depuis le sol :

$$L_Z = \int_0^H k_v(h) B(v, T) \exp\left(-\int_0^h k_v(h') dh'\right) dh + I_{solar} \exp\left(-\int_0^H k_v(h) dh\right) \quad 2.6$$

où  $h$  représente l'altitude des couches atmosphériques, exprimée en cm, comprises entre la surface ( $z_1 = 0$ ) et le sommet de l'atmosphère ( $z_2 = H$ ). Les spectres mesurés par CHRIS couvrent la région thermique de l'infrarouge ( $680-1300 \text{ cm}^{-1}$ ), où l'émission atmosphérique ne peut être négligée par rapport au rayonnement solaire direct. Le premier terme correspond au rayonnement émis par les couches atmosphériques et transmis en direction de CHRIS (partie 1 de la **Figure 2.1**). Tandis que le deuxième terme représente le rayonnement solaire direct (partie 2 de la **Figure 2.1**).



**Figure 2.1:** Illustration de l'observation du rayonnement provenant des couches atmosphériques (1) et du soleil (2) en mode de visée au zénith.

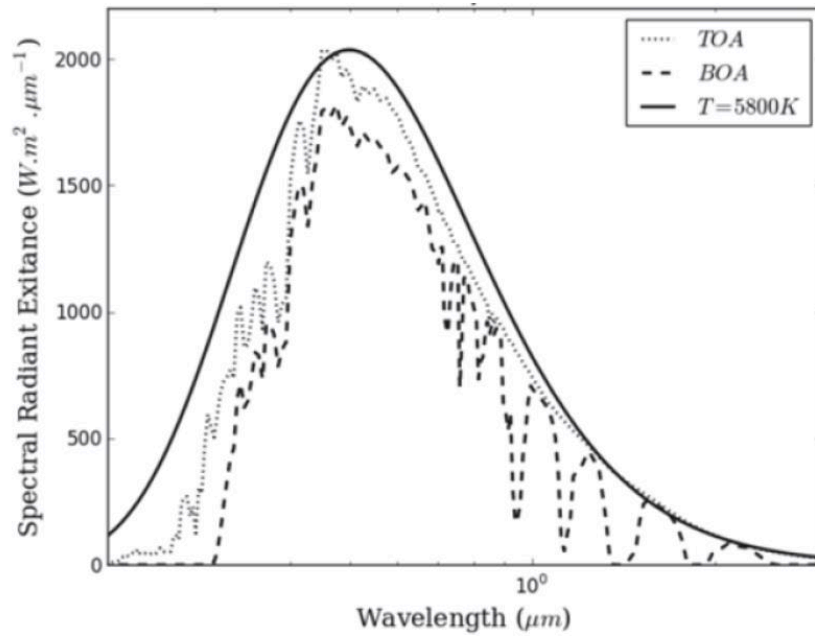
### 2.1.2. Spectre solaire

Dans ce travail, le soleil est la source d'énergie essentielle pour l'obtention d'un spectre atmosphérique en visée de zénith. Le soleil émet un spectre variant des rayons gamma aux ondes radio, en passant par l'UV, le visible et l'infrarouge. Au niveau de la mer, seules les radiations dont la longueur d'onde est supérieure à 300 nm peuvent être observées puisque l'atmosphère terrestre est opaque en dessous de cette valeur à cause de l'absorption très forte par l'ozone, de l' $O_2$  et  $N_2$ . Il faut bien noter que le soleil se comporte comme un corps noir à une température moyenne d'environ 5800 K.

A l'équilibre thermodynamique, la loi de Planck décrit la luminance  $B_\lambda(T)$  d'un corps noir en fonction de sa température et sa longueur d'onde :

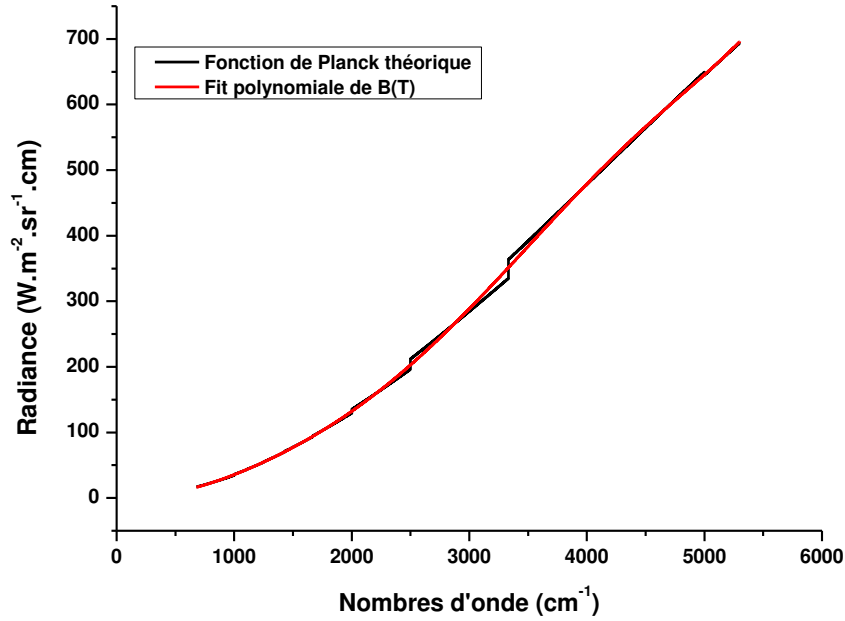
$$B_{\lambda}(T) = \frac{2hc^2}{\lambda^5 \left[ \exp\left(\frac{hc}{\lambda kT}\right) - 1 \right]} \quad [W.m^{-2}.sr^{-1}.m^{-1}] \quad 2.7$$

avec  $k$  la constante de Boltzman. La **Figure 2.2** présente les variations spectrales de la luminance solaire au sommet de l'atmosphère (TOA) et au niveau de la mer (BOA) en absence de nuages et d'aérosols. La luminance diminue en intensité parce que la totalité du flux solaire n'arrive pas à la surface terrestre, notamment dans l'infrarouge car il est absorbé par certains constituants atmosphérique comme la vapeur d'eau, le CO<sub>2</sub> ou l'O<sub>3</sub>. Cependant, il existe certaines plages spectrales dans l'infrarouge où l'atmosphère est transparente, appelées "fenêtres atmosphériques". L'enveloppe de ces deux courbes est issue de la fonction de Planck correspondant à un corps noir de température moyenne d'environ 5800 K.



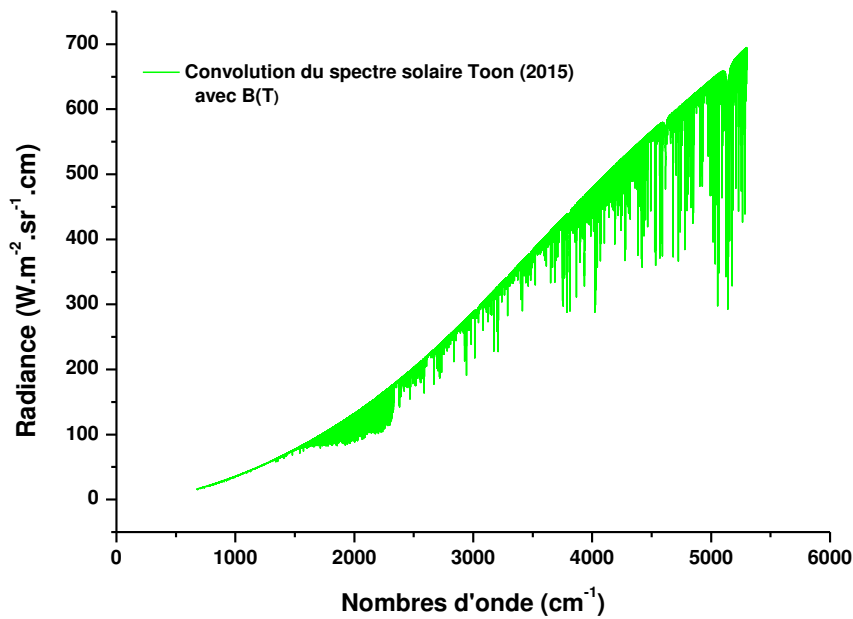
**Figure 2.2:** Spectre solaire au sommet de l'atmosphère (TOA) et modélisé au niveau de la mer (BOA). L'enveloppe de ces courbes est le spectre d'un corps noir à une température moyenne de 5800 K. (Source : (Herbin and Dubuisson 2016))

En réalité, la luminance solaire à la surface est un produit de la fonction de Planck (**Equation 2.7**) et la géométrie de visée solaire (spectre de transmittance solaire) depuis le sol comme calculée par (Toon 2015). Trishchenko 2006 a démontré que la température de luminance effective dépend fortement du nombre d'onde, donc elle n'est pas une valeur constante de 5800 K. Ainsi il a combiné le travail de quatre spectres solaires de référence récents, dont deux sont pris en considération avec une différence relative de 0,1% (ASTM et Kurucz). Ensuite, la fonction de Planck est calculée dans chaque fenêtre spectrale de l'infrarouge correspondant à la plage spectrale de CHRIS ce qui donne l'effet escalier dans la courbe noire de la **Figure 2.3**. Au final, la fonction de Planck calculée est ajustée par un polynôme de degré 6 (ligne rouge sur la **Figure 2.3**).



*Figure 2.3: La fonction de Planck solaire calculée à partir de Trishchenko 2006 (courbe noire) et le fit polynomial de degré 6 de cette fonction (courbe rouge).*

Toon 2015 a calculé le spectre de pseudo-transmittance correspondant à la lumière solaire directe du centre du disque solaire pour les observations satellitaires ainsi que pour les mesures depuis le sol. Le spectre correspondant à des mesures depuis le sol est utilisé comme spectre solaire incident interpolé sur la grille spectrale de notre instrument. La convolution du spectre de pseudo-transmittance de Toon et le fit polynomial calculé précédemment, nous donne la luminance solaire qui correspond à la courbe verte de la **Figure 2.4**. Cette étape est indispensable pour la modélisation du signal mesuré par l'instrument CHRIS.



*Figure 2.4: Convolution de la fonction de Planck (courbe rouge de la Figure 2.3) avec le spectre de pseudo-transmittance de Toon (2015).*



Un élément supplémentaire essentiel fait partie des paramètres caractéristiques d'un spectre infrarouge d'absorption qui est l'angle zénithal solaire (SZA : Solar Zenithal Angle). Chaque SZA correspond à un chemin optique différent donc si ce paramètre est mal calculé il introduit une erreur significative dans le processus d'inversion et par conséquent dans les concentrations des gaz atmosphériques retrouvées. Dans ce manuscrit, la routine expliquée dans (*Michalsky 1988*) est adoptée pour calculer l'angle zénithal solaire associé à chaque spectre dont le code est donné en *Annexe*. Cette routine dépend de l'heure de mesure et de l'emplacement (latitude et longitude) de l'instrument. Ces paramètres sont essentiels pour calculer la date julienne qui servira à calculer l'ascension et la déclinaison (dec). Ensuite, le temps local en radians est calculé pour établir l'angle horaire (ha) en radians. Au final, l'élévation solaire est obtenue en calculant l'inverse du sinus comprenant la latitude, la déclinaison et l'angle horaire. L'angle solaire zénithal est le complément de l'élévation. Le SZA est une source d'incertitude importante et sera intégrée dans le bilan d'erreur de CHRIS. En pratique, lors des expériences nous utilisons un GPS qui nous donne une information sur la latitude, la longitude et l'élévation du lieu de mesure.

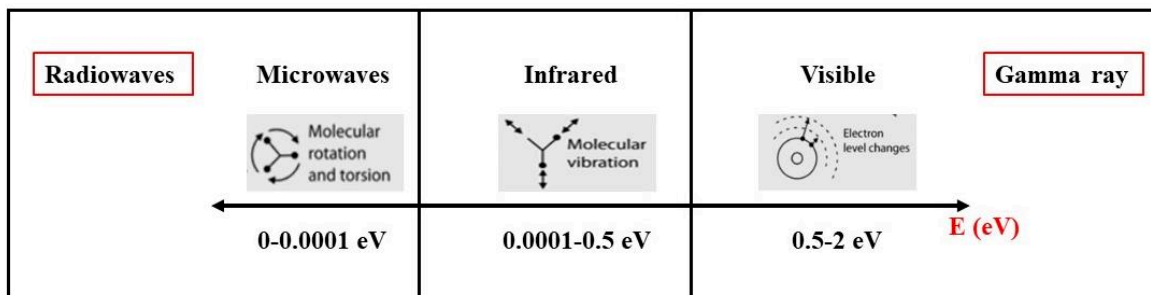
## **2.2. La spectroscopie d'absorption infrarouge.**

Dans cette section, on définit l'ensemble des paramètres nécessaires à la compréhension du processus d'absorption du rayonnement infrarouge qui entraîne la formation des spectres rovibrationnels. Les modes de rotation, vibration et rovibration sont essentiels pour déterminer la position des raies. En plus, les formes des raies spectrales sont définies pour pouvoir déterminer les profils verticaux des GES. Des paramètres supplémentaires jouent un rôle important en spectroscopie moléculaire, comme le line-mixing (*Mendonca et al. 2016*), les absorptions induites par collision (CIA) (chapitre VI, (*Hartmann and Boulet 2008*), et les continua de CO<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O (*Rodimova 2018*). La formation du spectre rovibrationnel du CO<sub>2</sub> est donné comme exemple puisqu'il est le sujet essentiel de cette thèse.

### **2.2.1. Positions des raies.**

#### **2.2.1.1. Généralités.**

Lors de l'interaction d'un photon avec la matière, des processus d'émission et d'absorption sont établis entre des niveaux d'énergie d'une molécule ce qui aboutit à des changements structuraux de la matière. En fonction de l'énergie de la radiation incidente (longueur d'onde), plusieurs effets peuvent être mis en jeu qui vont affecter les différentes couches et états des molécules ou des atomes, comme illustré sur la *Figure 2.5*. Dans le domaine spectral UV-visible où l'énergie du photon incident est supérieure à 2 eV ( $1.6 \times 10^4 \text{ cm}^{-1}$ ), la distribution électronique de la molécule change. Dans le domaine infrarouge, les noyaux des molécules subissent un changement de configuration, en passant de l'état fondamental à des états vibrationnels précis, alors que dans le domaine des micro-ondes et IR lointain, les molécules restent en mode rotationnel sans atteindre les niveaux vibrationnels et électroniques. Le spectre infrarouge d'une molécule donnée est unique et peut être utilisé pour identifier cette molécule, similaire à une empreinte digitale qui est propre à chaque individu (*Griffiths and de Haseth 2007*).



*Figure 2.5: Principaux effets de l'interaction lumière-matière.*

Une transition entre les niveaux d'énergie d'une molécule est déterminée à partir de la formule suivante :

$$\Delta E = h\nu = hc/\lambda = hcv \quad 2.8$$

où  $h$  est la constante de Planck,  $c$  la vitesse de la lumière,  $\nu$  la fréquence,  $\lambda$  la longueur d'onde, et  $v$  est le nombre d'ondes. Les transitions moléculaires sont décrites par un spectre énergétique que l'on peut déterminer en résolvant l'équation de Schrödinger :

$$\hat{H}\psi_n(r, t) = E_n\psi_n(r, t) \quad 2.9$$

où  $\psi_n(r, t)$  est la fonction d'onde caractéristique de l'état quantique  $n$ , telle que :

$$\psi_n(r, t) = \psi_n(r, t) \exp(-i \frac{E_n t}{\hbar}) \quad 2.10$$

$E_n$  est l'énergie de l'état  $n$ , et  $\hat{H}$  est l'opérateur Hamiltonien. Ce dernier contient deux termes, un correspondant à l'énergie cinétique des noyaux et des électrons et l'autre correspondant à l'énergie potentielle.

Pour une molécule composée de noyaux de masse  $M_N$  et de  $i$  électrons de masse  $m_e$ , l'équation 2.9 devient impossible à résoudre pour les systèmes moléculaires. Toutefois, une molécule est constituée d'atomes qui sont formés par des noyaux et des électrons orbitant autour de ces derniers. Puisque la structure de l'atome fait que le noyau est plus lourd que les électrons, il apparaît que le mouvement des noyaux est très lent par rapport aux déplacements des électrons. Cela conduit à l'utilisation de l'approximation Born-Oppenheimer, qui fait l'hypothèse que les variables nucléaires et électroniques peuvent être séparées en deux parties distinctes, on peut alors écrire :

$$E_n = E_E + E_t + E_v + E_R \quad 2.11$$

avec  $E_E$  l'énergie électronique associée aux mouvements des électrons,  $E_t$ ,  $E_v$ ,  $E_R$  reflètent l'énergie interne des noyaux et correspondent respectivement à des mouvements de translation, de vibration et de rotation. De manière générale,  $E_t \leq E_v \leq E_R$ , où ces énergies sont quantifiées de sorte qu'elles ne peuvent prendre que des valeurs précisément déterminées, définies par l'état quantique de la molécule. Cette dernière, dans le cas d'une vibration, exécute un mouvement complexe. Ce mouvement peut être décomposé en des mouvements plus simples en classant la molécule dans des groupes fonctionnels de symétrie moléculaire, ce qui permet de déterminer la structure d'un spectre.

### 2.2.1.2. Spectroscopie rovibrationnelle d'absorption.

En spectroscopie rovibrationnelle, on observe des transitions entre des niveaux d'énergie rotationnelle associées à des niveaux de vibration différents. Dans le cas de molécules diatomiques, ou polyatomiques linéaires comme le CO<sub>2</sub>, l'énergie rotationnelle est définie comme l'énergie cinétique (énergie potentielle négligeable) d'un rotateur rigide où la liaison entre les atomes est représentée par :

$$E_n^{rot.} = B J (J + 1) - D J^2 (J + 1)^2 \quad 2.12$$

avec la constante de rotation  $B [cm^{-1}] = h^2 / 8\pi^2 I = h^2 / (8\pi^2 \mu R_N^2)$ , où  $I = \mu R_N^2$  est le moment d'inertie,  $J$  le nombre quantique de rotation, et  $D$  la constante de distorsion centrifuge.

Le mouvement de vibration pour ce type de molécules peut être modélisé en mécanique classique, qui considère que les atomes sont reliés par un ressort obéissant à la loi de Hooke. L'énergie vibrationnelle est alors :

$$E_n^{vib.}(v) = \omega_e \left[ \left( v + \frac{1}{2} \right) - x_e \left( v + \frac{1}{2} \right)^2 \right] \quad 2.13$$

où  $\omega_e [cm^{-1}]$  est la constante vibrationnelle,  $v$  le nombre quantique de vibrations, et  $x_e$  est appelée constante d'anharmonicité.

Par application de l'approximation de Born-Oppenheimer (**Equation 2.11**) et en considérant l'état fondamental électronique constant, l'énergie de rotation-vibration s'écrit :

$$\begin{aligned} E_n(v, J) &= E_n^{rot.} + E_n^{vib.}(v) \\ &= B J (J + 1) - D J^2 (J + 1)^2 + \omega_e \left[ \left( v + \frac{1}{2} \right) - x_e \left( v + \frac{1}{2} \right)^2 \right] \end{aligned} \quad 2.14$$

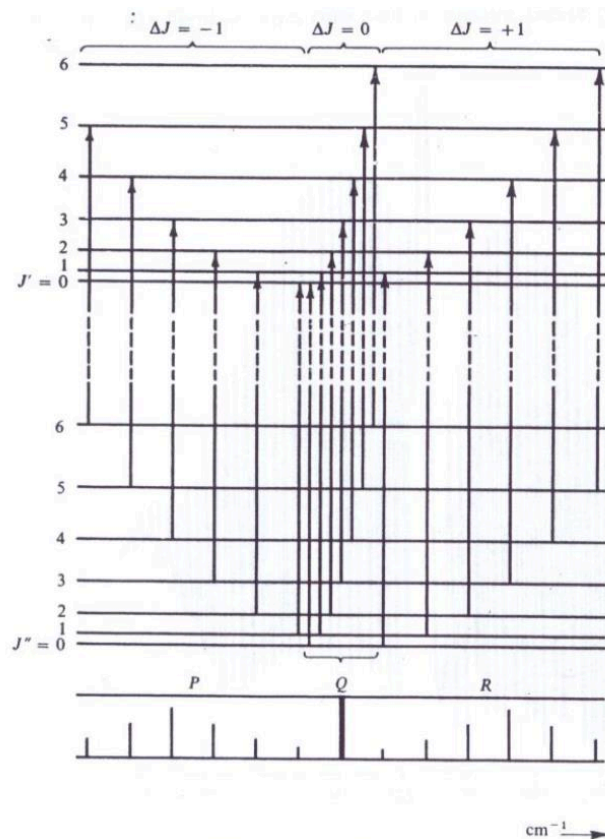
L'absorption du rayonnement infrarouge n'est possible que si les molécules ont la capacité de modifier leur moment dipolaire non nul pendant la transition, ce qui conduit aux règles de sélection suivantes :

$$\Delta v = \pm 1, \pm 2, \pm 3, \dots \quad \text{et} \quad \Delta J = 0, \pm 1$$

Un schéma des niveaux d'énergie illustrant les transitions rovibrationnelles possibles est donné dans la **Figure 2.6**.

Lors des transitions vibrationnelles entre  $v$  et  $v + 1$ ,  $J$  change de  $\pm 1$  et de 0 ce qui conduit à des raies d'absorption qui peuvent être divisées en trois groupes différents, appelés les branches d'un spectre :

- Les transitions de  $v$  à  $v + 1$  avec  $\Delta J = -1$  construisent la branche P qui est située du côté des basses fréquences.
- Les transitions de  $v$  à  $v + 1$  avec  $\Delta J = +1$  construisent la branche R qui est située du côté des hautes fréquences.
- Les transitions de  $v$  à  $v + 1$  avec  $\Delta J = 0$  construisent la branche Q entre la branche P et la branche R. Elle n'est autorisée que pour les molécules dont les moments angulaires sont parallèles à leur axe de symétrie.



**Figure 2.6:** Diagramme énergétique des transitions d'une bande rovibrationnelle pour une molécule linéaire. (Source : (Banwell 1983))

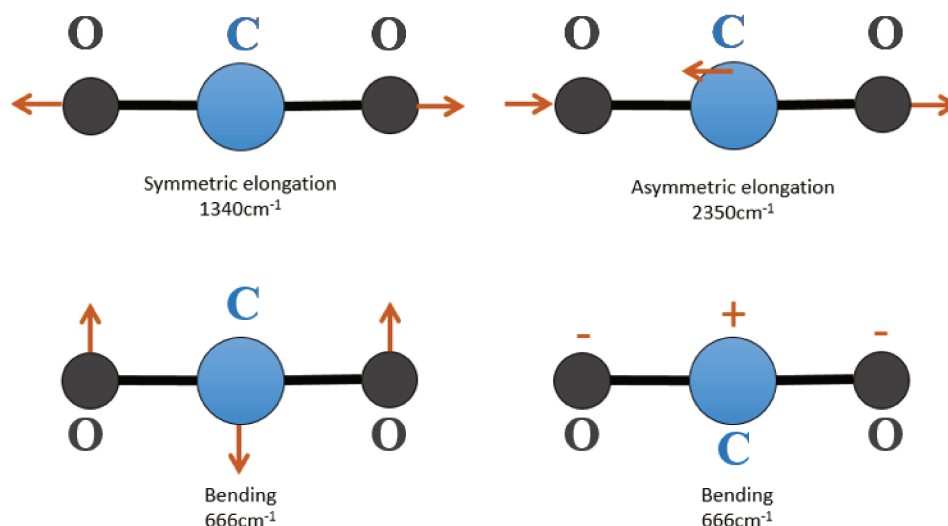
Dans un spectre de molécule diatomique, les spectres de rotation-vibration sont les plus simples et seuls les transitions  $\Delta J = +1$  et  $\Delta J = -1$  sont permises.

Le domaine spectral qui nous intéresse ici est l'infrarouge moyen, typiquement compris entre 600 et 5500  $\text{cm}^{-1}$ , qui est le siège des spectres de transitions rovibrationnelles des molécules polyatomiques, notamment dans notre cas d'étude ( $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ ). Cependant, les transitions rovibrationnelles ne peuvent être observées qu'en phase gazeuse et pour des molécules légères. Puisque la constante de rotation  $B$  est inversement proportionnelle à la masse réduite  $\mu$  (cf. **équation 2.12**),  $B$  sera négligeable quand la masse de la molécule augmente, donc la structure rotationnelle ne peut être résolue. C'est le cas des chlorofluorocarbures (CFC) qui ont une longue durée de vie dans l'atmosphère (>50 ans) et qui absorbent fortement dans l'infrarouge.

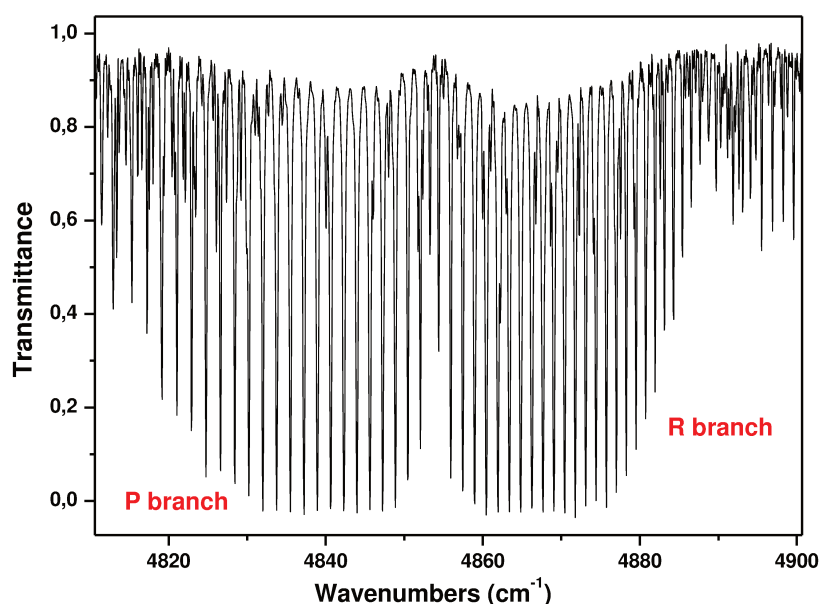
Les spectres de molécules polyatomiques comme le  $\text{CO}_2$  et le  $\text{CH}_4$  sont beaucoup plus compliqués. Une molécule non-linéaire possède  $3N-6$  degrés de liberté de vibration,  $N$  étant le nombre d'atomes en considérant que chacun possède trois degrés de liberté et que parmi les  $3N$  degrés de liberté, trois correspondent à une translation et trois correspondent à une rotation. Il faut bien noter qu'une molécule linéaire a seulement deux degrés de liberté de rotation, donc elle possède  $3N-5$  modes fondamentaux de vibration.

Maintenant, on considère le cas de  $\text{CO}_2$  qui est une molécule linéaire polyatomique ayant  $3N-5$  degrés de liberté de vibration soit 4 modes normaux de vibration. Ces derniers sont représentés sur la **Figure 2.7** avec leurs nombres d'ondes correspondants. La vibration d'étirement symétrique n'absorbe pas dans l'infrarouge en raison du moment dipolaire inchangé, contrairement aux trois autres

modes qui sont centrés à  $666\text{ cm}^{-1}$  et  $2350\text{ cm}^{-1}$ , correspondent à des bandes d'absorption dans le spectre. En ce qui concerne les vibrations d'étirement (symétrique et asymétrique),  $J$  ne peut pas être égal à 0, puisque le moment dipolaire change parallèlement à l'axe de la molécule. Ce n'est pas le cas des vibrations de flexion (bending), qui éliminent la linéarité de la molécule et entraînent une variation du moment dipolaire perpendiculaire à l'axe de la molécule. La structure d'une bande  $2\nu_1 + \nu_3$  de  $\text{CO}_2$  (Rothman et al. 2005) enregistrée par CHRIS à Izaña est présentée dans la **Figure 2.8**, où les lignes spectrales sont dues à des combinaisons de modes vibratoires différents.



**Figure 2.7:** Les vibrations fondamentales (modes normaux de vibration) de la molécule linéaire de dioxyde de carbone, où la vibration d'étirement symétrique (en haut à gauche) n'absorbe pas dans l'infrarouge contrairement aux autres. (Herbin and Dubuisson 2016)



**Figure 2.8:** Spectre d'absorption infrarouge de la bande  $2\nu_1 + \nu_3$  de  $\text{CO}_2$  enregistré avec CHRIS à Izaña.

### 2.2.2. Profils des raies.

Une transition entre deux niveaux d'énergie est représentée par l'**Equation 2.8**, illustrée par un profil de raie qui correspond à la distribution spectrale de la probabilité d'interaction par unité de

longueur, d'un photon et d'une molécule. Cette transition est décrite mathématiquement par un pic de Dirac en négligeant l'influence des erreurs dû à l'instrumentation. Cependant, les raies spectrales sont souvent élargies naturellement, par effet de pression et par effet Doppler.

### 2.2.2.1. Elargissement naturel.

D'après le principe d'Heisenberg, la durée de vie d'un niveau d'énergie et sa position ne peuvent pas être exactement déterminées :

$$\Delta E \cdot \Delta t \geq \hbar \quad 2.15$$

où  $\hbar$  est la constante de Planck réduite (ou constante de Dirac).

En d'autres termes, pour avoir une énergie parfaitement définie, il faut que le temps de vie de l'état excité soit infinie, ce qui est impossible en pratique. Pour cela un élargissement des raies est observé.

On peut relier cet élargissement  $\Delta\nu$  au moment de la transition  $\mathcal{M}_{kl}$  comme suit :

$$\Delta\nu = \frac{\Delta E}{h} = \frac{1}{2\pi\tau} \approx \frac{32\pi^3\nu^3}{(4\pi\epsilon_0)3hc^3} |\mathcal{M}_{kl}|^2 \quad 2.16$$

qui est beaucoup plus important pour un état électronique que pour un état de rotation. Dans les conditions atmosphériques, notamment dans l'infrarouge, la largeur naturelle de la raie est typiquement entre  $10^{-4}$  et  $10^{-6}$  Hz. Cette valeur est négligeable en comparaison des autres sources d'élargissement.

### 2.2.2.2. Elargissement par pression.

Cet élargissement résulte de la collision entre les molécules d'un même milieu sous l'effet de la pression ( $P > 133$  Pa), donc dans la basse troposphère (<50 km). Ces collisions successives, avec une durée moyenne  $\tau$  entre eux, provoquent un déphasage de la radiation émise ou absorbée, ce qui conduit à un élargissement du profil de raie  $\Delta\nu$  qui s'écrit comme suit :

$$\Delta\nu = \frac{1}{2\pi\tau} \quad 2.17$$

La durée moyenne  $\tau$  entre deux collisions peut s'exprimer à l'aide de la théorie cinétique des gaz :

$$\tau = \frac{\lambda}{\bar{V}} = \frac{1}{\sqrt{2}} \frac{kT}{\bar{V}\sigma P} \quad 2.18$$

où  $\bar{V}$  est la vitesse moyenne des molécules,  $\sigma$  est la section efficace de collision, et  $k$  la constante de Boltzmann. La largeur de raie est donc proportionnelle à la pression  $P$  : plus la pression est élevée, plus les collisions sont nombreuses, plus le temps passé sur un niveau est court et plus la largeur de raie augmente.

La forme des raies affectées par des collisions intermoléculaires due à la pression est exprimée à l'aide de la loi de Lorentz :

$$f_L(v) = \frac{\alpha_L/\pi}{(v - v_0)^2 + \alpha_L^2} \quad 2.19$$

où  $v$  est le nombre d'ondes et  $\alpha_L$  la demi-largeur à mi-hauteur (HWHM), tel que :  $\alpha_L = \alpha_0(p/p_0)(T_0/T)^{1/2}$ ,  $\alpha_0$  étant la largeur à mi-hauteur à pression et température standard, respectivement  $p_0$  et  $T_0$ .

### 2.2.2.3. Elargissement par effet Doppler.

La forme et la largeur des raies d'un gaz dans un spectre de vibration-rotation dépend fortement de la pression,  $P$ . Pour les gaz à faible pression ( $P < 133$  Pa), la forme et la largeur d'une raie spectrale est déterminée par la vitesse de déplacement de la molécule par rapport au détecteur, autrement dit l'effet Doppler. Cet élargissement est prédominant dans le cas des gaz dilués donc dans la haute atmosphère à des altitudes supérieures à 40 km. La forme d'une raie Doppler centrée à un nombre d'onde  $v_0$  est donnée par :

$$f_D(v) = \frac{1}{\alpha_D \sqrt{\pi}} \exp \left[ -\frac{(v - v_0)^2}{\alpha_D^2} \right] \quad 2.20$$

où  $\alpha_D$  est la demi-largeur à mi-hauteur donnée par :

$$\alpha_D = \frac{v_0}{c} \sqrt{\frac{2(\ln 2) kT}{m}} \quad 2.21$$

où  $k$  est la constante de Boltzmann,  $T$  la température (en K),  $v_0$  le nombre d'onde central de la transition,  $c$  la célérité de la lumière (en m/s), et  $m$  la masse de la molécule (en kg).

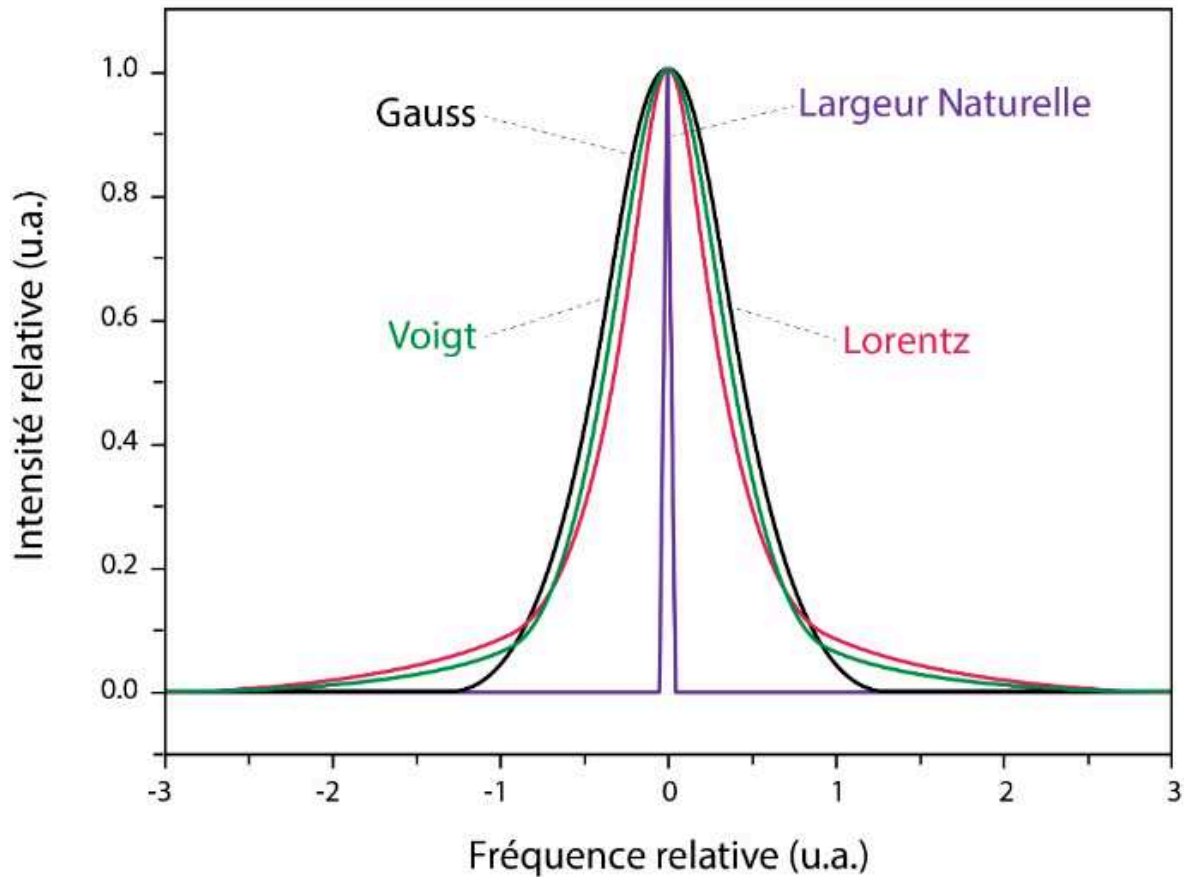
Pour les mesures atmosphériques, notamment celles effectuées par des satellites en mode de visée au nadir ou par des spectromètres en mode de visée solaire, comme CHRIS, l'ensemble de la colonne atmosphérique est observé. Ainsi, le spectre mesuré reflète la combinaison des effets de pression et de température. Dans ce cas, la forme d'une raie est donnée par une convolution des profils Lorentz et Doppler ; connue sous le nom de profil de Voigt.

### 2.2.2.4. Profil de Voigt.

Le profil de raie appelé profil de Voigt, résulte alors de la convolution des deux profils Lorentzien (section 2.2.2.2) et Gaussien (section 2.2.2.3) et s'écrit :

$$f_V(v) = \frac{1}{\pi^{3/2}} \frac{\alpha_L}{\alpha_D} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{(v' - v_0)^2 + \alpha_L^2} \exp \left[ -\frac{(v' - v_0)^2}{\alpha_D^2} \right] dv' \quad 2.22$$

Les profils de Voigt ne peuvent pas être exprimés analytiquement mais numériquement. Ce problème est bien connu pour un calcul raie par raie de l'équation de transfert radiatif (voir section 2.1.1) puisqu'il nécessite un temps de calcul élevé. Le profil de Voigt est le plus souvent utilisé pour les sondages de l'atmosphère, notamment en mode de visée au zénith. Tous ces profils sont illustrés dans la **Figure 2.9**. Il est à noter qu'il existe des profils de type « Non-Voigt » (*Wcislo et al. 2016*) utilisés pour des mesures en modes de visée différentes, mais ils ne seront pas discutés ici.



**Figure 2.9:** Formes spectrales de raie : la courbe noire correspond à une pure fonction Gaussienne (élargissement par effet Doppler) et la courbe rouge à une pure fonction Lorentzienne (élargissement par la pression). La convolution de ces deux profils de raies est approximée à un profil de Voigt couramment utilisé pour modéliser la forme des raies d'absorption atmosphérique (courbe verte).

Pour définir le coefficient d'absorption, on donne dans un premier temps l'intensité d'une transition entre deux niveaux de vibration-rotation, exprimé en  $\text{cm}^{-1}/(\text{molécules} \cdot \text{cm}^{-2})$ , à la température de référence  $T_{\text{ref}}=296 \text{ K}$  qui s'écrit :

$$S_{kl} = \frac{h\nu_{kl}n_k}{CN} \left(1 - \frac{g_k n_l}{g_l n_k}\right) \mathcal{M}_{kl}^2 10^{-36} \frac{8\pi^3}{3h^2} \quad 2.23$$

où  $n_k$  et  $n_l$  définissent les populations des états bas et haut respectivement,  $g_k$  et  $g_l$  sont les dégénérescences des niveaux  $k$  et  $l$ , avec  $N$  la densité moléculaire et  $\mathcal{M}_{kl}$  le moment de transition.

La loi de distribution de Boltzmann donne la population des états. A l'équilibre thermodynamique, la fonction de partition de population est donc exprimée comme suit :



$$\frac{N_k}{N_l} = \frac{g_k}{g_l} \exp\left(-\frac{\Delta E}{kT}\right) \quad 2.24$$

L'intensité d'une transition à une température donnée  $T$  peut être calculée après la détermination de  $S_{kl}$  pour  $T_{ref}=296$  K et  $P_{ref}=1$  atm :

$$S_{kl}(T) = S_{kl}(T_{ref}) \frac{Q(T_{ref})}{Q(T)} \frac{\exp\left(-\frac{hCE_k}{kT}\right)}{\exp\left(-\frac{hCE_k}{kT_{ref}}\right)} \frac{[1 - \exp\left(-\frac{hCv_{kl}}{kT}\right)]}{[1 - \exp\left(-\frac{hCv_{kl}}{kT_{ref}}\right)]} \quad 2.25$$

où  $E_k$  est l'énergie de l'état du bas ( $\text{cm}^{-1}$ ) et  $Q(T) = \sum_k g_k \exp\left(-\frac{hCE_k}{kT}\right)$  est la somme de la fonction de partition interne.

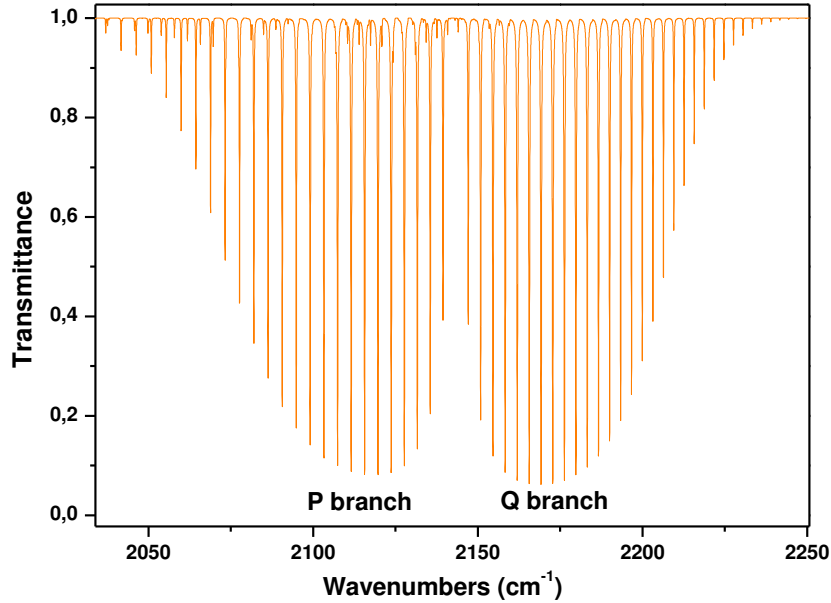
Finalement, le coefficient d'absorption, exprimé en  $\text{molécule}^{-1}/\text{cm}^2$ , d'une transition  $j$  est le produit de l'équation 2.25 avec le profil de Voigt donné par :

$$k_j^{abs.}(v, T, p) = S_j(v, T, p) \cdot f(v, v_j, T, p) \quad 2.26$$

Pour généraliser ce coefficient pour plusieurs raies proches spectralement, on somme les coefficients d'absorption de chacune des transitions  $j$  et on le multiplie par la quantité d'absorbant  $u$  de chacune des espèces moléculaires  $i$ , comme suit :

$$k_v = \sum_{i=1}^{u_g} u_i \sum_j k_j^{abs.}(v, T, p) \quad 2.27$$

La **Figure 2.10** montre l'intensité d'une bande spectrale du monoxyde de carbone (CO) simulée avec le code de transfert radiatif du LOA (ARAHMIS) (cf. Chapitre 3). Les branches P et R sont clairement visibles ainsi que les variations de positions et d'intensités des raies en fonction des différentes valeurs de  $J$ .



*Figure 2.10: Spectre de transmission du CO simulé avec le code de transfert radiatif du LOA (ARAHMIS), où les branches P et R sont clairement visibles.*

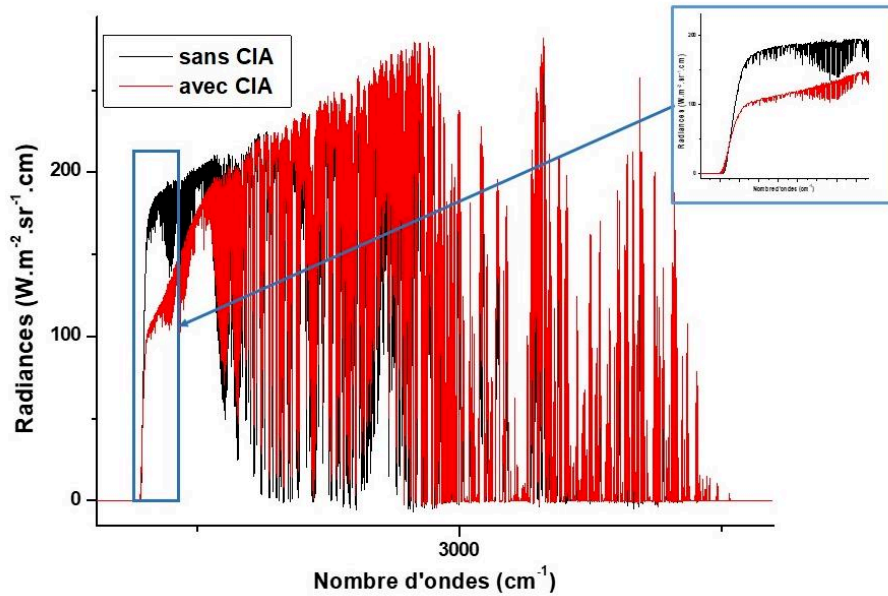
### 2.2.3. CIA et continua d'absorption.

L'approche Line-By-Line (LBL) consiste à calculer le coefficient d'absorption de chaque espèce gazeuse à tous les niveaux de l'atmosphère avec une résolution spectrale fine (*Herbin and Dubuisson 2016*). Ensuite, une convolution de la luminance (*Equation 2.6*) calculée à la résolution de l'instrument par la fonction d'appareil instrumentale (ILS, voir section 3.2.5.2) est nécessaire pour simuler la luminance telle qu'elle est mesurée par l'instrument.

Dans cette étude, ARAHMIS est le code de transfert radiatif line-by-line qui nous permet de simuler la radiance sur le domaine spectral thermique et infrarouge moyen (1.9-14.7  $\mu\text{m}$ ) correspondant à CHRIS. L'absorption gazeuse est calculée à partir de la base de données HITRAN 2016 mise à jour (*Gordon et al. 2017*).

Le profil de Voigt introduit dans la section 2.2.2.4, nous renseigne sur la forme spectrale d'une raie d'absorption dans le spectre. Cependant, lorsque les molécules interagissent, des changements transitoires du dipôle et de la polarisabilité se produisent, ce qui entraîne dans certains cas des modifications importantes de la forme de raie. D'après (*Crawford, Welsh, and Locke 1949*), si la densité du gaz est suffisamment élevée, même les gaz "inactifs" dans l'infrarouge (molécule isolée n'absorbant pas les radiations) montrent de larges bandes d'absorption ce qui entraîne le spectre appelé "Collision-Induced Absorption" (CIA).

Un des spectres CIA utilisés dans notre étude est celui de N<sub>2</sub>-air. Ce dernier s'il n'est pas utilisé engendre une erreur dans la simulation du modèle direct d'ARAHMIS comme illustré dans la *Figure 2.11*. Les CIA utilisés dans le code ARAHMIS sont issus de la base de données HITRAN (*Karman et al. 2019*).



**Figure 2.11:** Comparaison entre les spectres simulés par Arahmis avec et sans le CIA de  $N_2$ -air (respectivement en rouge et noir).

En raison de l'absorption induite par  $O_2$ , un effet d'accumulation des ailes lointaines peut être observé dans certaines régions spectrales pour lesquelles le nombre et l'intensité des raies sont importants. C'est le cas de quelques molécules, particulièrement la vapeur d'eau, qui entraîne un spectre d'absorption continu appelé « continuum d'absorption ». Les continuums d'absorption pour  $H_2O$ ,  $CO_2$  (Rodimova 2018) et  $N_2O$ , qui ont une contribution importante dans l'infrarouge, proviennent du modèle MT-CKD (Clough et al. 2005a).

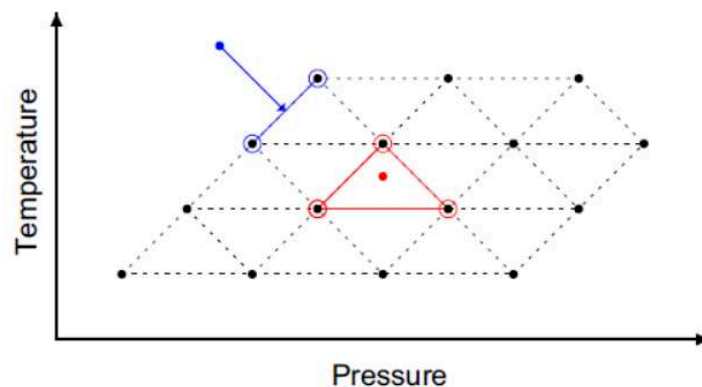
#### 2.2.4. Line-mixing et sections efficaces.

Le spectre mesuré peut être sensiblement différent de celui calculé avec le profil de Voigt habituel introduit dans la section 2.2.2.4, en raison d'un effet appelé « line-mixing ». Ce dernier décrit des situations lorsque les collisions rotationnelles sont suffisamment nombreuses et efficaces pour que certaines raies ne soient pas "isolées", c'est-à-dire lorsque les contributions des différentes transitions se chevauchent de manière significative (Hartmann and Boulet 2008).

Cet effet peut affecter les régions centrales de raies peu espacées et suffisamment élargies en pression, ainsi que les régions de faible absorption. C'est le cas des branches Q, par exemple, qui peuvent présenter un rétrécissement important par rapport au comportement des raies isolées. (Ozak, Aharonson, and Halevy 2016) discutent les spectres d'absorption calculés avec et sans les effets du line-mixing du  $CO_2$ . Les raies étroitement espacées subissent une modification de leurs formes ce qui entraîne des transferts d'absorption de la région des ailes de la bande vers le centre de la bande. Ce calcul est implémenté dans ARAHMIS mais ses effets ne seront pas discutés.

Un autre effet important affectant les spectres, notamment dans l'infrarouge thermique, est l'existence des chlorofluorocarbures (CFC). Ces molécules atmosphériques polyatomiques sont des espèces dites « lourdes » et inertes dans la troposphère. Par contre, leur stabilité leur a permis d'atteindre la stratosphère, où la dissociation par le rayonnement ultraviolet a libéré des atomes de

chlore, qui catalysent la destruction de l'ozone stratosphérique (Harrison 2018). Ces molécules sont très importantes et présentent des caractéristiques infrarouges significatives dans des régions spectrales spécifiques pour lesquelles il n'existe pas actuellement une quantité suffisante de paramètres de raies, ni mesurés à haute résolution ni calculés théoriquement, dans les bases de données. L'utilisation des CFC-11 et CFC-12 dans les réfrigérants a été interdite en 1987 mais à cause de leur longue durée de vie dans l'atmosphère (>50 ans), on peut toujours les détecter, notamment dans la partie thermique de l'infrarouge. Ces CFC sont utilisés pour simuler le spectre d'absorption de CHRIS dans la bande infrarouge thermique. Les sections efficaces de ces molécules sont interpolées en utilisant la triangulation en supposant une dépendance linéaire sur les deux axes  $p$  et  $T$  (Dudhia 2017). Aucune extrapolation n'est appliquée ; tous les points en dehors de la zone triangulée sont ramenés à la plus proche grille comme l'indique la **Figure 2.12**.



**Figure 2.12:** Diagramme montrant la méthode utilisée pour interpoler les coordonnées d'une grille irrégulière  $(p,T)$  des données de la section efficace. Les points noirs représentent l'ensemble des coordonnées  $(p,T)$  des données tabulées et les lignes pointillées la grille de triangulation ajustée. Si une coordonnée  $(p,T)$  requise se trouve dans la grille (rouge), sa valeur est interpolée à partir des trois points tabulés qui forment le triangle local. Si le point se trouve en dehors de la grille (bleu), sa valeur est obtenue à la limite la plus proche de la grille, point (indiqué par une flèche) des deux points tabulés adjacents.

## 2.3. Résolution de l'équation de transfert radiatif (ETR).

Plusieurs approches sont utilisées pour calculer la luminance et résoudre l'ETR et l'une des approches les plus couramment utilisée est le calcul à haute résolution spectrale dit raie-par-raie ou plus couramment *Line-by-Line*. Cette solution est précise mais nécessite des temps de calcul importants dans le cas d'un intervalle spectral large.

### 2.3.1. Bases de données spectroscopiques.

Pour un calcul de type LBL, on a besoin des paramètres spectroscopiques tels que la position spectrale des raies, leur largeur à mi-hauteur obtenus de calculs théoriques (ou mesures en laboratoire) issus de la mécanique quantique et de la physique statistique. Ces paramètres sont disponibles sous forme de bases de données utilisées en entrée d'ARAHMIS :

- HITRAN (High-resolution transmission molecular absorption database) qui est issue d'un travail effectué depuis les années 1960 par l'Air Force Cambridge Research Laboratories

(AFCRL), et poursuivi de nos jours par le Atomic and Molecular Physics Division, Harvard-Smithsonian Center for Astrophysics (USA) : <https://hitran.org/> (*Gordon et al. 2017*).

- GEISA (Gestion et Etude des Informations Spectroscopiques Atmosphériques) est créée en 1972 et développée par le groupe ARA (Atmospheric Radiation Analysis) du laboratoire LMD (Laboratoire de Météorologie Dynamique, France) : <https://geisa.aeris-data.fr/> (*Jacquinet-Husson et al. 2016*)

### **2.3.2. Codes LBL.**

Après avoir introduit les spectres rovibrationnels dans le domaine infrarouge, on a établi l'équation de transfert radiatif en atmosphère purement absorbante. Les paramètres nécessaires à la résolution de cette équation, notamment la position et formes des raies, sont ensuite expliquées. La résolution numérique de l'ETR est réalisée à l'aide d'un code de transfert radiatif de type raie-par-raie (Line-By-Line en anglais).

Le code LBLRTM (Line-By-Line Radiative Transfer Model) (*Clough et al. 2005b*) permet de réaliser des calculs très précis et est actuellement considéré par la communauté du transfert radiatif dans l'infrarouge comme une référence. Toutefois, il reste difficile d'utilisation, de par sa programmation il s'avère quasiment impossible à modifier malgré le fait qu'il soit open-source et est relativement couteux en temps de calcul. Ainsi, des algorithmes de type rapide tel que 4A/OP (Automatized Atmospheric Absorption Atlas) (*Scott and Chedin 1981*), ou ultra-rapide tel que RTTOV (*Saunders et al. 2018*) ont été développés. De même, dans le cadre des instruments de mesures sol, d'autres modèles spécifiques sont utilisés tels que SFIT2 (*Pougatchev and Rinsland 1995; Pougatchev, Connor, and Rinsland 1995*) ou PROFFIT 9.6 (*F Hase et al. 2004*) pour le réseau international NDACC, et GFIT (*Debra Wunch et al. 2011*) pour le réseau TCCON.

Afin de répondre aux besoins de cette thèse, un nouvel algorithme appelé ARAHMIS (Atmospheric Radiation Algorithm for High-spectral Measurements from Infrared Spectrometer) et développé au LOA (H. Herbin et F. Ducos) a été utilisé. Ce dernier est un code raie-par-raie conçu en C++ et se voulant extrêmement versatile afin de pouvoir simuler avec précisions n'importe quel type d'observation de l'infrarouge lointain jusqu'à l'UV aussi bien depuis l'espace que depuis le sol. Il a également été pensé pour pouvoir être facilement mis à jour et parallélisable. Cet algorithme est également couplé à un processus d'inversion utilisant la méthode d'estimation optimale (OEM) expliquée dans le Chapitre 4, ainsi que plusieurs autres méthodes de minimisation telles que Gauss-Newton, ou Levenberg-Marquardt.

## **Conclusion**

Pour étudier l'évolution de la composition atmosphérique, des spectres d'absorption en mode de visée au zénith sont enregistrés dans le domaine de l'infrarouge. Chaque spectre correspond à des propriétés radiatives intrinsèques des gaz enregistrés lors d'interactions avec le rayonnement solaire.

Les interactions gaz-rayonnement solaire peuvent être modélisées par l'équation du transfert radiatif qui a été exprimée dans le cas du processus d'absorption dans le domaine de l'infrarouge. La résolution de cette dernière requiert une connaissance approfondie des paramètres spectroscopiques. Pour cela, les caractéristiques des raies d'absorption et l'importance de l'effet de la pression et de la température sur le profil d'une raie ont été décrites. D'autres paramètres affectant la forme basse fréquence des spectres, comme les CIA, ont été présentés dans la deuxième partie de ce chapitre.

La résolution de l'équation de transfert radiatif par un code LBL a été discutée dans la dernière partie de ce chapitre, en soulignant l'utilisation du code ARAHMIS développé au LOA.

Les bases théoriques étant posées, les descriptions instrumentales de notre prototype instrumental utilisé dans ce travail font l'objet du chapitre suivant.



## **Bibliographie :**

- Banwell, Colin N. 1983. *Fundamentals of Molecular Spectroscopy*. McGraw-Hill.
- Clough, S. A., M. W. Shephard, E. J. Mlawer, J. S. Delamere, M. J. Iacono, K. Cady-Pereira, S. Boukabara, and P. D. Brown. 2005a. "Atmospheric Radiative Transfer Modeling: A Summary of the AER Codes." *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 91 (2): 233–44. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2004.05.058>.
- Clough, S A, M W Shephard, E J Mlawer, J S Delamere, M J Iacono, K Cady-Pereira, S Boukabara, and P D Brown. 2005b. "Atmospheric Radiative Transfer Modeling: A Summary of the AER Codes." *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 91 (2): 233–44. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2004.05.058>.
- Crawford, M F, H L Welsh, and J L Locke. 1949. "Infra-Red Absorption of Oxygen and Nitrogen Induced by Intermolecular Forces." *Physical Review* 75 (10): 1607. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.75.1607>.
- Dudhia, Anu. 2017. "The Reference Forward Model (RFM)." *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 186: 243–53. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2016.06.018>.
- Gordon, I. E., L. S. Rothman, C. Hill, R. V. Kochanov, Y. Tan, P. F. Bernath, M. Birk, et al. 2017. "The HITRAN2016 Molecular Spectroscopic Database." *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 203: 3–69. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2017.06.038>.
- Griffiths, Peter R, and James A de Haseth. 2007. *Fourier Transform Infrared Spectrometry*. *Fourier Transform Infrared Spectrometry*. Second edi. Wiley.
- Harrison, J J. 2018. "New and Improved Infrared Absorption Cross Sections for Trichlorofluoromethane (CFC-11)." *Atmos. Meas. Tech.* 11 (10): 5827–36. <https://doi.org/10.5194/amt-11-5827-2018>.
- Hartmann, Jean-Michel, C. Boulet, and Daniel Robert. 2008. *Collisional Effects on Molecular Spectra*. Elsevier Science. [https://www.m-culture.go.th/mculture\\_th/download/king9/Glossary\\_about\\_HM\\_King\\_Bhumibol\\_Adulyadej's\\_Funeral.pdf](https://www.m-culture.go.th/mculture_th/download/king9/Glossary_about_HM_King_Bhumibol_Adulyadej's_Funeral.pdf).
- Hase, F, J W Hannigan, M T Coffey, A Goldman, M Höpfner, N B Jones, C P Rinsland, and S W Wood. 2004. "Intercomparison of Retrieval Codes Used for the Analysis of High-Resolution, Ground-Based FTIR Measurements." *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 87 (1): 25–52. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2003.12.008>.
- Herbin, H., and P. Dubuisson. 2016. *Observation Infrarouge de l'atmosphère Terrestre*. ISTE editi. <https://doi.org/10.1515/9783110932409-toc>.
- Jacquinet-Husson, N, R Armante, N A Scott, A Chédin, L Crépeau, C Boutammime, A Bouhdaoui, et al. 2016. "The 2015 Edition of the GEISA Spectroscopic Database." *Journal of Molecular Spectroscopy* 327: 31–72. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jms.2016.06.007>.
- Karman, Tijs, Iouli E Gordon, Ad van der Avoird, Yury I Baranov, Christian Boulet, Brian J Drouin, Gerrit C Groenenboom, et al. 2019. "Update of the HITRAN Collision-Induced Absorption Section." *Icarus* 328: 160–75. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.icarus.2019.02.034>.
- Mendonca, J, K Strong, G C Toon, D Wunch, K Sung, N M Deutscher, D W T Griffith, and J E Franklin. 2016. "Improving Atmospheric CO<sub>2</sub> Retrievals Using Line Mixing and Speed-



- Dependence When Fitting High-Resolution Ground-Based Solar Spectra.” *Journal of Molecular Spectroscopy* 323: 15–27. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jms.2016.01.007>.
- Michalsky, Joseph J. 1988. “The Astronomical Almanac’s Algorithm for Approximate Solar Position (1950-2050).” *Solar Energy* 40 (3): 227–35. [https://doi.org/10.1016/0038-092X\(88\)90045-X](https://doi.org/10.1016/0038-092X(88)90045-X).
- Ozak, N, O Aharonson, and I Halevy. 2016. “Radiative Transfer in CO<sub>2</sub>-Rich Atmospheres: 1. Collisional Line Mixing Implies a Colder Early Mars.” *Journal of Geophysical Research: Planets* 121 (6): 965–85. <https://doi.org/10.1002/2015JE004871>.
- Pougatchev, N S, B J Connor, and CP Rinsland. 1995. “Infrared Measurements of the Ozone Vertical Distribution above Kitt Peak.” *JOURNAL OF GEOPHYSICAL RESEARCH* 100: 16,689-16,697.
- Pougatchev, N S, and C P Rinsland. 1995. “Spectroscopic Study of the Seasonal Variation of Carbon Monoxide Vertical Distribution above Kitt Peak” 100: 1409–16.
- Revercomb, Henry E, H Buijs, Hugh B Howell, D D Laporte, William L Smith, and L A Sromovsky. 1988. “Radiometric Calibration of IR Fourier Transform Spectrometers: Solution to a Problem with the High-Resolution Interferometer Sounder,” 1–9. [papers3://publication/uuid/B6A930EA-EAE1-4294-92C7-F7CC7A6BBD61](https://pubs3://publication/uuid/B6A930EA-EAE1-4294-92C7-F7CC7A6BBD61).
- Rodimova, O B. 2018. “Carbon Dioxide and Water Vapor Continuum Absorption in the Infrared Spectral Region.” *Atmospheric and Oceanic Optics* 31 (6): 564–69. <https://doi.org/10.1134/S1024856018060143>.
- Rothman, L. S., D. Jacquemart, A. Barbe, D. Chris Benner, M. Birk, L. R. Brown, M. R. Carleer, et al. 2005. “The HITRAN 2004 Molecular Spectroscopic Database.” *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 96 (2 SPEC. ISS.): 139–204. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2004.10.008>.
- Saunders, R, J Hocking, E Turner, P Rayer, D Rundle, P Brunel, J Vidot, et al. 2018. “An Update on the RTTOV Fast Radiative Transfer Model (Currently at Version 12).” *Geosci. Model Dev.* 11 (7): 2717–37. <https://doi.org/10.5194/gmd-11-2717-2018>.
- Scott, N A, and A Chedin. 1981. “A Fast Line-by-Line Method for Atmospheric Absorption Computations: The Automatized Atmospheric Absorption Atlas.” *Journal of Applied Meteorology* 20 (7): 802–12. [https://doi.org/10.1175/1520-0450\(1981\)020<0802:AFLBLM>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0450(1981)020<0802:AFLBLM>2.0.CO;2).
- Toon, Geoffrey C. 2015. “Solar Line List for the TCCON 2014 Data Release.” CaltechDATA. <https://doi.org/10.14291/TCCON.GGG2014.SOLAR.R0/1221658>.
- Trishchenko, Alexander P. 2006. “Solar Irradiance and Effective Brightness Temperature for SWIR Channels of AVHRR/NOAA and GOES Images.” *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 23 (2): 198–210. <https://doi.org/10.1175/JTECH1850.1>.
- Wcisło, P, I E Gordon, H Tran, Y Tan, S.-M. Hu, A Campargue, S Kass, et al. 2016. “The Implementation of Non-Voigt Line Profiles in the HITRAN Database: H<sub>2</sub> Case Study.” *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 177: 75–91. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2016.01.024>.
- Wunch, Debra, Geoffrey C Toon, Jean-François L Blavier, Rebecca A Washenfelter, Justus Notholt, Brian J Connor, David W T Griffith, Vanessa Sherlock, and Paul O Wennberg. 2011. “The Total Carbon Column Observing Network.” *Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 369 (1943): 2087–2112. <https://doi.org/10.1098/rsta.2010.0240>.



## Chapitre 3 : Caractérisation instrumentale de CHRIS.

### **Introduction**

La spectrométrie à transformée de Fourier est une méthode très répandue pour surveiller le changement de la composition atmosphérique, dont on présente ses bases théoriques, notamment dans le contexte de CHRIS. Actuellement, des observations continues et automatisées sont effectuées via les plateformes satellitaires et des réseaux de mesure depuis le sol (NDACC et TCCON). Ces derniers reposent sur l'exploitation de l'instrument IFS125HR qui permet d'obtenir des mesures très précises et avec très haute résolution spectrale, mais qui ne peut pas être exploité pour les mesures terrains. De plus son volume, sa stabilité optique et sa complexité de mise en œuvre, entre autres, limitent son expansion à plus grande échelle. Pour cela, des instruments plus compacts et plus faciles d'accès ont récemment été mis en œuvre.

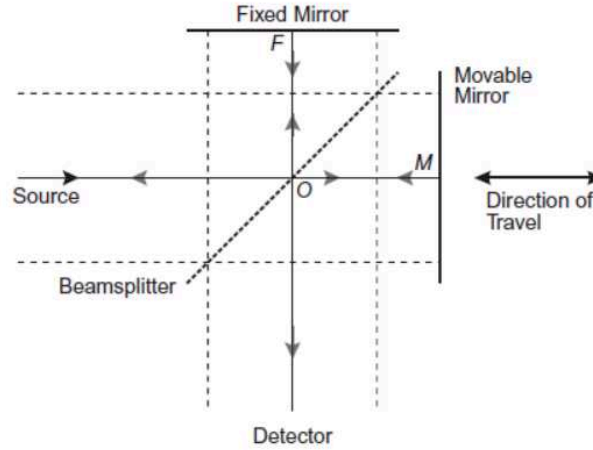
Notamment, un nouveau prototype instrumental opérant dans l'infrarouge thermique et moyen a été conçu par Bruker<sup>TM</sup>, à partir d'un cahier des charges rédigé par Hervé Herbin et Frédérique Auriol. Cet instrument appelé CHRIS (Compact High Spectral Resolution Infrared Spectrometer), et ses caractéristiques instrumentales sont présentés dans la deuxième partie de ce chapitre, notamment son rapport signal sur bruit et les artefacts spectraux.

La partie expérimentale de ce travail a consisté à caractériser la fonction d'appareil de cet instrument, en utilisant deux approches différentes. La calibration absolue à l'aide d'un corps noir cavité est effectuée pour s'affranchir des erreurs dépendantes de la linéarité du détecteur, la réflectivité des miroirs et de la longueur d'onde. L'ensemble de ce travail de caractérisation instrumentale est essentiel pour éliminer les erreurs éventuelles sur la quantité de gaz restituée.

### **3.1. Spectromètres à Transformée de Fourier.**

Les instruments à haute résolution spectrale enregistrent des spectres avec une résolution spectrale de l'ordre de grandeur de la largeur Doppler des raies, afin de résoudre la structure rovibrationnelle des espèces moléculaires gazeuses. L'outil principal utilisé en télédétection est le spectromètre à Transformée de Fourier (FTIR) qui peut mesurer d'une manière quasi-instantanée une très large gamme spectrale.

La conception des interféromètres performant dans le domaine infrarouge est basée sur celle de l'interféromètre conçu par Michelson en 1891. Cet interféromètre divise un rayon lumineux en deux faisceaux à l'aide d'une séparatrice semi réfléchissante et les recombine après l'introduction d'une différence de chemin optique. Un rayon lumineux arrive sur la séparatrice, qui réfléchit une partie du rayonnement vers le miroir fixe et transmet l'autre partie vers le miroir mobile. Les deux faisceaux se recombinent au niveau de la séparatrice, où la différence de chemin optique  $\delta$  dépend de la position du miroir. Cet interféromètre constitue le cœur d'un spectromètre à transformée de Fourier comme le montre la **Figure 3.1**. Après être passé par l'interféromètre de Michelson, le faisceau passe par plusieurs autres composants optiques pour être finalement collecté par le détecteur. Ce dernier détermine l'intensité en fonction de la différence de chemin optique, où la partie alternative AC (Alternative current) résultante du signal est appelée un interférogramme.



**Figure 3.1:** Le schéma de principe d'un interféromètre de Michelson. (Source : (Griffiths and de Haseth 2007))

La différence de chemin entre les deux rayons atteignant le détecteur est  $\delta = 2(OM - OF)$ , qui est appelé différence de marche optique (OPD : Optical Path Difference). Ainsi, les ondes vont interférer de manière constructive (en phase) pour les valeurs entières de  $\delta$  et destructive (hors phase) pour les valeurs demi-entières. Dans le cas d'une onde monochromatique, l'interférogramme  $I(\delta)$  qui en résulte est donc une oscillation harmonique et peut être décrite comme une fonction cosinus :

$$I(\delta) = S(v_0) (1 + \cos(2\pi v_0 \delta)), \text{ avec } v = \frac{1}{\lambda} \quad 3.1$$

Puisque le soleil est la source principale d'un FTIR, la source est polychromatique. La valeur mesurée de l'interférogramme est la résultante des interférogrammes qui correspondent à chaque nombre d'onde  $v$  :

$$\begin{aligned} I(\delta) &= \int_{-\infty}^{+\infty} S(v) (1 + \cos(2\pi v \delta)) dv \\ &= \int_{-\infty}^{+\infty} S(v) dv + \int_{-\infty}^{+\infty} S(v) \cos(2\pi v \delta) dv \\ &= I_{DC}(\delta) + I_{AC}(\delta) \end{aligned} \quad 3.2$$

Cet interférogramme est divisé en un terme constant ( $I_{DC}$ ) et un terme modulé ( $I_{AC}$ ). Ce dernier est le plus important et il est généralement appelé interférogramme. En appliquant la transformée de Fourier sur  $I(\delta)$ , on obtient le spectre :

$$S(v) = \int_{-\infty}^{+\infty} I_{AC}(\delta) \cos(2\pi v \delta) d\delta \quad 3.3$$

Mais cette fonction est paire donc elle peut être réécrite comme suit :

$$S(v) = 2 \int_0^{+\infty} I_{AC}(\delta) \cos(2\pi v \delta) d\delta \quad 3.4$$

Cette équation montre qu'en théorie, on pourrait mesurer le spectre complet sur une distance infinie (de 0 à  $+\infty$ ) à une résolution infiniment élevée. En pratique, ce n'est pas possible, pour cela la

résolution et donc la fréquence d'échantillonnage est limitée et contrôlée par un laser He-Ne précis (avantage de Connes). L'échantillonnage se fait à un nombre limité de  $\delta$  avec des distances  $\Delta\delta$  égales.

Pour des valeurs discrètes et équidistantes de  $\Delta\delta$ , la transformée de Fourier discrète (DFT : Discrete Fourier Transform) doit être appliquée :

$$\begin{aligned} I_{AC}(n\Delta\delta) &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{m=0}^{N-1} S(m\Delta\nu) \exp\left(-i2\pi \frac{nm}{N}\right) \\ S(n\Delta\nu) &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{n=0}^{N-1} I_{AC}(n\Delta\delta) \exp\left(-i2\pi \frac{nm}{N}\right) \end{aligned} \quad 3.5$$

avec  $N$  le nombre de points de mesure discrets et équidistants. Les variables continues  $\delta$  et  $\nu$  utilisées précédemment sont maintenant remplacées par  $n\Delta\delta$  et  $m\Delta\nu$  respectivement. Dans un spectre, la distance  $\Delta\nu$  est liée à  $\Delta\delta$  comme suit :

$$\Delta\nu = \frac{1}{N \Delta\delta} \quad 3.6$$

On peut donc remarquer que la résolution est inversement proportionnelle à la plus grande différence de marche optique  $OPD_{max}$ . En plus, le spectre ne doit pas contenir de fréquences supérieures à la fréquence de Nyquist en raison de l'échantillonnage discret de l'interférogramme :

$$\nu_{Nyquist} = \nu_{max} - \nu_{min} = \frac{1}{2 \Delta\delta} \quad 3.7$$

$\nu_{max}$  et  $\nu_{min}$  sont les limites supérieures et inférieures du domaine spectrale du FTIR et sont appelés limite de repliement haute (HFL : High Folding Limit) et limite de repliement basse (LFL : Low Folding Limit). Plus  $\Delta\delta$  est petit, plus la région détectable est grande. En pratique, l'analyse sur la base de la DFT avec l'équation 3.5 est rarement utilisée, puisqu'elles nécessitent beaucoup de temps. C'est pourquoi la transformation de Fourier rapide (FFT : Fast Fourier Transform) de *Cooley and Tukey 1965* est plus couramment utilisée.

En limitant la trajectoire du miroir, l'interférogramme est tronqué à l' $OPD_{max}$ , ce qui entraîne des artefacts spectraux discutés en détails dans la section 3.2.4. Ce phénomène est décrit mathématiquement comme la multiplication d'un interférogramme à l'infini par une fonction porte (ou créneau)  $D(\delta)$  (**Figure 3.2**), appelée couramment Boxcar :

$$D(\delta) = \begin{cases} 1 & \text{si } -OPD_{max} \leq \delta \leq +OPD_{max} \\ 0 & \text{si } \delta > |OPD_{max}| \end{cases} \quad 3.8$$

L'interférogramme peut être ainsi réécrit :

$$I_{AC}(\delta) = I_{\infty}(\delta) \cdot D(\delta) \quad 3.9$$

où  $I_{\infty}$  représente l'interférogramme mesuré à une distance de marche optique infinie.



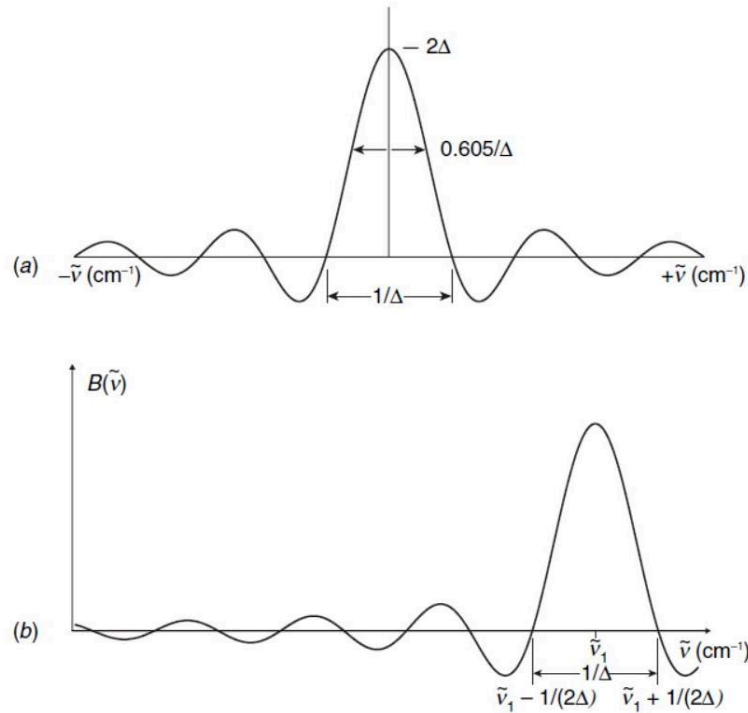
**Figure 3.2:** La fonction Boxcar utilisée pour l'intégration de l'interférogramme sur un domaine de distance fini.

Le spectre théorique  $S(\nu)$  est alors la convolution des transformées de Fourier de  $I_\infty(\delta)$  et  $D(\delta)$ , où la transformée de Fourier  $f$  de  $D(\delta)$  est la fonction suivante :

$$f = \frac{\sin(2\pi\nu OPD_{max})}{2\pi\nu OPD_{max}} \quad 3.10$$

$$\equiv \text{sinc}(2\pi\nu OPD_{max})$$

Cette fonction représente une fonction sinus cardinal théorique. En pratique, la fonction mesurée est couramment appelée *instrumental line shape* ILS (fonction d'appareil) illustrée dans la **Figure 3.3a**. Elle est centrée autour de  $\nu = \nu_0$  et coupe l'axe des nombre d'ondes en  $\nu = n/2\Delta$ , avec  $n=1,2,3,\dots$ , de sorte que la première intersection se produit à un nombre d'onde égale à  $1/2\Delta$ ,  $\Delta$  représentant l' $OPD_{max}$ .



**Figure 3.3:** (a) Transformée de Fourier d'une fonction Boxcar d'amplitude égale à 1 s'étendant de  $+\Delta$  qui représente l' $OPD_{max}$  à  $-\Delta$ ; cette fonction a la forme d'une fonction  $\text{sinc } x$ . (b) Transformée de Fourier d'un interférogramme sinusoidal généré par une ligne monochromatique ayant un nombre d'onde  $\nu_1$ . (Source : (Griffiths and de Haseth 2007))

La résolution spectrale dépend alors du chemin optique (retard maximum) de l'interféromètre ( $=1/2\Delta$ ). Plusieurs critères ont été utilisés pour définir la résolution des spectromètres. Les deux méthodes les plus populaires sont le critère de Rayleigh et la méthode de largeur à mi-hauteur (FWHM). Le critère de Rayleigh a été utilisé à l'origine pour définir la résolution d'un spectromètre à

réseau, dont l'ILS peut être représentée par une fonction ayant la forme  $\text{sinc}^2 x$ . Selon le critère de Rayleigh, deux lignes spectrales adjacentes d'intensité égale, chacune ayant une forme  $\text{sinc}^2 x$ , sont considérées résolues lorsque le centre d'une ligne est à la même fréquence que la première valeur de l'autre. Toutefois, si le même critère est appliqué à une raie qui a un ILS correspondant à une fonction  $\text{sinc} x$ , les deux raies ne sont pas résolues.

Le critère FWHM stipule que deux lignes de forme triangulaire d'intensité égale et la demi-largeur ne sont pas résolues tant que l'espacement entre les lignes n'est pas plus grand que la FWHM de l'une ou l'autre ligne. La FWHM d'une ligne dont la forme est un  $\text{sinc} x$  donnée par l'*Equation 3.10* est  $0.605/\Delta$  (voir *Tableau 3.1*). En pratique, le premier minimum est inférieur à zéro d'un montant égal à 22% de la hauteur. Si une deuxième ligne faible est présente dans le spectre au nombre d'onde de ce minimum, elle ne sera pas visible dans le spectre calculé. Les lobes secondaires de cette fonction conduisent à des valeurs irréalistes dans le spectre mesuré. Une méthode pour contourner ce problème est le processus connu sous le nom d'apodisation.

L'apodisation peut réduire les oscillations autour de la raie centrale en multipliant la fonction Boxcar par une fonction dite d'apodisation qui peut prendre différentes formes (triangulaire, Norton-Beer, ...). Cette dernière permet de diminuer significativement l'intensité des lobes secondaires, mais en contrepartie dégrade la résolution spectrale.

Le calcul de la résolution en fonction de l' $\text{OPD}_{\text{max}}$  pour différents fonctions d'apodisations est représentée dans le *Tableau 3.1*. Il faut bien noter que dans ce travail, aucune apodisation n'a été appliquée pour pouvoir exploiter la pleine résolution spectrale de l'instrument CHRIS.

ID	Name	FWHM
NO	No instrumental effect	0
BX	Boxcar (no apodisation)	$0.6033/\text{OPD}_{\text{max}}$
TR	Triangle	$0.8859/\text{OPD}_{\text{max}}$
TP	Trapeze	$0.6187/\text{OPD}_{\text{max}}$
HG	Happ-Genzell	$0.9105/\text{OPD}_{\text{max}}$
NW	Norton-Beer Weak	$0.6768/\text{OPD}_{\text{max}}$
NM	Norton-Beer Medium	$0.7820/\text{OPD}_{\text{max}}$
NS	Norton-Beer Strong	$0.8111/\text{OPD}_{\text{max}}$
B3	Blackmann-Harris 3 Points	$1.0535/\text{OPD}_{\text{max}}$
B4	Blackmann-Harris 4 Points	$1.1204/\text{OPD}_{\text{max}}$

*Tableau 3.1: Différentes fonctions d'apodisations et leur largeur de raie (résolution) correspondante.*

La résolution spectrale d'un FTIR peut être améliorée en augmentant la longueur du bras du miroir et par conséquent en augmentant la différence de marche optique maximale ( $\text{OPD}_{\text{max}}$ ).

## 3.2. CHRIS

### 3.2.1. Caractéristiques générales.

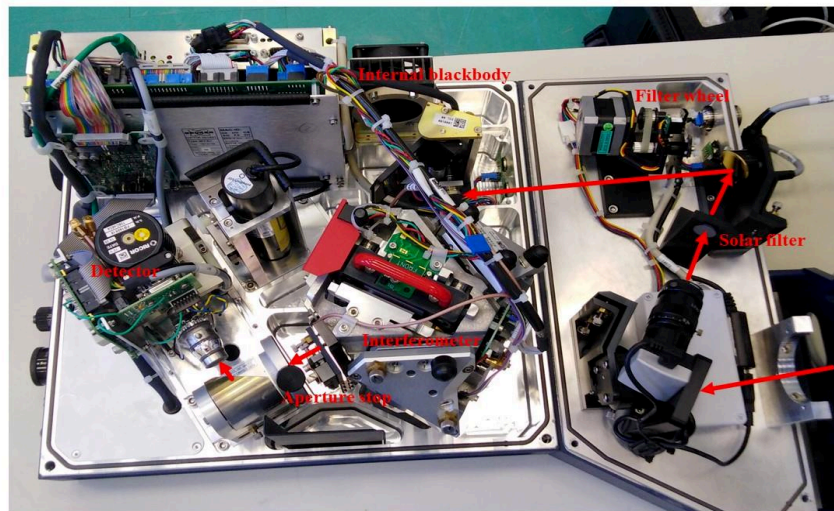
CHRIS est un prototype instrumental portable d'une masse d'environ 40 kg et de dimensions de 70x40x40 cm, ce qui le rend facile à utiliser sur le terrain. Le tracker (*Figure 3.4*), similaire à celui installé sur l'EM27/SUN est décrit en détail dans (*Gisi et al. 2011*), conduit le rayonnement solaire à travers de multiples réflexions sur les miroirs jusqu'à une fenêtre en silice dans un champ de visée (FOV) de 6 mrad.





*Figure 3.4: le Sun-Tracker de CHRIS et de l'EM27/SUN.*

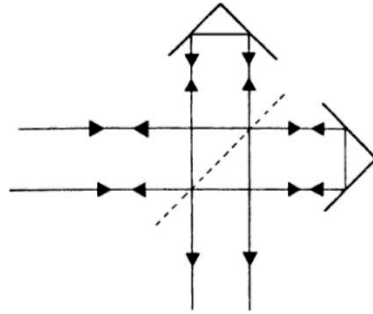
La **Figure 3.5** montre une vue intérieure de CHRIS (El Kattar, Auriol, and Herbin 2020), où le chemin optique du faisceau solaire est représenté par des flèches rouges : après de multiples réflexions sur les miroirs du tracker, le rayonnement solaire entre dans le spectromètre à travers l'ouverture et est ensuite réfléchi par le premier miroir où la caméra CCD vérifie la collimation du faisceau sur le second miroir ayant un filtre solaire. À ce niveau, CHRIS dispose d'une roue porte-filtres qui peut être équipée d'un maximum de 5 filtres optiques d'un diamètre de 25 mm. Les filtres, illustrés dans la **Figure 3.7a**, sont souvent utilisés lors des mesures solaires pour réduire le bruit et les effets de non-linéarité du détecteur, mais comme ils ont également pour effet de restreindre le domaine spectral mesurable, aucun filtre n'a été utilisé dans ce travail.



*Figure 3.5: Vue intérieure de CHRIS. Les flèches rouges illustrent le chemin optique du faisceau solaire à l'intérieur du spectromètre.*

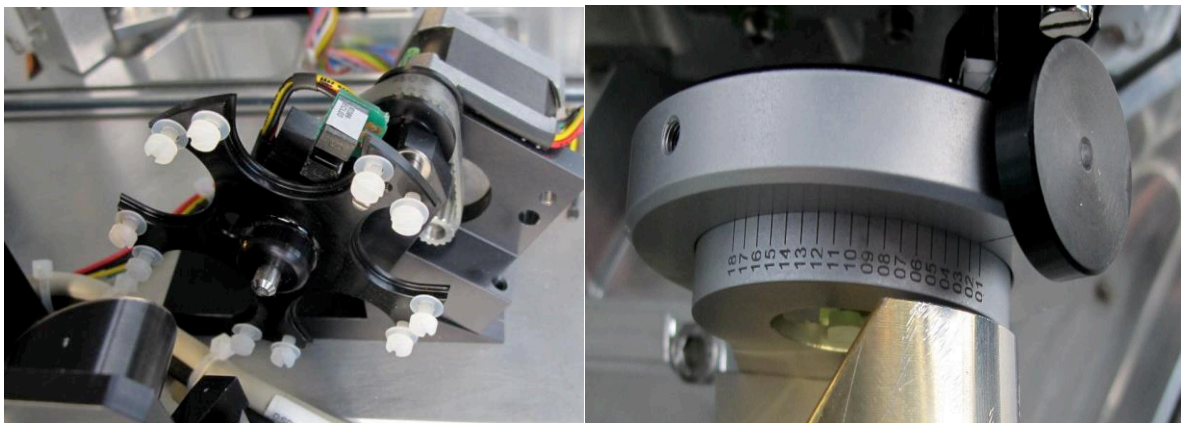
Pour ce type de spectromètre, les miroirs plans sont remplacés par des miroirs en coin de cube (cube-corner) qui renvoient le faisceau d'une manière parallèle à celui incident. La raison principale de l'utilisation de ces miroirs est leur capacité à minimiser les problèmes d'alignement dans l'interféromètre. Le mode de fonctionnement de ces miroirs est illustré dans la **Figure 3.6**.





**Figure 3.6:** Principe d'un miroir en coin de cube : les deux miroirs sont bien alignés, il n'y a donc pas de différence essentielle avec le cas d'un interféromètre de Michelson à miroir plan. (Source : (Griffiths and de Haseth 2007))

Après réflexion sur le second miroir, le faisceau entre dans l'interféromètre RockSolid™ qui possède deux miroirs en coin de cube pour assurer la stabilité de l'alignement optique du faisceau et une séparatrice en KBr. Ensuite, le rayonnement est bloqué par un diaphragme à ouverture réglable, présenté dans la **Figure 3.7b**, qui peut être réglé entre 1 et 18 mm. Cela limite le diamètre du faisceau parallèle et peut être utilisé pour réduire l'intensité du rayon lumineux en cas de saturation du détecteur. Le rayonnement restant arrive sur un détecteur MCT (tellurure de mercure-cadmium), qui se charge de le numériser pour obtenir des spectres d'absorption solaire exprimés en unités arbitraires.



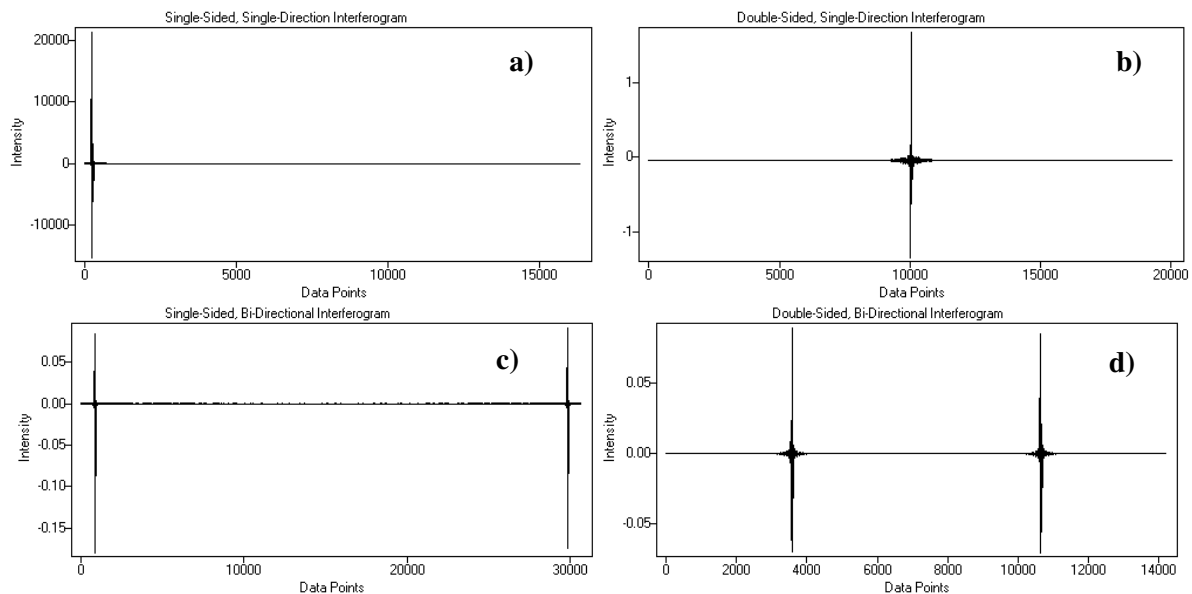
**Figure 3.7:** a) Roue à filtres qui peut être équipée jusqu'à 5 filtres optiques d'un diamètre de 25 mm chacun ; b) diaphragme d'ouverture réglable.

Ce détecteur utilise un système de refroidissement en circuit fermé de type Stirling (nommé aussi cryo-cooler), de sorte qu'on peut s'affranchir de l'utilisation de l'azote liquide. Comme les vibrations du compresseur peuvent introduire du bruit dans les spectres (voir section 3.2.4), une vitesse de balayage élevée (120 KHz) est nécessaire. Un laser à He-Ne standard ayant une longueur d'onde de 632.8 nm, contrôle l'échantillonnage de l'interférogramme. La condensation de l'air chaud et humide sur la séparatrice, due à son transport entre des environnements de température variable, est la raison principale de l'utilisation d'une cartouche de desiccant qui nous permet d'opérer le spectromètre dans diverses conditions environnementales. CHRIS possède également un corps noir interne, qui peut être chauffé jusqu'à 353 K pour s'assurer qu'il n'y a pas de dérive dans la région thermique du spectre infrarouge, et il sert également de source optique pour vérifier régulièrement la réponse du détecteur (voir section 3.2.2).

### 3.2.2. Méthode d'acquisition.

La méthode d'acquisition des données de CHRIS est expliquée comme suit : les interférogrammes sont échantillonnés et numérisés par un convertisseur analogique-numérique (ADC), puis ré-échantillonnés numériquement à des intervalles constants de différence de chemin optique par le signal du laser de référence He-Ne contrôlé par l'ouverture du diaphragme.

Lorsque le point zéro de différence de marche optique (ZPD : Zero Path Difference) est au début de l'interférogramme, il est appelé single-sided ou asymétrique (**Figure 3.8a**). Lorsqu'il est placé au milieu, l'interférogramme est appelé double-sided ou symétrique (**Figure 3.8b**). De plus, l'interférogramme peut être bidirectionnel, ce qui signifie que les données sont recueillies dans les deux sens du miroir (forward and backward). La mesure des interférogrammes single-sided possède l'avantage de la réduction du temps de collecte ce qui augmente la vitesse de calcul de la transformée de Fourier. Par contre, une correction de phase (voir section 3.2.4.3) est nécessaire pour s'affranchir de l'asymétrie que pose ces interférogrammes. La collecte des données dans CHRIS se fait en mode single-sided forward-backward, contrairement à celle dans l'EM27/SUN qui adopte le mode double-sided forward backward.

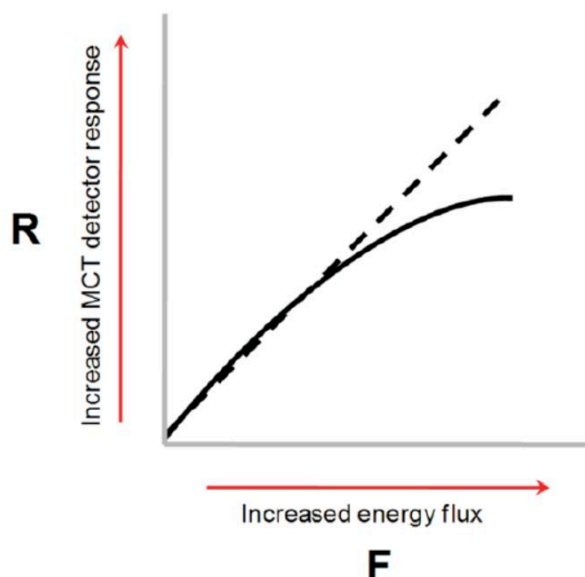


**Figure 3.8:** Différents types d'interférogrammes : a) interférogramme single-sided; b) interférogramme double-sided; c) interférogramme single-sided forward-backward; d) interférogramme double-sided forward-backward.

Pour éviter la saturation du signal tout en déterminant une ouverture appropriée du diaphragme, des mesures doivent être effectuées dans une atmosphère claire (pas de nuages ni d'aérosols) et non polluée (pas de gaz à forte réactivité chimique). À cette fin, une campagne de mesure a été menée à l'observatoire atmosphérique d'Izaña (28.30 N, 16.48 W) sur l'île de Tenerife. Cet observatoire particulier est situé à une altitude élevée (2374 m), loin des sites de pollution et possède le spectromètre IFS125HR répertorié dans les deux réseaux NDACC et TCCON.

La saturation du détecteur du CHRIS est atteinte à une valeur de 32 000 comptes numériques. Le détecteur MCT est connu pour sa grande précision photométrique. Cependant, quand le flux d'énergie augmente la réponse du détecteur MCT, illustrée dans la **Figure 3.9**, devient de plus en plus non-linéaire. Pour cela, dès son acquisition des mesures à haute altitude (Izaña) ont été effectuées dans

le but d'obtenir un signal important sans saturation, et donc déterminer une ouverture convenable du diaphragme. Les différents tests ont conduit au choix d'un diamètre de 5 mm, qui est le meilleur compromis entre la saturation et le flux d'énergie incident.

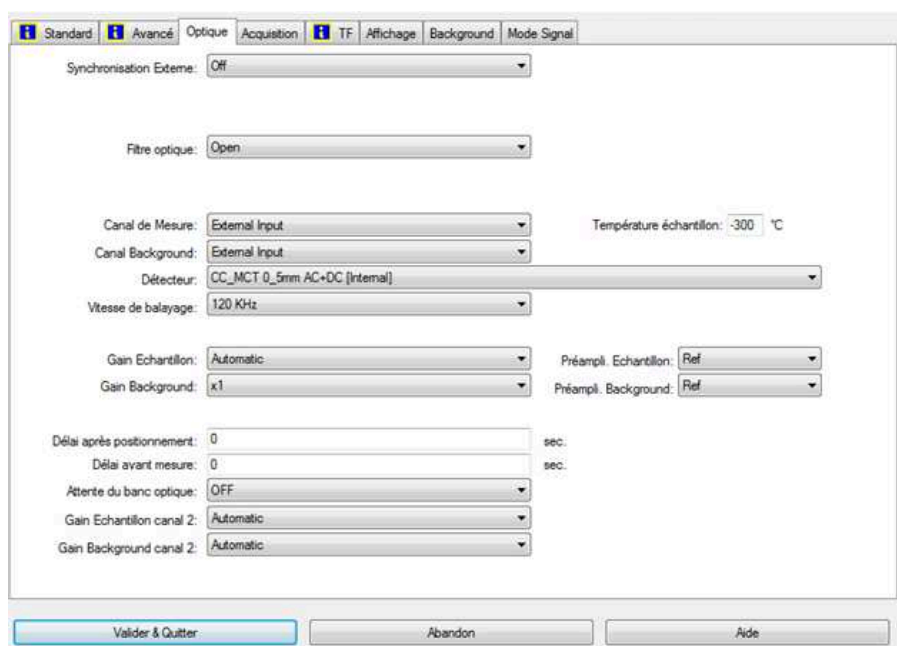


*Figure 3.9: Réponse du détecteur MCT en fonction du flux entrant.*

Chaque spectre mesuré correspond à la lumière de transmission solaire dans la colonne atmosphérique totale. La plage spectrale s'étend sur la région de  $680$  à  $5200\text{ cm}^{-1}$  ( $1,9$  à  $14,7\text{ }\mu\text{m}$ ), ce qui correspond à la région de l'infrarouge moyen (MIR).

### **3.2.3. Gain échantillon et préampli.**

Une autre caractéristique importante est l'effet de l'amplitude du gain (et des préamplis) sur les spectres, qui joue le rôle d'amplification du signal avant la numérisation. Le gain présent dans l'onglet Optique du programme OPUS et affiché dans la **Figure 3.10** contient plusieurs options : x1, x2, x4, x8, x16 et Automatic, et juste à côté se trouve le préampli qui a comme options A, B, C et Référence. Les étapes d'amplification sont approximativement :  $1 : 3.1 : 10 : 67$ . Ces paramètres doivent être choisis de telle sorte que le compte ADC du détecteur soit le plus convenable, c.-à-d. dans une gamme où il n'y a pas de saturation du détecteur. Augmenter le gain augmente le signal, mais augmente également le bruit de fond d'un montant similaire. L'utilisation d'une telle option dans la procédure de mesure peut être envisagée dans les cas où le signal est très faible, comme les mesures lunaires.



*Figure 3.10: L'onglet Optique avec les différentes options modifiables : vitesse de balayage, gain et préampli...*

Il faut noter qu'il existe d'autres moyens d'augmenter l'intensité du signal, comme l'utilisation de filtres amplificateurs de signal (**Figure 3.7a**) ou l'augmentation de l'ouverture du diaphragme (**Figure 3.7b**).

### **3.2.4. Artefacts spectraux.**

Il y a généralement plusieurs artefacts spectraux affectant un spectromètre à transformée de Fourier : l'aliasing, l'effet Picket-fence (également connu sous le nom d'erreur de biais de résolution) et la correction de phase. Ces artefacts (*Herres and Gronholz 1984*) sont bien maîtrisés dans CHRIS et sont expliqués dans les sections suivantes.

#### **3.2.4.1. Aliasing.**

Un aliasing apparaît quand la transformée de Fourier ne produit pas un spectre unique mais plutôt le spectre et son image miroir. Ce dernier entraîne des erreurs dans les abondances des colonnes restituées en raison de son chevauchement avec le spectre original. Le laser He-Ne, ayant une longueur d'onde  $\lambda$  de  $1/15800 \text{ cm}^{-1}$  (632,8 nm), génère les positions d'échantillonnage de l'interférogramme à chaque passage par le point zéro. Chaque passage par zéro se produit tous les  $\lambda/2$ , donc l'espacement minimal possible entre les échantillons  $\Delta x$  est de  $1/31600 \text{ cm}^{-1}$ . Aucun chevauchement ne se produit si le signal du spectre est nul au-dessus d'un nombre d'onde maximum  $\nu_{max}$  et si  $\nu_{max}$  est plus petit que le nombre d'onde de repliement (folding waveumber)  $\nu_f = 1/(2 \cdot \Delta x)$ . Cela correspond à  $\nu_f = 15800 \text{ cm}^{-1}$ , c'est-à-dire que la largeur de bande maximale qui peut être mesurée sans chevauchement possède une largeur de  $15800 \text{ cm}^{-1}$ . Cette erreur est donc particulièrement importante pour les spectres acquis dans le proche infrarouge. Toutefois, pour l'infrarouge moyen, la largeur de bande étudiée est bien inférieure de sorte que  $\nu_{max}$  est inférieur à  $5200 \text{ cm}^{-1}$ , alors les spectres de CHRIS ne sont pas affectés par ce problème (*Dohe 2013; Griffiths and de Haseth 2007*).

#### 3.2.4.2. L'effet Picket-fence.

L'effet picket-fence, ou l'erreur de biais de résolution, devient évident lorsque l'interférogramme contient des fréquences qui ne coïncident pas avec les points d'échantillonnage des fréquences. Ce problème est surmonté dans nos spectres par la méthode classique du facteur de remplissage par zéro (ZFF : *zero filling factor*) où des zéros sont ajoutés à la fin de l'interférogramme avant l'exécution de la transformée de Fourier, doublant ainsi la taille de l'interférogramme original. Cette procédure a pour effet d'interpoler le spectre, ce qui réduit l'erreur. De manière générale, il est préférable de doubler au moins la taille de l'interférogramme original en le remplissant par zéro, donc en choisissant un ZFF de deux. Il convient de noter que cette méthode n'introduit pas d'erreurs car la fonction d'appareil reste inchangée, et correspond simplement à une procédure de sur-échantillonnage.

#### 3.2.4.3. Correction de phase.

Les filtres électroniques conçus pour éliminer le bruit haute fréquence de l'interférogramme ont pour effet d'appliquer un angle de phase dépendant du nombre d'ondes  $\theta_v$ , notamment pour les mesures en single-sided, similaires à celles acquises par CHRIS. Pour comprendre ce processus, on doit, dans un premier temps, présenter l'interférogramme réellement mesuré. Pour cela l'équation 3.2 devient :

$$I(\delta) = \int_0^{+\infty} S(v) \cos(2\pi v \delta - \theta_v) dv \quad 3.11$$

D'après la relation trigonométrique :  $\cos(\alpha - \beta) = \cos \alpha \cos \beta + \sin \alpha \sin \beta$ , on peut voir qu'une fonction sinusoïdale est ajoutée à l'interférogramme. Deux propriétés des ondes sin et cos se présentent ici :

- a)  $\cos \varphi$  et  $\sin \varphi$  sont orthogonaux
- b)  $\cos \varphi - i \sin \varphi = \exp(-i\varphi)$

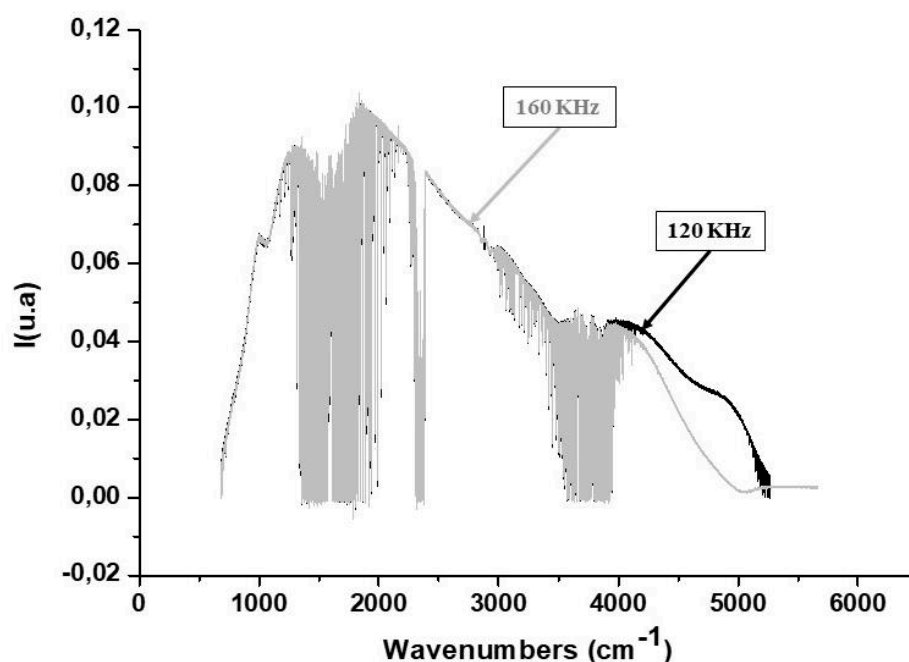
Pour cela, l'équation 3.11 peut être réécrite de la façon suivante :

$$I(\delta) = \int_0^{+\infty} S(v) \exp(-2\pi i v \delta) dv \quad 3.12$$

Pour cette représentation, on dit que  $I(\delta)$  et  $S(v)$  sont liés par la transformation complexe de Fourier. La correction de phase de Mertz est la méthode utilisée par CHRIS pour surmonter ce problème, qui consiste à extraire la partie réelle du spectre de la partie complexe par multiplication de cette dernière par l'inverse de l'exponentielle de phase, éliminant ainsi la partie complexe du spectre généré.

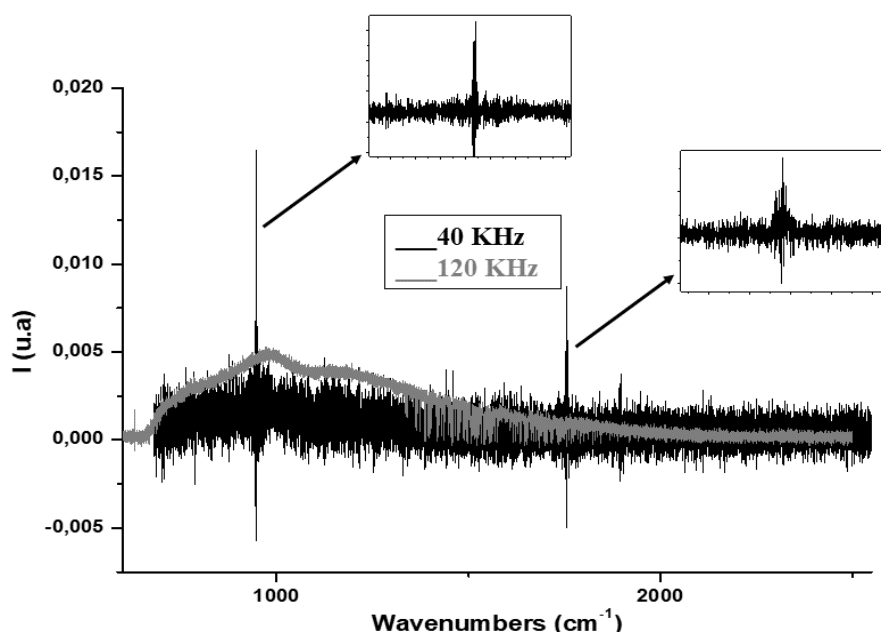
#### 3.2.4.4. Artefact spécifique à l'instrument CHRIS.

Outre ces artefacts classiques, nous avons remarqué au cours de nos tests l'apparition d'un signal dit « ghost » dépendant des vitesses de balayage. Ce signal apparaît à faible vitesses de balayage (par exemple 40 KHz). Cependant, l'utilisation d'une haute vitesse de balayage (160 KHz) diminue le spectral qui peut être couvert parce qu'on arrive à la fréquence de coupure du détecteur (**Figure 3.11**). Pour cela, le choix d'une vitesse de balayage convenable est très important.



*Figure 3.11: Spectres du corps noir externe avec deux vitesses de balayage différentes : 120 KHz (noir) et 160 KHz (gris clair).*

Ce signal est spécifique à CHRIS car il est causé par le bruit introduit par les vibrations du compresseur utilisé dans le refroidisseur, comme mentionné dans la section 3.2.1. Le choix d'une vitesse de balayage de 120 KHz, comme le montre la **Figure 3.12**, est un compromis entre deux caractéristiques importantes : l'élimination du signal « ghost », qui apparaît à des vitesses de balayage inférieures à 80 KHz, et la diminution du domaine spectral couvert à une vitesse de 160 KHz.



*Figure 3.12: Spectres du corps noir interne de CHRIS avec des vitesses de balayage de 40 KHz (noir) avec les « ghosts » dans les cadres noirs et 120 KHz (gris clair).*



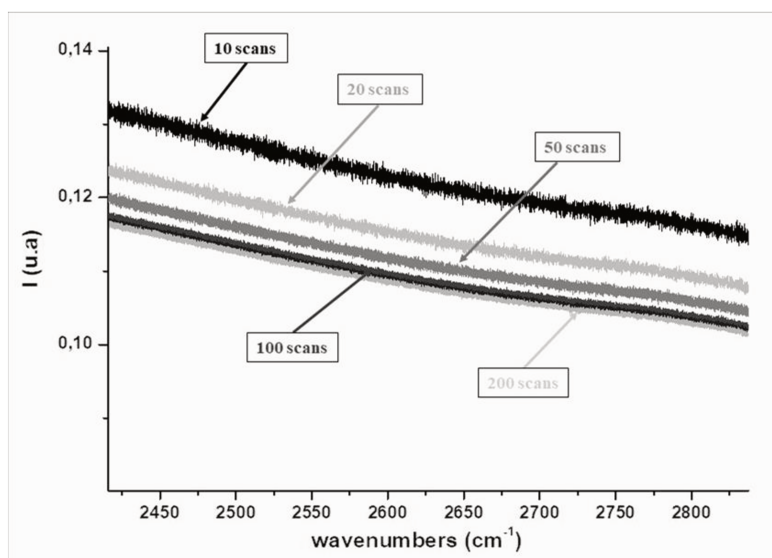
### 3.2.5. Mesures et analyses.

#### 3.2.5.1. Rapport signal sur bruit (SNR).

CHRIS est un interféromètre à balayage rapide « *rapid scan* ». Le miroir mobile se déplace à une vitesse constante pendant chaque scan. Le SNR du spectre est amélioré par des mesures répétées (un grand nombre de scans) et l'addition des interférogrammes. Le signal s'ajoute de manière cohérente, contrairement au bruit qui est aléatoire et n'augmente donc qu'avec la racine carrée du nombre des scans. Le miroir mobile commence la collecte des données au point central de l'interférogramme ou ZPD. Le miroir se déplace ensuite à travers la différence de marche jusqu'au retard maximum de l'autre côté de l'interférogramme jusqu'à la résolution désirée. L'interférogramme est échantillonné selon le critère de Nyquist. Lorsque le retard maximum a été atteint, le miroir mobile décélère pour repartir à sa position initiale. Ce processus est répété aussi souvent que nécessaire pour atteindre le SNR souhaité. Un scan correspond donc à un mouvement de déplacement du miroir mobile, de sa position initiale à sa position maximale.

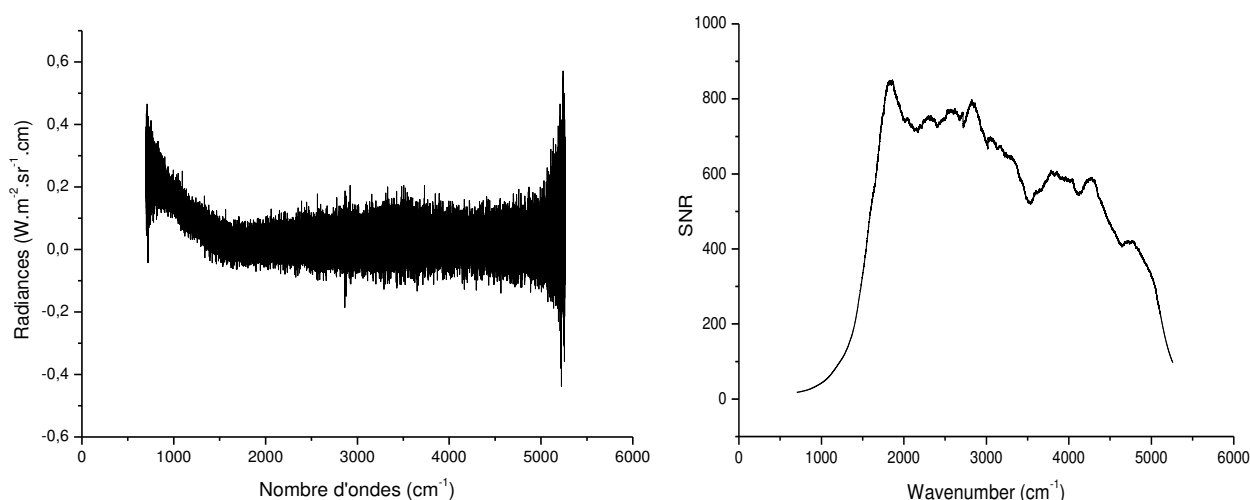
Dans la **Figure 3.13**, le spectre avec un nombre de 10 scans a une intensité plus forte que ceux à 50 et 100 scans, mais les spectres à 50 et 100 balayages sont nettement moins bruités que ceux à 10 scans. Ceci est dû au fait que l'augmentation de nombre de scans entraîne une augmentation du SNR et donc par conséquent le bruit diminue, alors les spectres avec un grand nombre de scans ont une intensité moindre que celui de 10 scans. Cependant, puisque le SNR est proportionnel à la racine carrée du temps d'acquisition, et comme le détecteur est dominé par le bruit de grenaille, il y a une limite au nombre de balayages au-delà de laquelle aucune amélioration du SNR n'est obtenue. C'est pour cela que les spectres de 100 et 200 scans ne présentent pas de différence significative.

En plus, il y a des critères spécifiques pour choisir le nombre de scans approprié. Notamment, quand on veut mesurer des espèces dont la concentration change rapidement comme par exemple les panaches volcaniques, on a besoin d'un nombre de scans relativement petit pour pouvoir suivre temporellement le changement de la composition atmosphérique. En revanche, lorsque des mesures relativement stables de la composition atmosphérique sont effectuées, par exemple les GES ( $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ ), le nombre de scans peut être porté à 100. Par exemple, le temps nécessaire pour un scan avec une vitesse de balayage de 120 KHz est de 0,83 s, donc 100 scans prennent environ 83 s, ce qui est faible par rapport à la variabilité du  $\text{CO}_2$  et du  $\text{CH}_4$  dans l'atmosphère.

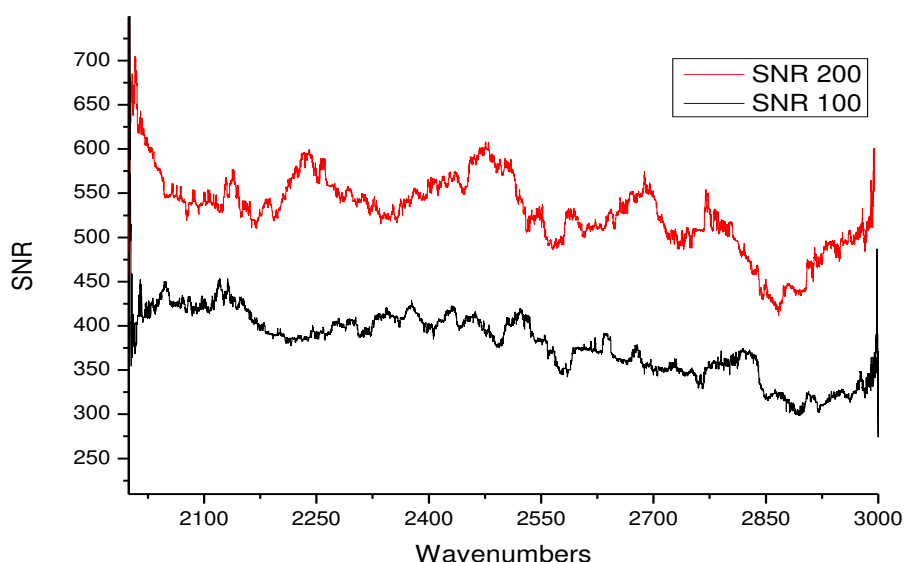


**Figure 3.13:** Amélioration du SNR avec différents scans et une vitesse de balayage fixe de 120 KHz.

Le SNR est calculé en utilisant deux méthodes différentes. La première consiste à estimer la valeur moyenne dans OPUS en utilisant la fonction SNR avec l'option "fit parabola". Les instruments EM27/SUN et IFS125HR du réseau TCCON s'appuient sur cette méthode pour calculer la valeur moyenne du SNR sur leurs domaines spectraux. Cette procédure donne une estimation du rapport signal sur bruit moyen pour CHRIS d'environ 780 qui est utilisée dans le reste de ce manuscrit. La deuxième méthode, est le rapport entre un spectre brut de CHRIS, qui est dans ce cas la fonction de Planck solaire (**Figure 2.3**), et un spectre de bruit de fond (). Le rapport signal sur bruit, qui varie ici spectralement, obtenu par cette approche est représenté sur la **Figure 3.14b**. Il faut bien noter que ce SNR varie en fonction du nombre de scans comme le montre la **Figure 3.15**.



**Figure 3.14:** a) Spectre de bruit de fond de CHRIS, b) Estimation du rapport signal-sur-bruit en fonction du nombre d'onde.



**Figure 3.15:** La variation du SNR avec le nombre de scans.

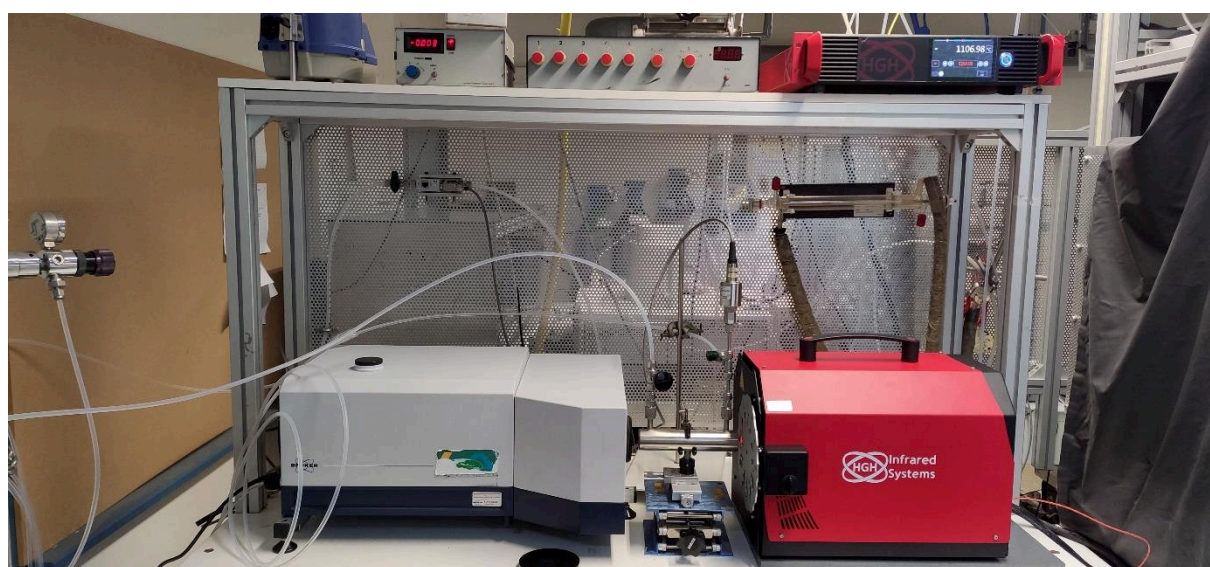
### 3.2.5.2. ILS et résolution spectrale.

La fonction d'appareil de l'instrument définit le pouvoir de résolution instrumental et affecte les observations, il est donc essentiel de parfaitement la caractériser. Une mauvaise estimation de la



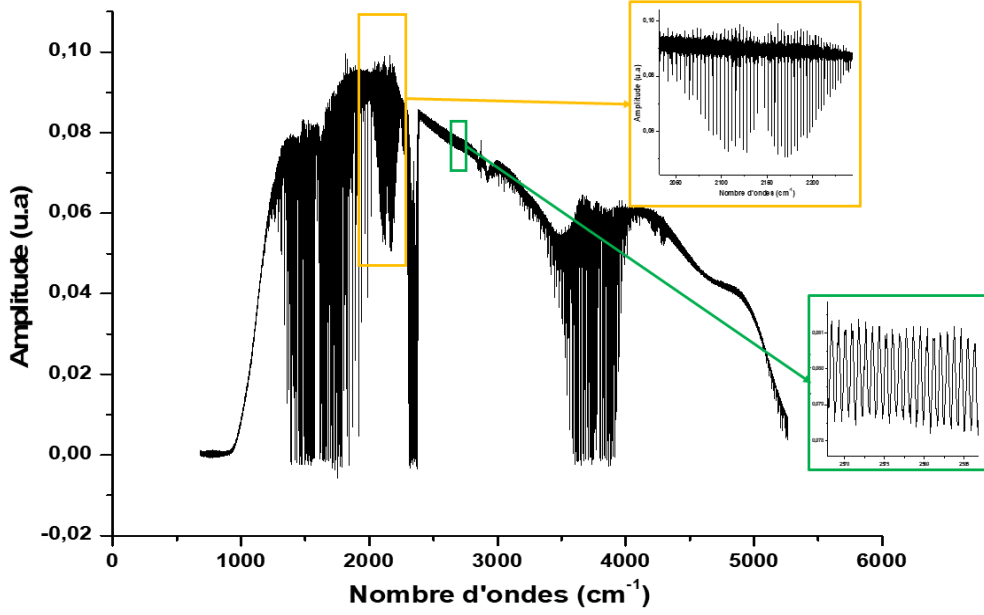
fonction d'appareil peut conduire à des erreurs de l'ordre de 10% sur la quantité restituée des gaz traces (*Bernardo and Griffith 2005*). Dans ce qui suit, on a abordé deux approches différentes pour caractériser cette fonction. La première en effectuant une mesure open-path avec le corps noir calibré HGH comme source, similaire aux travaux de *Wiacek et al. 2007*, tandis que la deuxième s'appuie sur les travaux de *Frey et al. 2015*.

La **Figure 3.16** représente la première méthode utilisée pour enregistrer un spectre open-path sans apodisation. Nos collègues du laboratoire PC2A nous ont fourni une cellule de 18 centimètres de long, avec un diamètre de 5 cm où la pression à l'intérieur est contrôlée par une jauge capacitive. Cette cellule est mise sous vide par pompage. Après avoir vérifié qu'il n'y a pas de fuite dans la cellule (pression inchangée), un flux constant de monoxyde carbone (CO) passe par la cellule au moment de l'enregistrement des spectres. Les mesures ont été faites à température ambiante donc proche des conditions de mesure standard avec une température du corps noir à 1523 K pour avoir un maximum de signal.



*Figure 3.16: Expérience de détermination de l'ILS au laboratoire PC2A.*

Le monoxyde de carbone (CO) est choisi puisqu'il absorbe au milieu de notre domaine spectral sans être totalement saturé. En plus, les raies de CO sont nettement séparées (constante rotationnelle  $B$  élevée) avec peu ou pas d'interférences avec les autres molécules gazeuses (cf. **Figure 4.1** du Chapitre 4). Cette bande, comprise entre 2050 et 2250  $\text{cm}^{-1}$ , est illustrée dans le cadre orange de la **Figure 3.17**. Il faut bien noter que la cellule utilisée possède des fenêtres planes où plusieurs réflexions se produisent ce qui fait apparaître des oscillations de grandes amplitudes sur l'ensemble du spectre illustrées dans le cadre vert de la **Figure 3.17**. Ces oscillations doivent être éliminées du spectre pour obtenir une fonction d'appareil précise.



*Figure 3.17: Le spectre du corps noir obtenu à 1523 K après circulation du CO dans la cellule à gaz. Le cadre en orange représente la bande de CO entre 2050 et 2250  $\text{cm}^{-1}$  et le cadre vert montre les oscillations liées à la réflexion du signal sur les miroirs de la cellule.*

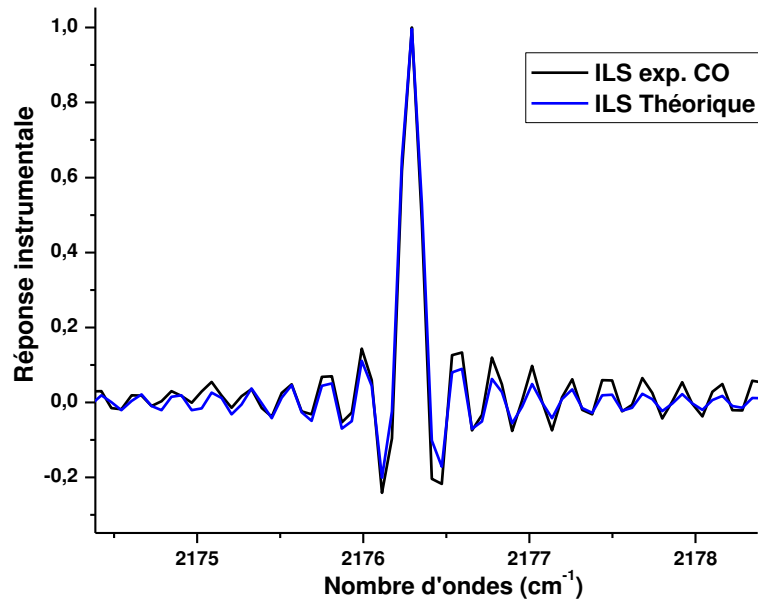
Mathématiquement, on représente la contribution de la fonction d'appareil par un produit de convolution avec le signal incident :

$$\begin{aligned} S_m(v) &= S(v) \otimes f(v) \\ \text{FFT}(S_m) &= \text{FFT}(S) \times \text{FFT}(f) \end{aligned} \quad 3.13$$

donc

$$f = \text{FFT}^{-1} \left( \frac{\text{FFT}(S_m)}{\text{FFT}(S)} \right)$$

où  $S(v)$  est le spectre calculé avec ARAHMIS à résolution infinie correspondant à l'équation 3.4,  $f(v)$  est la fonction ILS recherchée et  $S_m(v)$  est le spectre mesuré par CHRIS. La **Figure 3.18** représente les fonctions d'appareils du spectre de corps noir mesuré (en noir) corrigé des oscillations et celle théorique (en bleu). On peut remarquer qu'il n'y a pas une différence significative, notamment sur les deux premiers lobes, entre ces deux fonctions. De plus, on constate une baisse d'environ 20% sur le premier minimum, comme mentionné dans la section 3.1, qui est toujours existante pour une fonction *sinc x* respectant le critère de Nyquist (Griffiths and de Haseth 2007). Toutefois, il y a une légère augmentation des lobes secondaires par rapport à ceux théoriques.



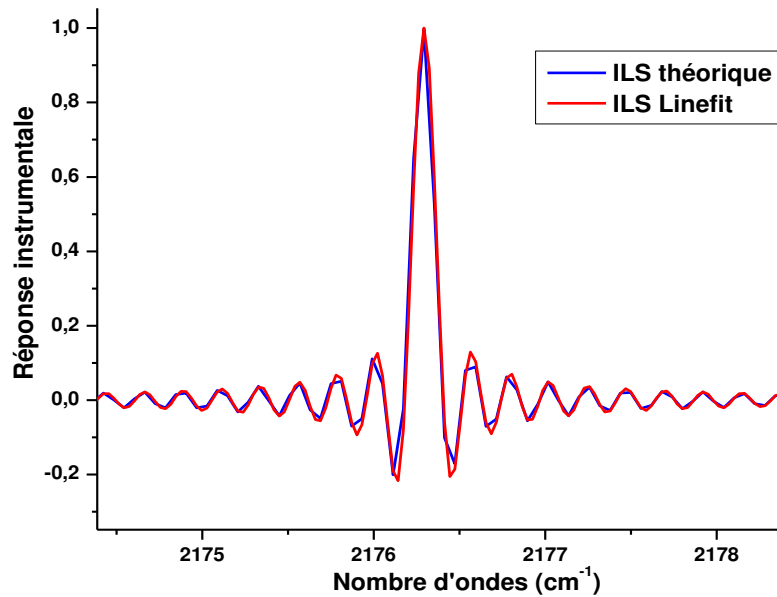
**Figure 3.18:** Schéma de la réponse de l'instrument (fonction ILS) expérimentale dérivée du spectre CO de corps noir (en noir) et celle théorique (en bleu).

La deuxième approche consiste à enregistrer des spectres open-path à l'aide d'une source de lumière externe à quelques mètres de l'instrument. Les mesures ont été faites à température ambiante sous des conditions de pression, température et humidité enregistrées avec une cellule PTU de type VAISALA. Une lampe Osram Halogène 50 W est utilisée comme source de rayonnement, ainsi qu'une lentille de collimation asphérique de 5 cm de diamètre. Le système est monté sur un trépied stable et réglable en hauteur, ce qui facilite le réglage et permet d'obtenir un faisceau lumineux uniforme sur le trou d'entrée de CHRIS, comme illustré dans la **Figure 3.19**. Une alimentation stabilisée en courant continu est utilisée. La distance entre l'instrument et la lampe ne doit pas être choisie trop petite car dans cette procédure le chemin optique dans l'instrument est négligé, ainsi que la chaleur de la lampe pourrait introduire une erreur systématique (Frey et al. 2015).



*Figure 3.19: Expérience de détermination de l'ILS au centre du CNES sur le site de Aire-sur-l'Adour.*

La fonction d'appareil est restituée à partir de l'enregistrement de plusieurs raies de  $H_2O$  et du logiciel LINEFIT développé au laboratoire KIT (Karlsruhe Institute of Technology) (Frank Hase, Blumenstock, and Paton-Walsh 1999). Le principe de ce dernier est d'utiliser en entrées les valeurs de pressions, température et humidité relative fournies par la cellule PTU, ainsi que la distance entre l'instrument et la lampe. Le code simule alors la portion de spectre enregistrée à l'aide d'une fonction sinus cardinal théorique et va ajuster par itération successives la phase, l'intensité et la modulation en minimisant l'écart entre la simulation et le spectre enregistré par le biais d'une méthode d'estimation optimale.

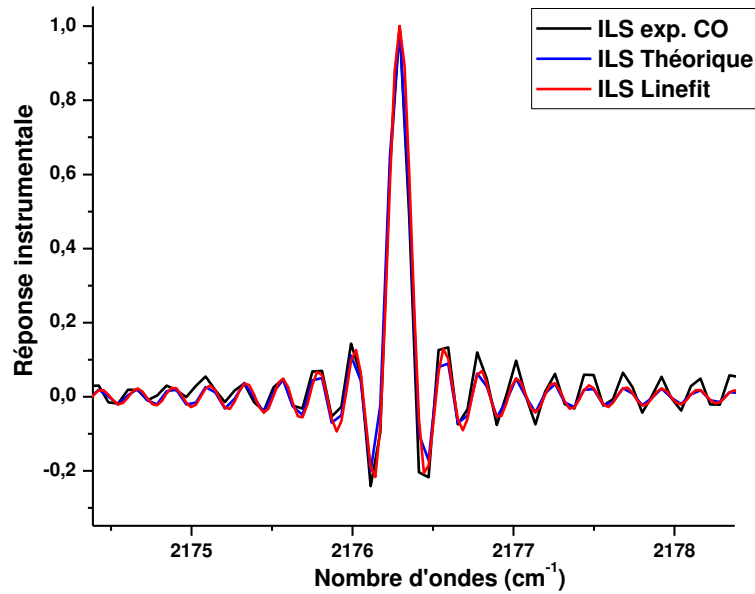


**Figure 3.20:** Schéma de l'ILS expérimentale dérivée d'une raie de vapeur d'eau du spectre de corps noir (en rouge) et celle théorique (en bleu).

La courbe rouge de la **Figure 3.20** illustre l'ILS de LINEFIT. On peut bien remarquer que la fonction théorique (en bleu) convient à celle restituée par LINEFIT (en rouge). Comme précédemment, la baisse de 20% se voit sur les deux premiers lobes.

La fonction ILS nous a permis de déterminer un  $OPD_{max}$  de 4,42 cm correspondant à une résolution spectrale de  $0,135 \text{ cm}^{-1}$  en utilisant la fonction Boxcar. Les spectres CHRIS sont échantillonnés tous les  $0.06025 \text{ cm}^{-1}$ , en respectant le critère de Nyquist.

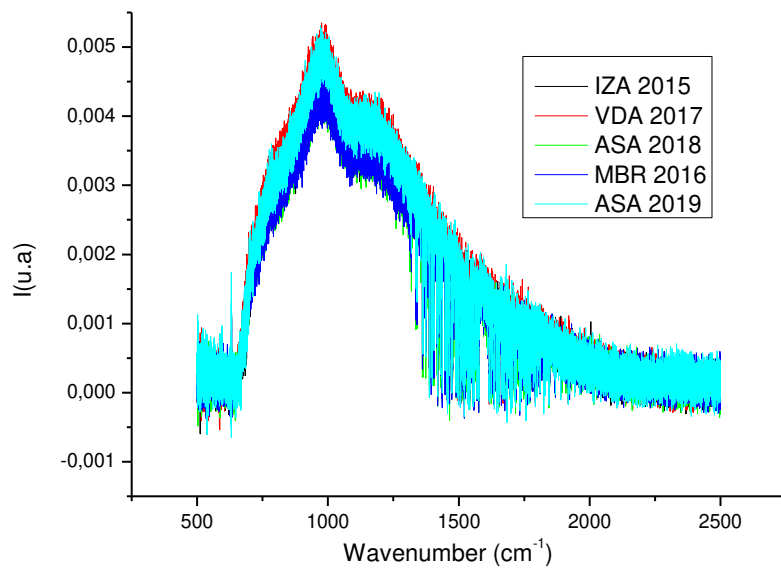
Pour conclure, on a superposé les trois fonctions dans la **Figure 3.21** pour pouvoir comparer les différentes méthodes de restitution de l'ILS. On peut s'apercevoir que les deux méthodes donnent des résultats cohérents mais avec un écart au niveau de l'intensité des lobes secondaires. Cela peut être expliqué par l'existence des oscillations liées à la réflexion des fenêtres planes de la cellule de CO qui entraînent une légère déviation. Par contre, il faut bien noter que l'approche de la cellule de CO est normalement plus précise puisqu'on traite le spectre CHRIS mesuré avec le chemin optique de la cellule.



**Figure 3.21:** Schéma de la réponse de l'instrument (fonction ILS) expérimentale dérivée du spectre CO de corps noir (en noir), théorique (en bleu) et celle dérivée de LINEFIT (en rouge).

### 3.2.5.3. Stabilité radiométrique.

Pendant les campagnes et après de longs transports, des mesures constantes du corps noir interne, qui peut être chauffé jusqu'à 353 K, sont effectuées dans la région infrarouge thermique qui est la plus affectée par les dérives. La **Figure 3.22** montre les variations du corps noir interne au cours de plusieurs campagnes de terrain : on peut observer une petite fluctuation en fonction des conditions de mesure, mais selon les lieux et même les années, aucune dérive systématique ne peut être détectée, ce qui nous permet d'affirmer que l'instrument est assez stable entre chaque calibration en laboratoire.



**Figure 3.22:** La stabilité radiométrique de l'instrument obtenue en suivant les variations du corps noir interne au cours de multiples campagnes de terrain. IZA: Izana; MBR: M'Bour; VDA: Villeneuve d'Ascq; ASA: Aire-sur-l'Adour.

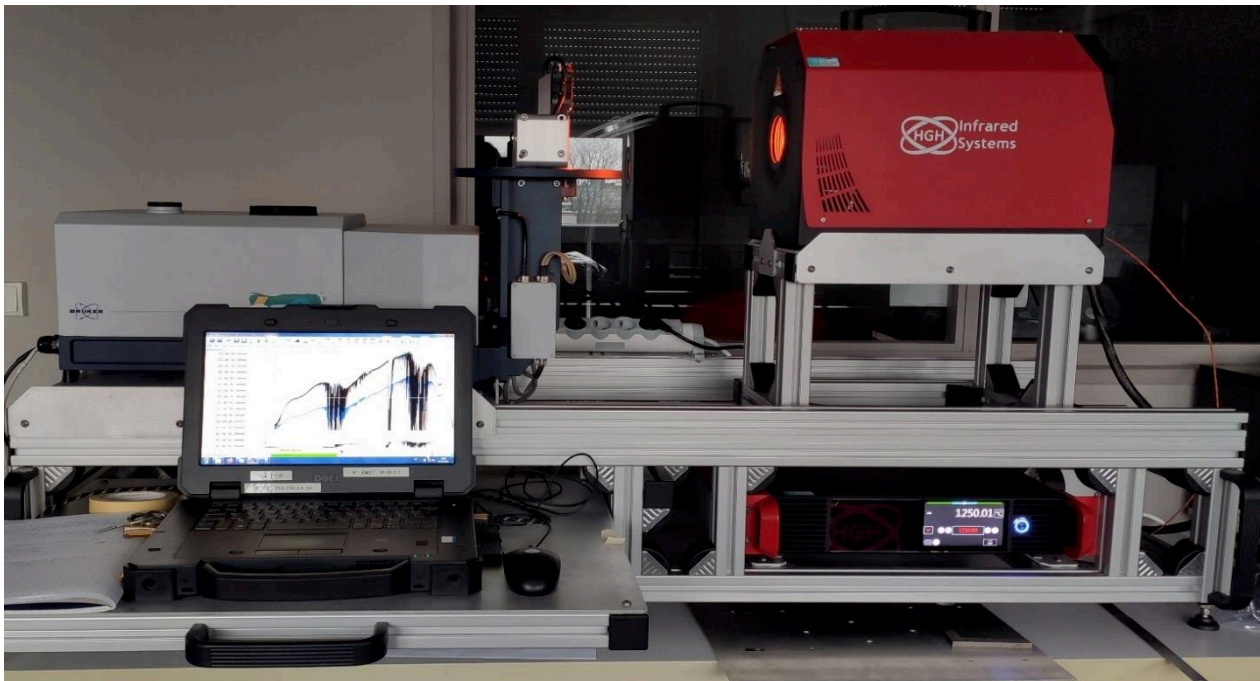


#### 3.2.5.4. Calibration radiométrique.

Dans ce qui vient, les calibrations spectrale et radiométrique sont discutées afin de convertir les spectres de comptes numériques (exprimés en unités arbitraires) en luminance ( $W.m^{-2}sr^{-1}cm$ ).

Pour un instrument ayant la résolution de CHRIS, les erreurs dépendantes de la sensibilité du détecteur en fonction de la longueur d'onde, de la réflectivité de tous les miroirs et le bruit radiométrique sont amplifiées dans le processus d'inversion. Pour cela, une grande précision radiométrique et spectrale est nécessaire pour retrouver les paramètres atmosphériques à partir d'un spectre. La raison principale de l'utilisation d'un corps noir cavité est liée à la couverture spectrale de l'instrument CHRIS que le corps noir interne ne permet pas de couvrir. De plus, les raies d'absorption de la silice (orifice d'entrée) qui apparaissent dans le spectre constituent une raison supplémentaire pour calibrer l'instrument.

Nous calibrons nos spectres en utilisant la méthode de calibration en deux points expliquée dans (*Revercomb et al. 1988*). Cette méthode consiste à utiliser les observations de sources de référence de corps noirs chauds et froids qui serviront de base à la calibration en deux points à chaque nombre d'onde. Un corps noir cavité a été acquis par le LOA pour effectuer des calibrations radiométriques régulières. Ce dernier est un HGH/RCN1250N2 certifié par le LNE (Laboratoire National de métrologie et d'Essais) comme ayant une émissivité supérieure à 0,99 dans le domaine spectral couvert par CHRIS, une stabilité de 0,1 K à 1173 K, un diamètre d'ouverture variable jusqu'à 50 mm (correspondant à celui de CHRIS), et couvrant les températures de 323 à 1523 K. Ce corps noir cavité est monté sur un banc optique, comme montré dans la **Figure 3.23**, et utilisé avant et après chaque campagne de terrain pour effectuer des calibrations radiométriques absolues par des mesures à voie ouverte et s'assurer que cette calibration est stable sur tout le domaine spectral.



*Figure 3.23: Installation de l de calibration radiométrique.*

Ces deux températures de corps noir sont visualisées sur la **Figure 3.24**, pour déterminer la pente  $m$  et l'offset  $b$  (*Equations 3.14 & 3.15*) qui définit la réponse linéaire de l'instrument à chaque nombre d'onde. Ces deux paramètres peuvent être écrits d'après *Revercomb et al. 1988* :

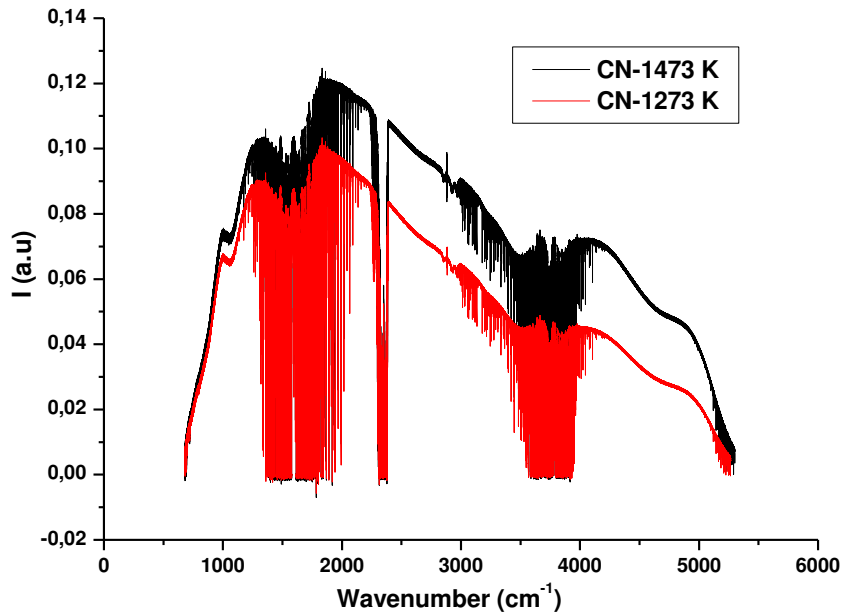
$$m = \frac{S_c - S_h}{B_v(T_c) - B_v(T_h)} \quad 3.14$$

$$b = \frac{S_c \cdot B_v(T_h) - S_h \cdot B_v(T_c)}{B_v(T_h) - B_v(T_c)} \quad 3.15$$

où  $S$  est le spectre du corps noir enregistré et  $B_v$  correspond à la luminance du corps noir de Planck calculée ; les indices  $h$  et  $c$  correspondent respectivement aux températures chaude (1473 K) et froide (1273 K) du corps noir. Enfin, le spectre calibré exprimé en  $W \cdot m^{-2} sr^{-1} cm$  est obtenu en appliquant la formule suivante :

$$L = \frac{S - b}{m} \quad 3.16$$

où  $S$  est le spectre mesuré par CHRIS.



*Figure 3.24: Les spectres corps noir cavité (CN) aux deux températures : 1273 K (en rouge) et 1473 K (en noir).*

### 3.2.5.5. Calibration spectrale.

L'échantillonnage de l'interférogramme est contrôlé par un laser à He-Ne standard, d'une longueur d'onde de 632,8 nm qui sert de référence lors de la conversion de l'échelle de distance à l'échelle de nombre d'onde. L'instrument est soumis à des changements de pression et de température puisqu'il fonctionne dans des endroits différents, donc dans des conditions météorologiques différentes. Cela entraîne une modification de l'indice de réfraction et, par conséquent, une modification de la longueur d'onde de référence du laser, ce qui entraîne une instabilité du processus de conversion et donc la nécessité d'une calibration spectrale pour réduire cette erreur.

La raie ILS définie auparavant est utilisée pour resimuler des raies d'absorption isolées de la base de données HITRAN (Gordon *et al.* 2017) en considérant des spectres non apodisés, ce qui permet d'exploiter la pleine résolution spectrale. En résumé, nous choisissons une raie d'absorption de vapeur

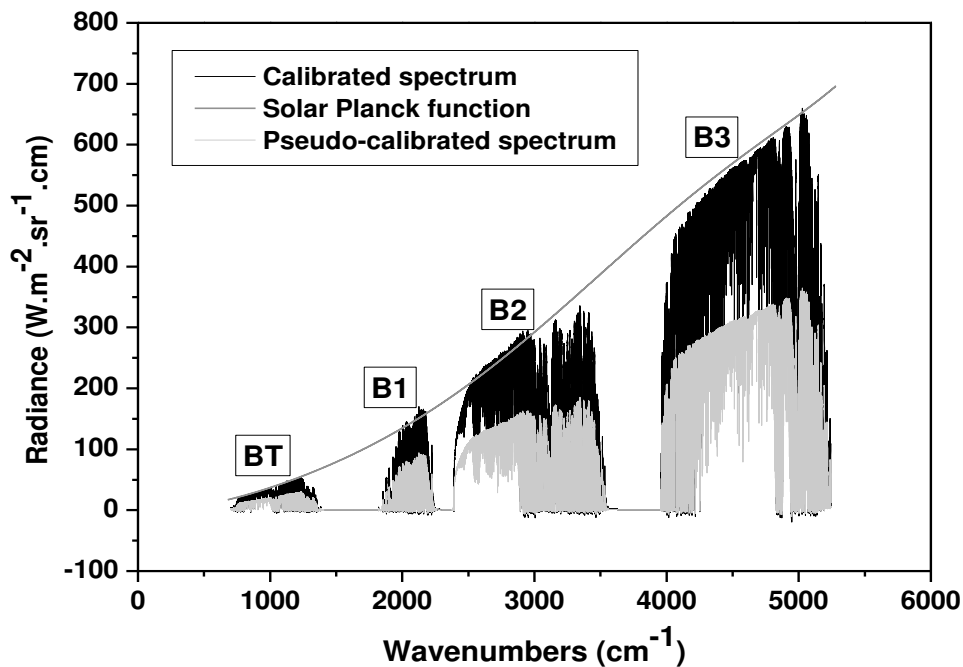


d'eau intense, non saturée et toujours présente dans les spectres avec un nombre d'onde  $\nu$ , puis nous la comparons avec la simulation et calculons son nouveau nombre d'onde  $\nu^*$  :

$$\nu^* = \nu(1 + \alpha) \quad 3.17$$

où  $\alpha$  est le facteur de calibration. La précision de cette équation est limitée à  $0,038 \text{ cm}^{-1}$ , estimée à partir de la moyenne des écarts entre les raies spectroscopiques théoriques de HITRAN et celles mesurées par CHRIS pour  $\text{H}_2\text{O}$ .

La **Figure 3.25** montre la comparaison entre un spectre calibré et un spectre non calibré ainsi que la fonction de Planck solaire. Cette fonction est calculée dans chaque domaine spectral de CHRIS déterminé à partir de *Trishchenko 2006*, abondamment expliquée dans le Chapitre 2. La procédure de calibrations spectrale et radiométrique est automatisée à l'aide d'un code Matlab afin de convertir instantanément les spectres de comptes numériques en luminance absolue.



**Figure 3.25:** Le processus de calibration (spectrale et radiométrique) transforme le spectre non calibré (gris clair) en un spectre en luminance (noir) qui correspond à la fonction de Planck solaire expliquée dans le Chapitre 2 (ligne grise continue).

La vapeur d'eau provoque la saturation que l'on observe entre les bandes, ce qui explique le signal nul. Par conséquent, nous avons divisé le spectre en quatre bandes spectrales distinctes : BT (bande thermique ;  $680\text{-}1250 \text{ cm}^{-1}$ ), B1 ( $1800\text{-}2300 \text{ cm}^{-1}$ ), B2 ( $2400\text{-}3600 \text{ cm}^{-1}$ ) et B3 ( $3900\text{-}5200 \text{ cm}^{-1}$ ). Cette annotation est utilisée pour le reste du manuscrit.

## **Conclusion**

La spectrométrie à transformée de Fourier représente un outil puissant pour l'étude de la composition atmosphérique, grâce à sa large couverture spectrale et son pouvoir de résolution qui permet de résoudre les bandes rovibrationnelles des gaz. Les notions théoriques d'une telle méthode d'observation sont présentées dans la première partie de ce chapitre aboutissant à l'explication de la fonction d'appareil qui, à son tour, définit la résolution spectrale.

La popularité des spectromètres infrarouges utilisés pour la validation satellitaire, a conduit à la conception de CHRIS dont on a présenté les caractéristiques instrumentales dans la deuxième partie de ce chapitre. Nous avons également décrit son fonctionnement ainsi que ses paramètres d'acquisition en termes de rapport signal sur bruit, de vitesse de balayage et de nombre de scans nécessaires pour obtenir des mesures précises des GES. En outre, deux méthodes instrumentales différentes ont été utilisées et comparées pour la caractérisation de la fonction d'appareil qui est un paramètre instrumental essentiel.

Finalement, afin d'éliminer les erreurs sur la quantité de gaz restitué, une calibration absolue est effectuée via un corps noir cavité. Cette étape est d'une grande importance puisqu'on peut s'affranchir des erreurs dépendantes de la linéarité du détecteur, la réflectivité des miroirs et de la longueur d'onde. Ce processus est automatisé à l'aide d'une routine Matlab qui nous permet d'obtenir un spectre calibré quasi-instantanément après la mesure.

L'ensemble des paramètres expérimentaux étant désormais parfaitement maîtrisé, le chapitre suivant aura pour objet la détermination du potentiel de mesure de cet instrument.



## **Bibliographie :**

- Bernardo, Cirilo, and David W T Griffith. 2005. "Fourier Transform Spectrometer Instrument Lineshape (ILS) Retrieval by Fourier Deconvolution." *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 95 (2): 141–50. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2004.10.001>.
- Cooley, James W., and John W. Tukey. 1965. "An Algorithm for the Machine Calculation of Complex Fourier Series." *Mathematics of Computation*. <http://www.jstor.org/>.
- Dohe, Susanne. 2013. "Measurements of Atmospheric CO<sub>2</sub> Columns Using Ground-Based FTIR Spectra."
- Frey, M, F Hase, T Blumenstock, J Groß, M Kiel, G Mengistu Tsidu, K Schäfer, M K Sha, and J Orphal. 2015. "Calibration and Instrumental Line Shape Characterization of a Set of Portable FTIR Spectrometers for Detecting Greenhouse Gas Emissions." *Atmos. Meas. Tech.* 8 (7): 3047–57. <https://doi.org/10.5194/amt-8-3047-2015>.
- Gisi, M., F. Hase, S. Dohe, and T. Blumenstock. 2011. "Camtracker: A New Camera Controlled High Precision Solar Tracker System for FTIR-Spectrometers." *Atmospheric Measurement Techniques* 4 (1): 47–54. <https://doi.org/10.5194/amt-4-47-2011>.
- Gordon, I. E., L. S. Rothman, C. Hill, R. V. Kochanov, Y. Tan, P. F. Bernath, M. Birk, et al. 2017. "The HITRAN2016 Molecular Spectroscopic Database." *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 203: 3–69. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2017.06.038>.
- Griffiths, Peter R, and James A de Haseth. 2007. *Fourier Transform Infrared Spectrometry. Fourier Transform Infrared Spectrometry*. Second edi. Wiley.
- Hase, Frank, Thomas Blumenstock, and Clare Paton-Walsh. 1999. "Analysis of the Instrumental Line Shape of High-Resolution Fourier Transform IR Spectrometers with Gas Cell Measurements and New Retrieval Software." *Applied Optics* 38 (15): 3417–22. <https://doi.org/10.1364/AO.38.003417>.
- Herres, W., and J. Gronholz. 1984. "Understanding FT-IR Data Processing." *J. Comput. Appl. Lab.* 2: 216–20.
- Kattar, Marie-Thérèse El, Frédérique Auriol, and Hervé Herbin. 2020. "Instrumental Characteristics and Potential Greenhouse Gas Measurement Capabilities of the Compact High-Spectral-Resolution Infrared Spectrometer: CHRIS." *Atmospheric Measurement Techniques* 13 (7): 3769–86. <https://doi.org/10.5194/amt-13-3769-2020>.
- Revercomb, Henry E, H Buijs, Hugh B Howell, D D Laporte, William L Smith, and L A Sromovsky. 1988. "Radiometric Calibration of IR Fourier Transform Spectrometers: Solution to a Problem with the High-Resolution Interferometer Sounder," 1–9. [papers3://publication/uuid/B6A930EA-EAE1-4294-92C7-F7CC7A6BBD61](https://ntrs.nasa.gov/publication/uuid/B6A930EA-EAE1-4294-92C7-F7CC7A6BBD61).
- Trishchenko, Alexander P. 2006. "Solar Irradiance and Effective Brightness Temperature for SWIR Channels of AVHRR/NOAA and GOES Images." *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 23 (2): 198–210. <https://doi.org/10.1175/JTECH1850.1>.
- Wiacek, Aldona, J. R. Taylor, K. Strong, R. Saari, T. E. Kerzenmacher, N. B. Jones, and D. W.T. Griffith. 2007. "Ground-Based Solar Absorption FTIR Spectroscopy: Characterization of Retrievals and First Results from a Novel Optical Design Instrument at a New NDACC Complementary Station." *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 24 (3): 432–48. <https://doi.org/10.1175/JTECH1962.1>.



## Chapitre 4 : Capacité de mesure de CHRIS.

### **Introduction**

Après avoir établi les caractéristiques instrumentales de CHRIS, on cherche dans ce chapitre à quantifier sa capacité à restituer les GES. Il est donc important, dans un premier temps, de vérifier l'adéquation du modèle direct utilisé pour simuler les mesures de l'instrument et déterminer la sensibilité de celles-ci aux concentrations gazeuses que l'on cherche à restituer. A cette fin, les bases théoriques de la méthode d'estimation optimale (OEM) sont décrites.

Pour bien analyser la capacité de mesure de CHRIS, les averaging kernels et le bilan d'erreur sont étudiés en fonction des matrices de variance (diagonales) et de covariance. En plus, les incertitudes sont expliquées en fonction de leurs contributions statistique et systématique. Les degrés de liberté sont aussi calculés pour quantifier la mesure sur la verticale pouvant être mesurée par CHRIS.

Dans ce chapitre, nous allons également comparer la capacité de mesure de GES de CHRIS à celles des autres spectromètres impliqués lors des campagnes de mesures, l'EM27/SUN et l'IFS125HR. Nous présentons également une étude de complémentarité avec l'EM27/SUN afin d'étudier l'éventuelle amélioration de la restitution en utilisant la synergie spectrale TIR/SWIR/NIR. Tous ces travaux ont un objectif commun qui est d'établir un plan de validation à long terme des produits de niveau 2 des satellites présents et futures.

Enfin, en vue de la mise en place du processus d'inversion, une sélection de canaux est présentée afin d'éliminer l'information redondante et adapter au mieux les canaux de CHRIS par rapport aux vecteurs d'états choisis.

#### **4.1. Etude de contenu en information.**

##### **4.1.1. Principe général.**

La restitution des paramètres géophysiques, qui correspond ici au processus d'inversion, peut être considérée comme la résolution d'un ensemble d'équations en présence d'une erreur expérimentale. Ce processus dans le cadre de la télédétection est un exemple typique d'un problème mathématiquement mal-posé, puisque plusieurs valeurs peuvent être solutions du système. Afin de s'affranchir de ce problème, il est possible de contraindre l'espace des solutions valides en ajoutant des conditions sur le résultat final par le biais d'une connaissance a priori de la solution et de sa variabilité.

D'une manière générale, un spectre enregistré renseigne sur la composition chimique de l'atmosphère au moment de la mesure. La méthode d'inversion, développée par *Rodgers 2000*, consiste à déduire la meilleure estimation statistique de l'état de l'atmosphère, en termes de profil vertical de gaz, à partir de l'observation qui est le spectre en luminance et du modèle direct qui consiste à résoudre l'ETR à l'aide d'un code de transfert radiatif. .

Les quantités qu'on souhaite restituer sont rassemblées dans le vecteur d'état, noté  $x$ , contenant  $n$  éléments. Ces éléments caractérisent, dans cette étude, la concentration de la colonne totale ou répartie selon la verticale ( $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ ), les paramètres de l'instrument et ceux du modèle. Les quantités mesurées par l'instrument afin de déterminer  $x$  peuvent être représentées par le vecteur de mesure  $y$  constitué par  $m$  éléments, correspondant aux luminances mesurées dans l'intervalle spectral couvert par l'instrument. Les mesures sont effectuées avec une précision finie, pour cela le bruit de mesure sera indiqué par le vecteur  $\varepsilon$ .

#### 4.1.2. Le modèle direct.

Le modèle direct  $F(x)$  est, dans notre cas, le code ARAHMIS introduit dans le Chapitre 1, qui décrit la dépendance entre le vecteur de mesure  $y$  et le vecteur d'état  $x$  en reproduisant le signal détecté par l'instrument pour un état de l'atmosphère et une géométrie donnée. Ce spectre synthétique dépend de l'état de l'atmosphère  $x$  et des paramètres  $b$  du modèle qui ne sont pas parfaitement connus comprenant, entre autres, les paramètres spectroscopiques, les paramètres non-inversés, la fonction de l'instrument, les données météorologiques et l'élévation solaire. Ce formalisme s'écrit comme suit :

$$y = F(x, b) + \varepsilon \quad 4.1$$

avec  $\varepsilon$  le vecteur de bruit sur la mesure et le paramètre  $b$  l'erreur du modèle.

Pour bien étudier le contenu en information d'une mesure, il est plus pratique de supposer un problème faiblement non-linéaire, où l'équation 4.1 autour l'état de référence  $x_0$  conduit à la formule linéaire suivante :

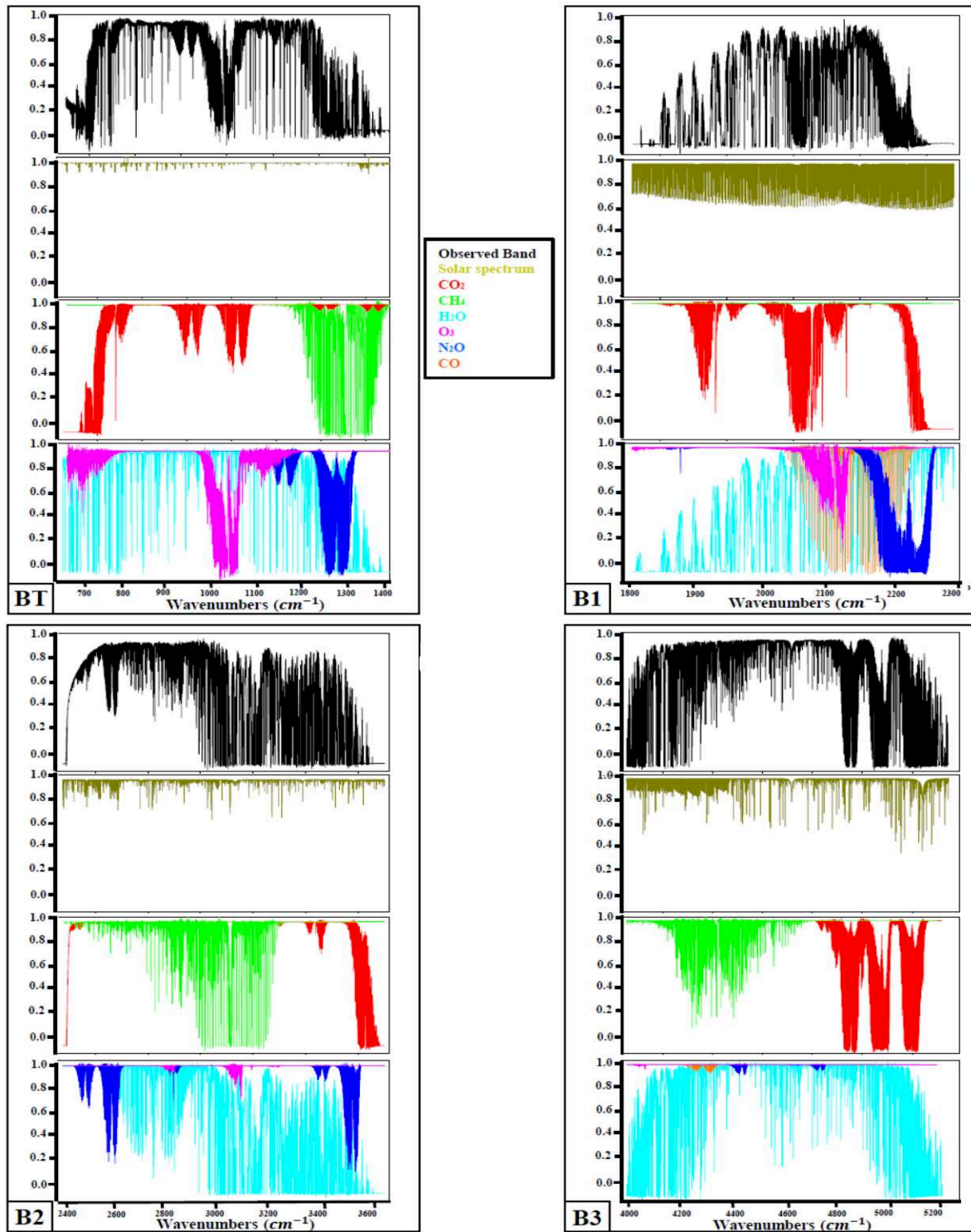
$$y - F(x_0) = \frac{\partial F(x)}{\partial x} (x - x_0) + \varepsilon = K(x - x_0) + \varepsilon \quad 4.2$$

où on introduit la matrice Jacobienne  $K(m \times n) = \partial F(x)/\partial x$  qui représente la sensibilité de la mesure  $y$  aux paramètres  $x$ .

Pour tester le modèle direct de CHRIS, on a choisi de simuler des mesures réalisées sur le site d'Izaña (Ile de Ténérife), qui offre des mesures claires et non polluées, à haute altitude et loin des principaux sites de pollution. Dans cette étude, le terme "toutes bandes" fait référence à l'utilisation simultanée des bandes BT, B1, B2 et B3 de CHRIS.

En plus des paramètres introduits dans la section 2.2 du Chapitre 2, le trajet optique doit être connue pour calculer l'absorption spectrale du rayonnement solaire lors de son passage dans l'atmosphère. Pour cela, le temps et la durée de chaque mesure sont enregistrés, à partir desquels l'élévation solaire requise (respectivement l'angle zénithal solaire (SZA)) est calculée selon la routine expliquée dans Michalsky 1988. Les calculs sont donc effectués sur la base de la concentration du profil atmosphérique a priori, notamment des informations de profil telles que : la température, la pression et l'humidité relative qui sont dérivées des radiosondes (<http://weather.uwyo.edu/upperair/sounding.html>) ; et les profils de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  qui sont issues de la base de données climatologique TCCON (Debra Wunch et al. 2016), tandis que les concentrations de  $\text{O}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}$  et  $\text{CO}$  sont calculées à partir d'un profil saisonnier typique aux latitudes moyennes.

La **Figure 4.1** montre les résultats de la simulation issus du modèle direct superposés aux quatre bandes infrarouges mesurées par CHRIS. Pour chaque bande, nous présentons le spectre solaire, l'influence des GES ( $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ ) et des principales molécules absorbantes. Nous pouvons constater que les bandes d'absorption simulées par le modèle direct sont bien en accord avec la mesure de l'instrument CHRIS dans des conditions de ciel clair.



**Figure 4.1:** Le spectre CHRIS mesuré et simulé en transmission en conditions de ciel clair à l'observatoire d'Izaña. Chaque bande est calculée à partir de l'algorithme ARAHMIS et des spectres de pseudo-transmittance solaire rapportés par (Toon 2015).



### 4.1.3. Bases théoriques de l'analyse de contenu en information.

Dans notre cas, le processus d'inversion est un problème sous-contraint qui admet souvent plusieurs solutions. La méthode d'estimation optimale introduite dans *Rodgers 2000*, contribue à trouver la meilleure solution ou la solution « optimale » de notre système. Cette méthode est très répandue pour l'inversion des paramètres géophysiques, notamment en mode de visée au zénith. Toutefois, avant l'étape finale de l'inversion, il est nécessaire d'estimer la sensibilité de cette solution optimale et quantifier sa relation à l'état réel de l'atmosphère. Pour cela, la caractérisation des diverses sources d'erreurs susceptibles de se propager jusqu'à la solution retenue est une étape primordiale de l'inversion.

Dans l'étude suivante sur le contenu de l'information et l'analyse d'erreurs, deux matrices caractérisent pleinement l'information fournie par CHRIS (*Rodgers 2000; Herbin et al 2013a*): l'averaging kernel  $\mathbf{A}$  (noyaux de moyennage) et la matrice de covariance a-posteriori  $\mathbf{S}_x$ .

La matrice  $\mathbf{A}$  permet de caractériser la capacité du système d'observation à mesurer une variation du vecteur d'état, et est définie par (*Rodgers 2000*) :

$$\mathbf{A} = \frac{\partial \hat{x}}{\partial x} = \mathbf{G}\mathbf{K} \quad 4.3$$

où  $\mathbf{K}$  est la matrice jacobienne introduite dans l'équation 4.2, où chaque ligne correspond à la dérivée partielle de chaque luminance spectrale mesurée par rapport à chaque élément du vecteur d'état et  $\mathbf{K}^T$  sa transposée. La matrice de gain  $\mathbf{G}$  dont les lignes correspondent aux dérivées de l'état restitué par rapport aux luminances spectrales, est définie par :

$$\mathbf{G} = \frac{\partial \hat{x}}{\partial y} = (\mathbf{K}^T \mathbf{S}_\varepsilon^{-1} \mathbf{K} + \mathbf{S}_a^{-1})^{-1} \mathbf{K}^T \mathbf{S}_\varepsilon^{-1} \quad 4.4$$

où  $\mathbf{S}_a$  est la matrice de covariance a priori décrivant notre connaissance de l'espace d'état avant la mesure et  $\mathbf{S}_\varepsilon$  représente la matrice de covariance du modèle direct  $\mathbf{S}_f$  et de la mesure  $\mathbf{S}_m$  :

$$\mathbf{S}_\varepsilon = \mathbf{S}_m + \mathbf{K}_b \mathbf{S}_b \mathbf{K}_b^T = \mathbf{S}_m + \mathbf{S}_f \quad 4.5$$

Les éléments  $A(j, j)$  de la matrice  $\mathbf{A}$  représentent la sensibilité aux paramètres que l'on cherche à déterminer. À un niveau d'altitude donné, le pic de  $\mathbf{A}$  donne une information sur la sensibilité maximale du spectre par rapport à chaque paramètre inversé, ainsi que sa largeur totale mi-hauteur (FWHM) qui est une estimation de la résolution verticale. Ce concept peut être formalisé, en le reliant au nombre total des degrés de liberté du signal (DOFS : degrees of freedom of signal) qui est la trace de  $\mathbf{A}$ . Cette grandeur indique la quantité d'informations indépendantes que l'on peut extraire des observations par rapport au vecteur d'état. Pour un système d'observation idéal,  $\mathbf{A}$  serait égale à la matrice identité avec un DOFS égal à la taille du vecteur d'état. Par conséquent, une mesure de l'information sur chaque paramètre qu'on désire restituer est donné par le degré de liberté partiel représenté par chaque élément diagonal de  $\mathbf{A}$ .

La deuxième matrice importante dans cette étude est la matrice de covariance d'erreur  $\mathbf{S}_x$ , qui décrit notre connaissance de l'espace d'état a posteriori de la mesure. Cette matrice peut être écrite simplement comme suit :

$$\mathbf{S}_x = \mathbf{S}_{smoothing} + \mathbf{S}_{meas} + \mathbf{S}_{fwd.mod.} \quad 4.6$$

A partir de l'équation 4.5, on peut décomposer l'erreur totale a posteriori en trois composantes :

- La matrice de covariance de l'erreur de lissage (*smoothing*) peut être considérée comme une estimation d'un état lissé par les noyaux de lissage moyen plutôt que comme une estimation de l'état réel :

$$\mathbf{S}_{smoothing} = (\mathbf{A} - \mathbf{I})\mathbf{S}_a(\mathbf{A} - \mathbf{I})^T \quad 4.7$$

- La matrice de covariance de l'erreur due à la mesure à travers  $\mathbf{S}_m$  qui est calculée à partir du bruit spectral :

$$\mathbf{S}_{meas} = \mathbf{G}\mathbf{S}_m\mathbf{G}^T \quad 4.8$$

- La matrice de covariance de l'erreur a posteriori à travers  $\mathbf{S}_f$  la matrice de covariance d'erreur du modèle direct, qui illustre la connaissance imparfaite des paramètres non inversés du modèle, est telle que:

$$\mathbf{S}_{fwd.mod.} = \mathbf{G}\mathbf{K}_b\mathbf{S}_b(\mathbf{G}\mathbf{K}_b)^T = \mathbf{G}\mathbf{S}_f\mathbf{G}^T \quad 4.9$$

avec  $\mathbf{S}_b$  représentant la matrice de covariance des erreurs des paramètres non inversés (voir **Tableau 4.1**).

#### **4.1.4. A priori.**

L'analyse de contenu en information utilise des spectres de luminance simulés de CHRIS dans les bandes : BT, B1, B2 et B3. Les concentrations verticales de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub> du vecteur d'état a priori  $x_a$  sont basées sur un profil discrétisé par 40 couches verticales, s'étendant du sol à 40 km de hauteur avec un pas de 1 km. En outre, le profil vertical de la vapeur d'eau, la température et l'angle zénithal solaire (SZA) sont inclus dans les paramètres non inversés et sont discutés dans la section 4.1.4.3. Les valeurs a priori et leurs variabilités sont résumées dans le **Tableau 4.1** et sont décrites dans les sections suivantes.

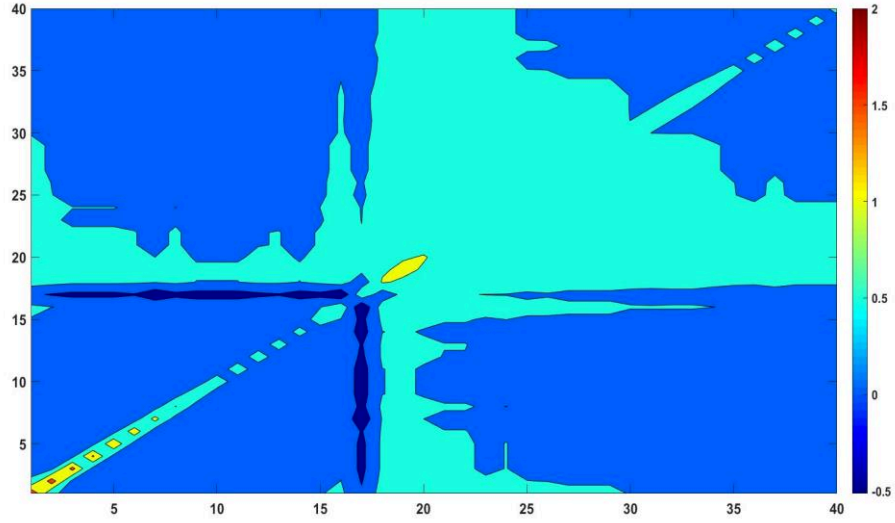
##### **4.1.4.1. Matrice de covariance a priori.**

Les mesures in situ ou la climatologie du lieu de mesure peuvent nous donner une évaluation de la matrice de covariance des erreurs a priori  $\mathbf{S}_a$ . Comme l'utilisation de matrices de covariance a priori diagonales est répandue pour la restitution à partir de mesures spatiales (par exemple (*De*

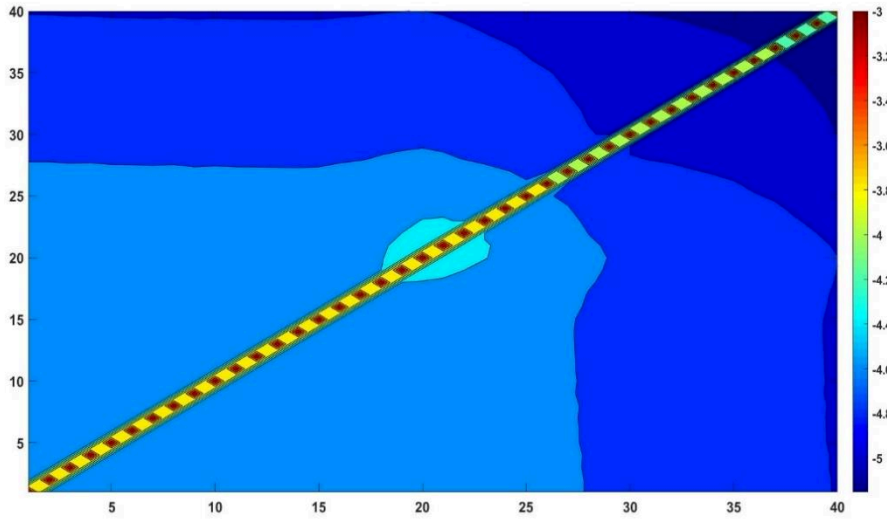
Wachter et al. 2017)), et comme cette étude est consacrée aux informations provenant de la mesure plutôt que des observations de climatologie ou in situ, nous supposons tout d'abord que  $\mathbf{S}_a$  est une matrice diagonale dont le  $i^{\text{ème}}$  élément diagonal ( $\mathbf{S}_{a,ii}$ ) est défini comme suit:

$$\mathbf{S}_{a,ii} = \sigma_{a,i}^2 \quad \text{avec} \quad \sigma_{a,i} = x_{a,i} \cdot \frac{p_{\text{error}}}{100} \quad 4.10$$

où  $\sigma_{a,i}$  représente l'écart-type. L'indice  $i$  représente le  $i^{\text{ème}}$  paramètre du vecteur d'état. L'erreur a priori du profil de  $\text{CO}_2$  est estimée à partir de *U. Schmidt 1991*. L'erreur a priori de  $\text{CH}_4$  est fixée à  $p_{\text{error}} = 5\%$ , comme celle utilisée dans *Razavi et al. 2009* pour la restitution du méthane obtenu à partir de l'instrument IASI. Néanmoins, la corrélation des couches verticales est davantage exprimée par les éléments de la matrice hors diagonale. Pour cela nous utilisons également une matrice de covariance a priori, illustrée dans la **Figure 4.2**, où la climatologie dérivée du réseau TCCON est utilisée pour construire cette matrice. Cette dernière est similaire à celle utilisée dans *Eguchi et al. (2010)*, où on a combiné la climatologie issue du modèle NCEP pour les profils de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  sur l'année (2015) et les éléments diagonaux de la matrice de covariance diagonale. L'étude avec ces deux matrices de covariance est présentée pour CHRIS dans les sections qui suivent.



a)



b)

**Figure 4.2:** La matrice de covariance a priori de **a)**  $\text{CO}_2$  (ppm) et **b)**  $\text{CH}_4$  (ppb) exprimées en  $\text{Log}_{10}$ , similaires à celle utilisée dans Eguchi et al. 2010.

#### 4.1.4.2. Matrice de covariance de mesure.

La matrice de covariance des erreurs de mesure est déterminée à partir des performances et la précision de l'instrument. La précision est liée au bruit radiométrique exprimé par le rapport signal-sur-bruit. Cette matrice de covariance des erreurs est supposée être diagonale, et peut être exprimée comme suit :

$$\mathbf{S}_{m,ii} = \sigma_{m,i}^2 \quad \text{avec} \quad \sigma_{m,i} = \frac{y_i}{\text{SNR}} \quad 4.11$$

où  $\sigma_{m,i}$  est la déviation standard du  $i^{\text{ème}}$  canal spectral du vecteur mesure  $y$ , représentant le bruit en luminance. Le SNR pour CHRIS est estimé à 780 (cf. Chapitre 3) comme indiqué dans le **Tableau 4.5**, ainsi que d'autres caractéristiques instrumentales.

#### 4.1.4.3. Caractérisation et précision des paramètres non-inversés.

Les effets des paramètres non-inversés constituent une partie complexe de l'analyse d'erreurs. Dans notre cas, ces incertitudes sont limitées à l'interférence des molécules de vapeur d'eau et l'effet de la température, où une incertitude verticalement uniforme est supposée pour les deux paramètres. Il est important de noter que dans cette étude, la vapeur d'eau est considérée comme un paramètre non inversé, à des fins de comparaison avec *Herbin et al. 2013a*, mais elle fera partie du vecteur d'état restitué dans le processus d'inversion. D'une part, nous avons supposé une colonne partielle avec une incertitude ( $p_{Cmol}$ ) de 10% au lieu d'une erreur de profil pour H<sub>2</sub>O. D'autre part, nous avons supposé une incertitude réaliste de  $\delta T = 1K$ , compatible avec les valeurs typiques utilisées pour l'assimilation du European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF), sur chaque couche du profil de température. De plus, nous avons supposé une incertitude réaliste de  $0,35^\circ$  sur le SZA, correspondant à la différence de l'angle solaire lors de l'acquisition d'une mesure correspondant à 100 scans. Toutes ces variabilités sont reportées dans le **Tableau 4.1**.

La matrice de covariance des erreurs totales du modèle à terme ( $\mathbf{S}_f$ ), supposée diagonale dans la présente étude, est donnée par la somme des contributions de chaque élément diagonal, et le  $i^{\text{ème}}$  élément diagonal ( $\mathbf{S}_{f,ii}$ ) est donné par :

$$\mathbf{S}_{f,ii} = \sum_{j=1}^{n \text{ level}} \sigma_{f,T_j,i}^2 + \sigma_{f,H_2O,i}^2 + \sigma_{f,SZA,i}^2 \quad 4.12$$

Ici, les effets spectroscopiques tels que les paramètres de raie et les erreurs issues des continua ne sont pas pris en compte, mais ils sont discutés avec l'estimation de la colonne X<sub>G</sub> dans la section suivante.

Paramètres du vecteur d'état	T	H <sub>2</sub> O	SZA	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>
Valeurs a priori	Radiosondes	Radiosondes	10°/80°	TCCON database	TCCON database
Incertitude a priori	1K/couche	10%	0.35°	1.3-8%	5%

*Tableau 4.1: Paramètres du vecteur d'état a priori.*

## 4.2. Analyse de contenu en information pour les GES.

Une analyse du contenu en informations est effectuée sur l'ensemble du spectre pour CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> séparément afin de quantifier les avantages de la synergie multi-spectrale thermique et ondes courtes (TIR/SWIR). Le terme « séparément » signifie que le vecteur d'état est constitué d'une seule des concentrations de gaz ci-dessus à chaque niveau entre 0 et 40 km pour correspondre aux altitudes atteintes par le réseau TCCON et les instruments déployés durant MAGIC (ballons et avions atteignant des altitudes de plus de 25 km). Cela correspond au cas où nous avons estimé chaque profil de gaz seul alors que tous les autres paramètres atmosphériques et tous les autres profils de gaz sont connus à partir de données auxiliaires avec une variabilité ou une incertitude spécifique. Deux SZA différents (10° et 80°) sont choisis pour démontrer l'effet de la marche optique du soleil sur l'étude puisque la sensibilité est corrélée à la géométrie d'observation. De plus, deux matrices de covariance a priori différentes sont

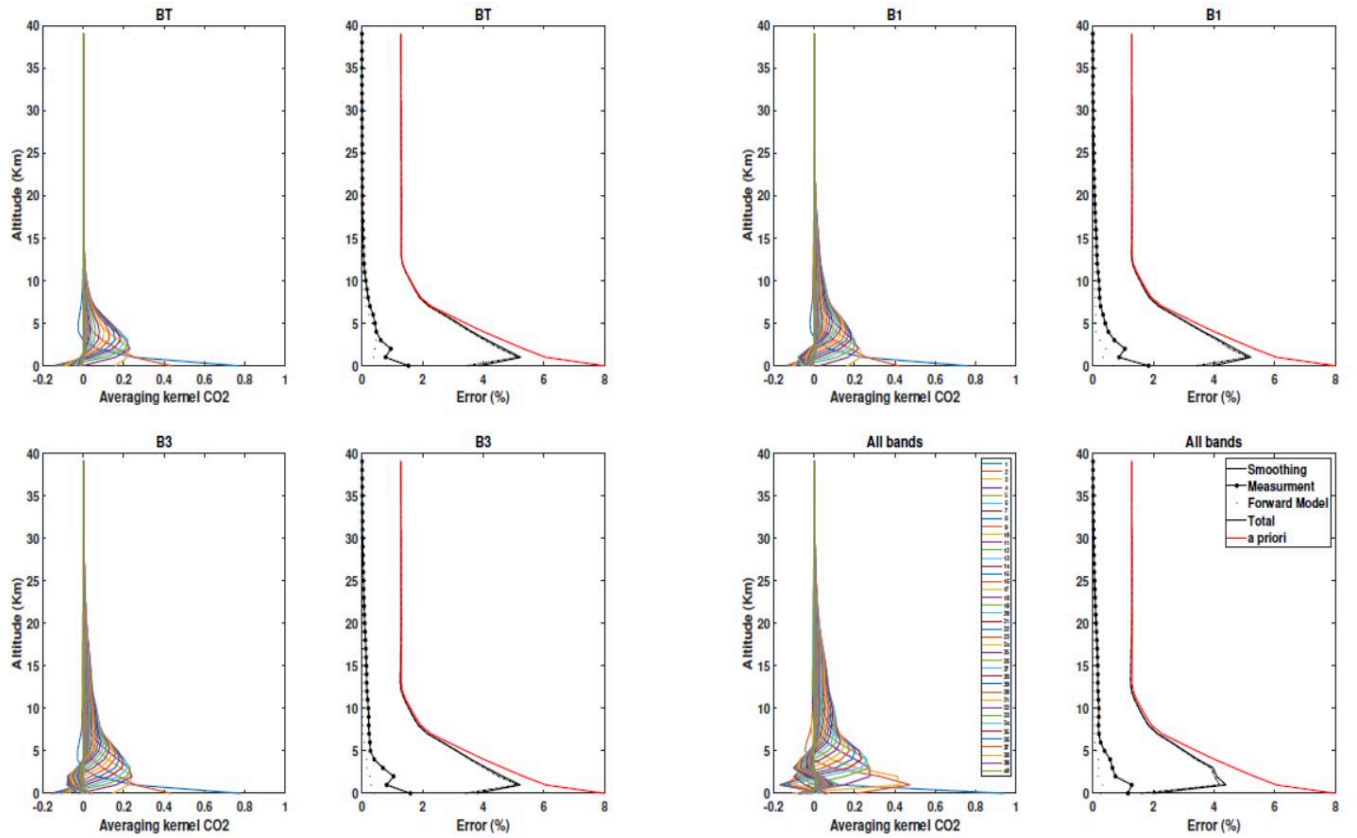
utilisées pour montrer l'effet de l'utilisation de données climatologiques décrivant la variabilité des profils des GES. Dans les sections suivantes, l'averaging kernel, le bilan d'erreur et les estimations totales des colonnes sont décrits en détails.

#### **4.2.1. Averaging kernel et estimation du bilan d'erreurs.**

La **Figure 4.3** montre l'averaging kernel  $\mathbf{A}$  et l'erreur a posteriori totale  $\mathbf{S}_x$  pour  $\text{CO}_2$  pour un SZA de  $10^\circ$ . Les figures pour SZA ( $80^\circ$ ) ne sont pas illustrées car les distributions verticales de  $\mathbf{A}$  et des erreurs sont assez similaires et ne présentent que de légères différences d'amplitude. Cependant, les résultats sont différents, c'est pourquoi ils sont discutés afin de quantifier la variabilité de l'information avec la géométrie de visée.

$\mathbf{A}$  est obtenu pour le  $\text{CO}_2$  indépendamment en utilisant la variabilité introduite dans la section 4.1.4.1, et en considérant un système d'observation composé de la bande BT, B1, B2 ou B3 séparément et de toutes les bandes ensemble pour quantifier la contribution de chacune des bandes spectrales et montrer les avantages de la synergie spectrale TIR/SWIR. Chaque ligne colorée représente les lignes de  $\mathbf{A}$  à chaque couche de la grille verticale. Chaque élément diagonal de  $\mathbf{A}$  représente le degré de liberté partiel du gaz à chaque niveau qui indique la proportion des informations fournies par la mesure. En fait, si la valeur est proche de l'unité, cela signifie que l'information provient principalement de la mesure, mais une valeur proche de zéro signifie que l'information provient principalement de notre connaissance préalable de l'état a priori. Nous pouvons clairement voir qu'à des altitudes plus basses et jusqu'à 10 km, les noyaux de moyennage sont proches de l'unité, ce qui suggère que la mesure a amélioré notre connaissance, alors qu'à des altitudes plus élevées (au-delà de 10 km), les valeurs de noyaux sont proches de zéro. Il est également important de noter qu'en utilisant toutes les bandes simultanément, la distribution des informations des noyaux est améliorée et est plus homogène le long du profil vertical.

La mesure peut fournir des informations sur le  $\text{CO}_2$  provenant du sol jusqu'à 12 km d'altitude (toutes les bandes), alors qu'à des altitudes plus élevées, les informations proviennent principalement des a priori, en raison d'une moindre sensibilité de ces gaz dans la haute troposphère. Ceci est clairement représenté dans le bilan d'erreur : l'erreur totale a posteriori (ligne noire pleine) est significativement plus faible que l'erreur a priori (ligne rouge) dans la partie inférieure de l'atmosphère (entre 0 et 12 km), ce qui signifie que la mesure a amélioré notre connaissance du profil du  $\text{CO}_2$  ; alors qu'au-delà de 12 km, l'erreur totale a posteriori est égale à l'erreur a priori, ce qui suggère une très faible sensibilité à haute altitude. De plus, on peut remarquer que l'erreur de mesure reste très faible quelle que soit la bande utilisée, ce qui prouve que l'erreur liée au SNR est négligeable. De même, l'erreur du modèle direct en fonction des paramètres non inversés reste assez modeste. Cependant, l'erreur de lissage prédomine sur les autres erreurs et devient prépondérante au-delà de 12 km, ce qui signifie que l'information est fortement contrainte par le profil a priori à haute altitude, et que peu d'information est introduite à partir de la mesure.



**Figure 4.3:** Averaging kernels et les bilans d'erreur des profils verticaux de  $\text{CO}_2$  pour les bandes BT, B1 et B3 séparément et toutes les bandes ensemble pour un SZA de  $10^\circ$  pour CHRIS. Les lignes rouges et noires pleines représentent respectivement les erreurs a priori ( $S_a$ ) et a posteriori ( $S_x$ ) ; les erreurs de lissage ( $S_{\text{smoothing}}$ ), de mesure ( $S_{\text{meas}}$ ) et de paramètres du modèle direct ( $S_{\text{fwd:mod}}$ ) sont respectivement représentées par des tirets/points, des tirets/étoiles et des points.

Une autre étude similaire a été menée, mais avec une matrice de covariance a priori non diagonale (Eguchi et al. 2010), pour se rapprocher des conditions atmosphériques réelles. La distribution verticale est plus homogène à travers toutes les couches. La forme du bilan d'erreurs est très similaire à celle de la variance. Cependant, les erreurs a priori et a posteriori sont considérablement réduites. Les erreurs de mesure et les erreurs du modèle direct restent faibles, mais il est important de noter que malgré le fait que l'erreur de lissage soit plus petite, la contrainte est plus forte. Cela a pour effet de diminuer l'incertitude, mais d'augmenter la propagation de l'erreur de lissage le long des couches verticales, ce qui explique les valeurs plus faibles du DOFS.

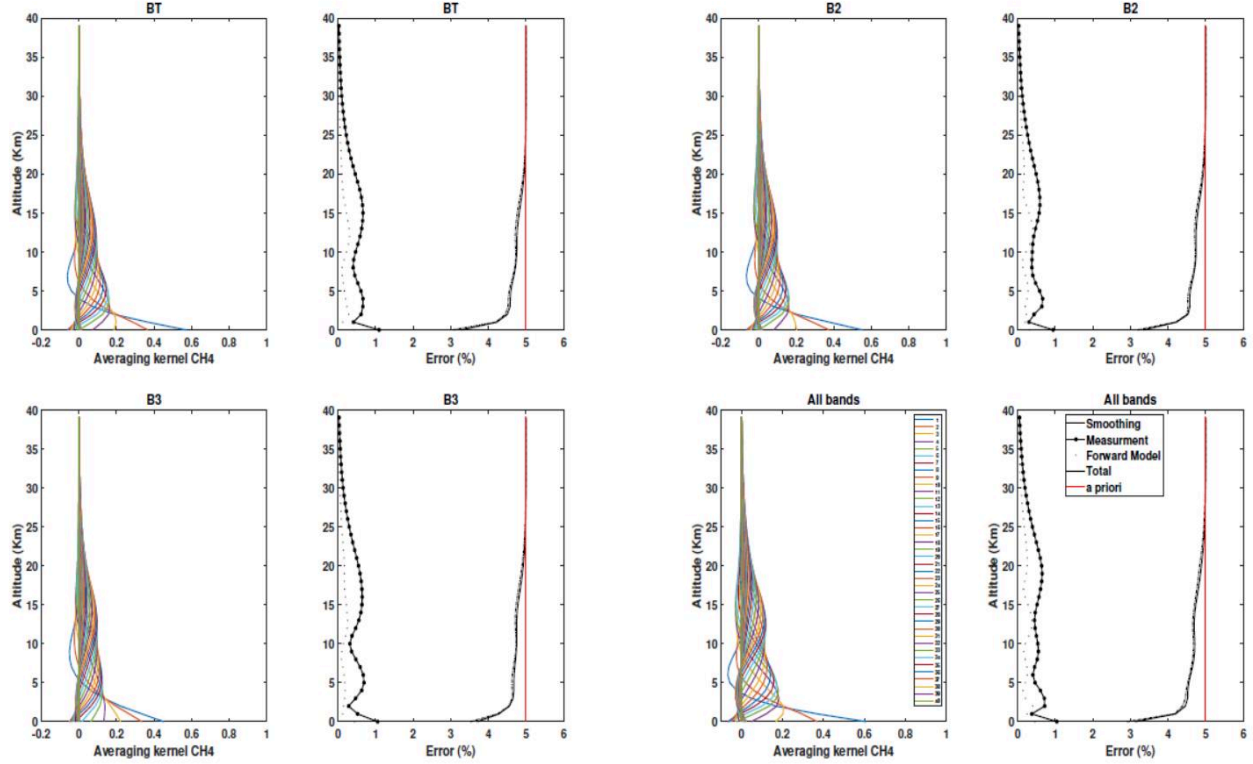
Enfin, les valeurs de DOFS totales pour le  $\text{CO}_2$  sont indiquées dans le **Tableau 4.2** pour les angles de  $10^\circ$  et  $80^\circ$ . Il montre que, pour une matrice de covariance a priori diagonale, on pourrait récupérer entre deux et trois colonnes troposphériques partielles pour le  $\text{CO}_2$ , et comme prévu, le DOFS est légèrement plus élevé à  $80^\circ$  puisque le chemin optique des rayons solaires dans chaque couche est plus long. Cependant, en utilisant une matrice de covariance a priori non diagonale, on obtient une colonne troposphérique partielle de moins, mais avec une amélioration significative de l'estimation du bilan d'erreur.

		BT	B1	B3	B4	Toutes les bandes	
		DOFS				DOFS	Erreur
CHRIS	Angle 10	2.01	2.32	2.62	–	2.95	2.89%
	Angle 80	2.56	2.67	3.34	–	3.71	2.6%
CHRIS avec covariance	Angle 10	1.45	1.7	2.15	–	2.38	1.01%
	Angle 80	1.89	1.92	2.68	–	3.08	0.94%
EM27/SUN	Angle 10	–	–	2.95	1.63	3.03	2.77%
	Angle 80	–	–	3.17	2.33	3.31	2.67%
EM27/SUN avec covariance	Angle 10	–	–	2.25	1.17	2.37	1.01%
	Angle 80	–	–	2.53	1.71	2.68	0.97%
IFS125HR	Angle 10	2.15	2.33	3.07	2.62	3.9	2.82%
	Angle 80	2.51	2.61	3.59	2.99	4.23	2.72%
IFS125HR avec covariance	Angle 10	1.66	1.85	2.86	2.3	3.28	0.97%
	Angle 80	1.97	2.14	3.04	2.61	3.53	0.95%

**Tableau 4.2:** Les DOFS et les erreurs de colonne (%) du CO<sub>2</sub> pour chaque bande et pour chaque instrument.

Le même raisonnement est suivi pour CH<sub>4</sub>: **A** est obtenu pour CH<sub>4</sub> indépendamment en utilisant la variabilité introduite dans la section 4.1.4.1, et en considérant un système d'observation composé de la bande BT, B1, B2 ou B3 séparément et de toutes les bandes ensemble. La **Figure 4.4** ci-dessous montre que la distribution verticale des lignes de **A** pour CH<sub>4</sub> est plus homogène que celle de CO<sub>2</sub> et nous pouvons voir que ces lignes sont plus larges que ceux du CO<sub>2</sub>, ce qui suggère une corrélation très importante entre les couches et une résolution verticale plus faible. L'utilisation de toutes les bandes simultanément, tout comme le CO<sub>2</sub>, améliore la distribution des informations le long du profil vertical. L'erreur de modèle direct est plus importante que celle du CO<sub>2</sub> car le méthane est plus affecté par les espèces interférentes, notamment la vapeur d'eau. L'erreur de lissage est significativement plus importante que celle du CO<sub>2</sub>, car elle est contrainte par un a priori beaucoup plus élevé, ce qui suggère un effet plus direct sur la restitution du CH<sub>4</sub>.





*Figure 4.4: Idem figure 4.3, mais pour CH<sub>4</sub> avec les bandes BT, B2, B3 et toutes les bandes simultanément.*

De même que pour le CO<sub>2</sub>, lorsque l'on utilise une matrice de covariance a priori non diagonale, la distribution verticale est très analogue à celle de la variance seule. Cependant, les erreurs a priori et a posteriori sont considérablement réduites. Les DOFS totaux pour CH<sub>4</sub> sont indiqués dans le **Tableau 4.3** pour les deux SZA. Ce paramètre montre que, pour une matrice de covariance a priori diagonale, trois colonnes troposphériques partielles peuvent être restituées, et une colonne partielle supplémentaire pour un SZA de 80°.

Enfin, en utilisant une matrice de covariance a priori non diagonale, le DOFS montre qu'une colonne partielle de moins est restituée. De manière générale, l'utilisation simultanée de toutes les bandes au lieu d'utiliser chacune séparément augmente le DOFS total et réduit systématiquement les erreurs totales des deux espèces. En outre, l'utilisation d'une matrice de covariance a priori climatologique montre l'importance de réduire l'erreur des colonnes partielles restituées. Enfin, l'erreur totale de profil est dérivée des valeurs relatives de la matrice diagonale de  $S_x$  (voir **Tableau 4.2** et **Tableau 4.3**), qui sont examinées en détail dans la section suivante.

		BT	B2	B3	B4	Toutes les bandes	
		DOFS				DOFS	Erreur
CHRIS	Angle 10	2.77	2.87	2.62	–	3.34	4.4%
	Angle 80	3.19	3.88	3.45	–	4.26	4.19%
CHRIS avec covariance	Angle 10	2.03	2.22	1.97	–	2.57	1.5%
	Angle 80	2.23	2.83	2.56	–	3.21	1.46%
EM27/SUN	Angle 10	–	–	–	1.69	1.69	4.67%
	Angle 80	–	–	–	2.45	2.45	4.54%
EM27/SUN avec covariance	Angle 10	–	–	–	1.18	1.18	1.59%
	Angle 80	–	–	–	1.81	1.81	1.55%
IFS125HR	Angle 10	3.37	3.97	3.69	2.56	4.64	4.23%
	Angle 80	3.66	4.42	4.23	3.35	4.98	4.21%
IFS125HR avec covariance	Angle 10	2.45	3.03	2.79	1.83	3.55	1.47%
	Angle 80	2.57	3.34	3.22	2.45	3.81	1.46%

*Tableau 4.3: Les DOFS et les erreurs de colonne (%) de CH<sub>4</sub> pour chaque bande et pour chaque instrument.*

#### **4.2.2. Incertitude et estimation de l'erreur sur la colonne totale.**

Les instruments au sol comme ceux utilisés dans le réseau TCCON ainsi que l'EM27/SUN effectuent des mesures dans le proche infrarouge, où les fractions molaires moyennes des colonnes d'air sec (désignées  $X_G$  pour le gaz G) sont calculées en suivant la variation des colonnes d'oxygène observées.  $X_G$  est calculé en divisant la colonne du gaz restitué sur la colonne d'O<sub>2</sub> restitué pour le même spectre qui permet aux EM27/SUN d'éliminer les erreurs systématiques communes au gaz cible et aux restitutions de colonnes d'O<sub>2</sub>. Une autre méthode est utilisée, en particulier au sein de la communauté du réseau NDACC, pour calculer  $X_G$  sans utiliser la référence d'oxygène. Sur la base de la formule donnée dans *Wunch et al. 2010* et utilisée dans *Zhou et al. 2019*, nous pouvons calculer  $X_G$  pour CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub> :

$$X_G = \frac{column_G}{column\ dry\ air} \quad 4.12$$

$$column\ dry\ air = \frac{P_s}{g_{air} m_{air}^{dry}} - column_{H_2O} \frac{m_{H_2O}}{m_{air}^{dry}}$$

où  $m_{H_2O}$  et  $m_{air}^{dry}$  sont les masses moléculaires moyennes de l'eau et de l'air sec, respectivement,  $P_s$  la pression de surface et  $g_{air}$  l'accélération gravitationnelle moyenne par colonne.

Le calcul de  $X_G$  est donc possible si tous ces paramètres sont disponibles, en particulier dans le cadre de MAGIC où nous avons accès, ainsi que tous les instruments impliqués, aux données des ballons et des radiosondes (température, pression de surface, humidité relative, etc...). Pour cela, pour ces campagnes particulières, les valeurs  $X_G$  seront calculées pour CHRIS en utilisant ARAHMIS, et les résultats seront comparés, avec les autres instruments, en particulier avec l'IFS125HR du réseau TCCON et l'EM27/SUN.

Cependant, les deux équations pour le calcul de  $X_G$  ne sont pas strictement identiques. Les erreurs systématiques ne sont pas éliminées pour CHRIS, puisque la bande d'O<sub>2</sub> n'est pas détectée. De plus, l'incertitude absolue totale de la colonne est calculée en additionnant la concentration de chaque couche le long du profil pondéré par la colonne d'air sec sur la base des **Figures 4.3 et 4.4**.

Erreur SZA	CO <sub>2</sub>		CH <sub>4</sub>	
	10°	80°	10°	80°
Lissage	2.79	2.51	4.34	4.11
Mesure	0.6	0.54	0.59	0.7
Paramètres non-inversés	0.14	0.12	0.27	0.5
Totale	2.89	2.6	4.4	4.19

**Tableau 4.4:** Le total des erreurs de colonne pour les profils de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub> pour CHRIS pour les deux SZA. Les incertitudes sont indiquées en pourcentages (%).

Le **Tableau 4.4** présente les incertitudes propagées de la colonne totale pour les deux SZA en utilisant une matrice de covariance a priori diagonale : l'incertitude de la colonne totale de CO<sub>2</sub> est de 2,89% et 2,6% pour 10° et 80° respectivement ; tandis que l'incertitude de la colonne totale de CH<sub>4</sub> est de 4,4% et 4,19% pour 10° et 80° respectivement. Les incertitudes sont plus faibles pour un SZA de 80°, car la distribution de l'information est améliorée avec un chemin optique plus long. De plus, ces résultats montrent que l'erreur de profil totale pour le CH<sub>4</sub> est presque deux fois plus élevée que celle du CO<sub>2</sub>, mais cela s'explique par le fait que notre erreur de profil est limitée par l'erreur de profil a priori qui est beaucoup plus élevée pour le CH<sub>4</sub> que pour le CO<sub>2</sub>. La composante dominante de l'incertitude dans l'erreur de profil totale provient du lissage et prédomine les autres incertitudes pour les deux GES. La vapeur d'eau, la température et SZA sont les paramètres les plus importants contribuant au modèle direct, qui sont représentés par l'incertitude des paramètres non inversés.

En outre, il est important de noter qu'il existe une incertitude supplémentaire liée à la spectroscopie non prise en compte dans notre étude, qui est purement systématique. Cette incertitude n'est pas simple à évaluer dans ce cas, car nous utilisons différents domaines spectraux ayant chacun des incertitudes spectroscopiques différentes répertoriées dans la base de données HITRAN. Les valeurs obtenues dans cette étude ne sont pas comparables à ceux exigés par les modélisateurs puisqu'ils décrivent des erreurs sur le profil et non pas sur des colonnes. Les erreurs sur les colonnes seront expliquées davantage dans le Chapitre 5.

Cependant, le réseau TCCON ne calcule pas l'incertitude absolue mais l'estime d'une manière différente comme expliquée dans le Chapitre 1. Cette méthode consiste à calculer la quantité moyenne d'air sec ( $X_{\text{air}}$ ) pour examiner les biais entre les stations de mesure du réseau TCCON. Cette différence est expliquée en détails à la fin de la section suivante.

#### **4.3. Etude complémentaire et comparative de l'analyse de contenu en information pour l'EM27/SUN, IFS125HR et CHRIS.**

Pendant les campagnes MAGIC, plusieurs EM27/SUN et deux IFS125HR du réseau TCCON ont été exploités aux côtés de CHRIS. Pour cela, un exercice d'inter-comparaison a été effectué à

Trainou, incluant ces trois instruments, afin de comparer et de compléter l'étude réalisée sur CHRIS dans la section 4.2.

#### 4.3.1. Etude complémentaire avec l'EM27/SUN.

Dans cette section, une étude de contenu en information est réalisée pour l'instrument EM27/SUN afin de le comparer avec nos résultats et d'étudier la possibilité de compléter les données que nous avons obtenues à partir de CHRIS. Les bandes de l'EM27/SUN utilisées dans cette étude sont indiquées comme suit : B3, la bande commune avec CHRIS, avec une plage spectrale de 4700-5200  $\text{cm}^{-1}$ , B4 allant de 5460  $\text{cm}^{-1}$  à 7200  $\text{cm}^{-1}$ , et B5 couvrant la région spectrale entre 7370 et 12500  $\text{cm}^{-1}$ .

Tout d'abord, une étude similaire à celle de CHRIS est réalisée sur l'EM27/SUN pour  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  séparément. Comme mentionné dans la section 4.1.3, le vecteur d'état est constitué d'un seul profil de gaz ( $\text{CO}_2$  ou  $\text{CH}_4$ ) dans une couche allant de 0 à 40 km ; toutefois, nous avons pris en compte le SNR et la résolution spectrale spécifiques à cet instrument (voir **Tableau 4.5**). De manière similaire au raisonnement suivi pour CHRIS, cette étude montre que l'utilisation de toutes les bandes EM27/SUN ensemble conduit à une amélioration du profil d'erreur a posteriori sur les concentrations de  $\text{CO}_2$ , en particulier dans la partie basse de l'atmosphère.

	Résolution ( $\text{cm}^{-1}$ )	MOPD (cm)	Région spectrale ( $\text{cm}^{-1}$ )	SNR
CHRIS	0.135	4.42	BT : 680-1250 B1 : 1800-2300 B2 : 2400-3600 B3 : 3900-5200	780
EM27/SUN	0.5	1.8	B3 : 4700-5200 B4 : 5460-7200 B5 : 7370-12500	1080
IFS125HR (TCCON)	0.02	45	4000-15000	~750
IFS125HR (NDACC)	0.0035-0.007	128-257	5-5200	~1000

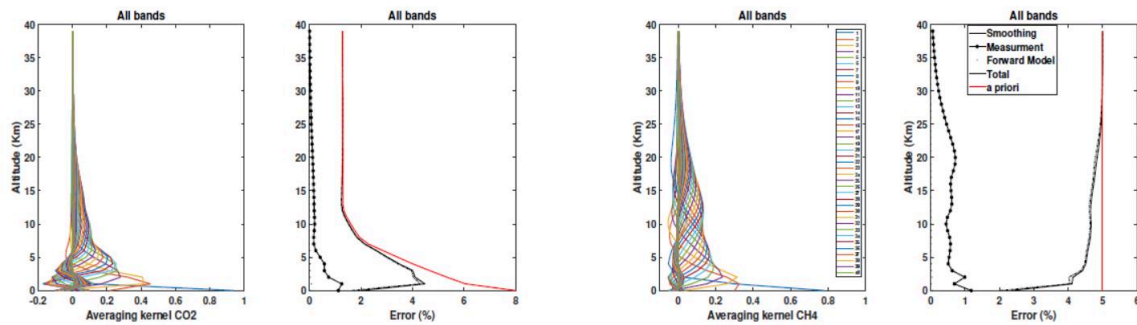
**Tableau 4.5:** Caractéristiques instrumentales de CHRIS, EM27-SUN et IFS125HR de NDACC et TCCON.

Le **Tableau 4.2** montre le DOFS pour  $\text{CO}_2$  de l'EM27/SUN : en utilisant une matrice de covariance a priori diagonale pour un angle de  $10^\circ$ , les DOFS totaux pour les bandes B3 (bande commune avec CHRIS), B4 et toutes les bandes ensemble sont : 2,95, 1,63 et 3,03 respectivement. Si l'on ne prend en considération que la bande B3, qui est la bande commune, le DOFS de CHRIS dans cette bande est, comme indiqué précédemment, de 2,62 et 3,34 pour un angle de  $10^\circ$  et  $80^\circ$  respectivement, contre 2,95 et 3,17 pour EM27/SUN. Par conséquent, le même nombre de colonnes partielles peut être restitué en utilisant CHRIS pour  $\text{CO}_2$  dans cette bande.

De plus, de manière similaire à CHRIS, tout en utilisant une matrice de covariance a priori non diagonale (Eguchi et al. 2010), l'erreur totale est réduite sur le profil avec une réduction du DOFS. Comme pour le  $\text{CH}_4$  et en référence au **Tableau 4.5**, la bande 3 de cet instrument commence ( $4700\text{cm}^{-1}$ ) là où la bande du  $\text{CH}_4$  se termine ( $4150\text{-}4700\text{ cm}^{-1}$ ) dans l'IFS125HR et CHRIS. Ceci est important car les réseaux TCCON commencent leurs mesures à  $4000\text{ cm}^{-1}$ , ce qui nous a permis de faire la

comparaison avec la bande 3 du CHRIS (pour  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ ). Cependant, l'EM27/SUN n'a pas de signal exploitable avant  $4700 \text{ cm}^{-1}$  (Gisi et al. 2012), par conséquent les lignes d'absorption du  $\text{CH}_4$  n'apparaissent pas dans la bande commune entre CHRIS et l'EM27/SUN, les résultats ne seront donc pas discutés.

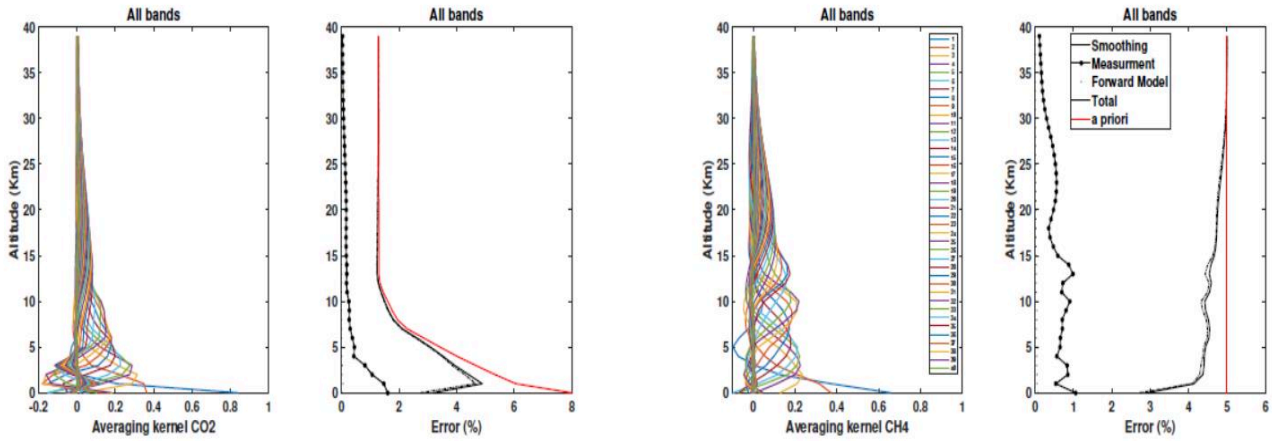
Deuxièmement, une étude simultanée du contenu en information a été réalisée sur tous les canaux de CHRIS et de l'EM27/SUN afin d'analyser l'aspect complémentaire de ces deux instruments. Les résultats de cette étude sont présentés dans la **Figure 4.5**. Le DOFS obtenu pour  $\text{CO}_2$  est de 3,67 et 3,93 pour les angles  $10^\circ$  et  $80^\circ$  respectivement ; et pour  $\text{CH}_4$  de 3,99 et 4,43. Cela indique une amélioration significative de l'inversion lorsque la synergie spectrale TIR/NIR/SWIR est utilisée, mais moins que celle obtenue depuis l'espace (par exemple TANSO-FTS dans (Herbin et al. 2013)), puisque la mesure est obtenue à partir du même chemin optique. Par contre, il faut bien noter qu'on est plus sensible à la couche limite que les instruments satellitaires, puisqu'on a un maximum de sensibilité entre 0 et 5 km.



**Figure 4.5:** Averaging kernels et bilan d'erreurs des profils verticaux de  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  pour toutes les bandes pour EM27/SUN et CHRIS combinés pour un angle de  $10^\circ$ . Les lignes rouges et noires représentent respectivement les erreurs a priori ( $S_a$ ) et a posteriori ( $S_x$ ) ; les erreurs de lissage ( $S_{\text{smoothing}}$ ), de mesure ( $S_{\text{meas}}$ ), et les paramètres du modèle direct ( $S_{\text{fwd:mod}}$ ) sont respectivement représentées par des tirets/points, des tirets/étoiles et des points.

#### 4.3.2. Etude comparative avec l'IFS125HR.

Les réseaux NDACC et TCCON utilisent le spectromètre infrarouge à haute résolution spectrale, IFS125HR, pour effectuer des mesures depuis le sol et valider les mesures satellitaires. Une étude de contenu en information similaire à celles précédentes est effectuée uniquement sur l'instrument IFS125HR, puisque ce réseau est impliqué dans les campagnes MAGIC et que les résultats peuvent donc être comparés. Pour des raisons de simplicité, la même annotation des bandes est conservée pour cette section ainsi que la même méthodologie décrite dans la section 4.2.1 est utilisée. Le vecteur d'état est constitué uniquement des concentrations de  $\text{CO}_2$  et de  $\text{CH}_4$  dans une couche allant de 0 à 40 km où le SNR et la résolution spectrale spécifique à l'IFS125HR sont pris en considération (voir **Tableau 4.5**).



**Figure 4.6:** Averaging kernels et bilans d'erreur des profils verticaux de  $\text{CO}_2$  et de  $\text{CH}_4$  pour toutes les bandes de l'IFS125HR pour un angle de  $10^\circ$ . Les lignes rouges et noires représentent respectivement les erreurs a priori ( $S_a$ ) et a posteriori ( $S_x$ ) ; les erreurs de lissage ( $S_{\text{smoothing}}$ ), de mesure ( $S_{\text{meas}}$ ) et les paramètres du modèle direct ( $S_{\text{fwd:mod}}$ ) sont respectivement représentées par des tirets/points, des tirets/étoiles et des points.

La **Figure 4.6** montre l'averaging kernel  $A$  et l'erreur totale a posteriori  $S_x$  pour  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ , pour un angle de  $10^\circ$ . Nous pouvons voir que la distribution verticale des lignes de  $A$  est plus homogène que CHRIS et EM27/SUN, ce qui suggère une sensibilité élevée à haute altitude, alors que dans les basses couches atmosphériques, l'erreur a posteriori  $S_x$  est significativement réduite. On peut remarquer le même comportement sur l'étude du bilan d'erreur : l'erreur totale a posteriori (ligne noire continue) est distinguée de l'erreur a priori (ligne rouge) même à haute altitude. Cela s'explique par le fait que l'IFS125HR a une résolution spectrale supérieure à celle de CHRIS et de l'EM27/SUN, de telle manière que la mesure améliore toujours notre connaissance du profil tout au long de la colonne atmosphérique.

De plus, en utilisant une matrice de covariance a priori non diagonale, l'erreur totale de profil est considérablement réduite, en particulier pour  $\text{CH}_4$ , tandis que le DOFS est réduit. D'une part, une colonne troposphérique partielle supplémentaire pour  $\text{CO}_2$  peut être restitué par rapport à CHRIS pour un angle de  $10^\circ$  et l'EM27/SUN pour les deux angles, si toutes les bandes sont utilisées. D'autre part, une colonne troposphérique partielle supplémentaire peut être restitué pour  $\text{CH}_4$  par rapport à CHRIS, si toutes les bandes sont utilisées et pour les deux angles.

De manière générale et quel que soit l'instrument, on obtient un DOFS moins important avec une erreur réduite quand une matrice de covariance est utilisée à la place d'une matrice de variance. Les erreurs de la colonne totale calculées pour les trois instruments sont quasiment identiques pour CHRIS et IFS125HR et un peu plus élevées pour l'EM27/SUN. Cette erreur est calculée à partir de la matrice de variance/covariance sur la colonne totale du gaz, donc elle reflète l'incertitude de la mesure. Tandis que, les réseaux TCCON et récemment le réseau COCCON (Frey et al. 2019) utilisent une approche complètement différente. La précision des valeurs de l'IFS125HR et l'EM27/SUN sont liées à l'échelle définie par l'organisation météorologique mondiale. Cette dernière considère que l'incertitude d'une mesure est l'accord entre des mesures répétées dans des conditions spécifiées. En d'autres termes, c'est l'erreur de reproductibilité des valeurs de  $X_G$  sur une longue durée de temps.



Pour cela, les incertitudes de  $XCO_2$  et  $XCH_4$  (0.25% et 0.5% respectivement d'après (Debra Wunch et al. 2015)) ne sont pas comparables à nos valeurs.

#### 4.4. Sélection de canaux.

L'utilisation de tous les canaux dans le processus d'inversion présente deux inconvénients : un temps de calcul très important et l'augmentation de l'erreur systématique à cause de la corrélation des espèces interférentes. Dans ce cas, le vecteur d'état a priori  $x_a$  et la matrice de covariance des erreurs  $S_x$  sont très difficiles à évaluer. La sélection des canaux est une méthode décrite par Rodgers 2000 pour optimiser la restitution des paramètres géophysiques en sélectionnant objectivement un sous-ensemble de canaux qui fournit la plus grande quantité d'informations provenant des instruments. Cooper et al. 2006 propose une description simple de cette procédure établie sur le contenu d'information de Shannon.

Tout d'abord, un "spectre d'information" est créé afin d'évaluer le contenu de l'information par rapport au vecteur d'état a priori. Ensuite, le canal qui contient l'information la plus grande est sélectionné. L'information fournie par le canal sélectionné qui est redondante sur les autres canaux (non-sélectionnés) est ensuite soustraite. Un spectre d'information est ensuite recalculé et le canal qui fournit la plus grande information est de nouveau sélectionné. De cette façon, un deuxième canal est choisi, basé sur cet espace d'état nouvellement défini, qui fournit un maximum d'informations relatives à la nouvelle matrice de covariance a posteriori. Ce processus est répété et les canaux sont sélectionnés de manière séquentielle jusqu'à ce que les informations de tous les canaux restants tombent en dessous du niveau de bruit de mesure.

D'après le formalisme de Shannon et comme le note Rodgers 2000, il est pratique de travailler en se basant sur l'idée que les erreurs de mesure et les variances a priori ne sont pas corrélées. Cette considération est établie afin de comparer l'erreur de mesure avec la variabilité naturelle des mesures dans l'ensemble de l'état a priori. Par conséquent, la matrice jacobienne  $K$  (voir section 4.1.2) se transforme en  $\tilde{K}$  en utilisant :

$$\tilde{K} = S_y^{-1/2} K S_a^{1/2} \quad 4.13$$

Cette équation offre l'avantage d'être la base où les deux matrices de covariance a priori et de mesure sont des matrices unitaires. En outre, Rodgers démontre que le nombre de valeurs singulières de  $\tilde{K}$  supérieures à l'unité définit le nombre de mesures indépendantes qui dépassent le bruit de mesure.

En supposant  $S_i$  la matrice de covariance d'erreur pour l'espace d'état après que  $i$  canaux aient été sélectionnés, le contenu en information du canal  $j$  des canaux restants non sélectionnés est donné par (Cooper et al. 2006):

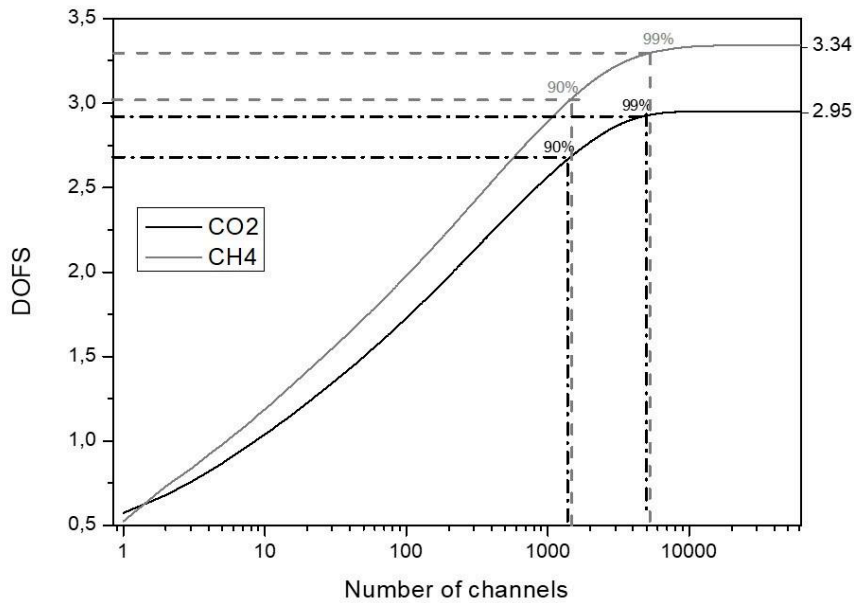
$$H_j = \frac{1}{2} \log_2(1 + \tilde{k}_j^T S_i \tilde{k}_j) \quad 4.14$$

où  $\tilde{k}_j$  est la  $j^{\text{ème}}$  ligne de  $\tilde{\mathbf{K}}$ . En prenant le canal choisi comme étant le canal  $l$ , la matrice de covariance est ensuite mise à jour avant l'itération suivante en utilisant la formule qui suit :

$$\mathbf{S}_{i+1}^{-1} = \mathbf{S}_i^{-1} + \tilde{k}_l \tilde{k}_l^T \quad 4.15$$

De cette façon, les canaux sont sélectionnés jusqu'à ce que 90 % du spectre d'information total  $H$  soit atteint de manière à ce que le bruit de mesure ne soit pas dépassé.

Ensuite,  $H$  exprimé en bits est converti en DOFS pour obtenir la **Figure 4.7** qui représente l'évolution du DOFS total de  $\text{CO}_2$  et de  $\text{CH}_4$  en fonction du nombre de canaux sélectionnés et pour toutes les bandes spectrales et pour un SZA de  $10^\circ$ . CHRIS compte 75424 canaux au total, 13800 sont inutilisables en raison de la saturation en vapeur d'eau entre les bandes, alors 61624 canaux restent exploitables. Une présélection de ces canaux, inspirée de la **Figure 4.1**, est effectuée où le nombre de canaux exploitables est réduit aux zones spectrales où le  $\text{CO}_2$  et le  $\text{CH}_4$  sont absorbés (respectivement 13447 et 19751 canaux présélectionnés).



**Figure 4.7:** Évolution du DOFS avec le nombre de canaux sélectionnés pour  $\text{CO}_2$  (noir) et  $\text{CH}_4$  (gris).

La **Figure 4.7** montre que le DOFS de chaque gaz augmente fortement avec les premiers canaux sélectionnés, puis de façon plus asymptotique. Le nombre de canaux nécessaires pour atteindre 90% et 99% de l'information totale est représenté dans le **Tableau 4.6**. Pour  $\text{CO}_2$ , sur les 1329 canaux, 55,76% de l'information provient de B3 (bande commune avec l'EM27/SUN), 37,24% de BT et 6,99% de B1. Tandis que pour  $\text{CH}_4$ , sur les 1387 canaux, 46,86% de l'information provient de B2, 28,19% de BT et 24,9% de B3.

Ce résultat montre que la plupart de l'information concernant  $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$  provient respectivement de la B3 et de la BT, ce qui indique que l'importance de l'utilisation de la synergie TIR/SWIR. En outre, les 1329 et 1387 canaux sélectionnés représentent respectivement 2,15% et



2,25% des 61624 canaux exploitables. En d'autres termes, un processus d'inversion utilisant les canaux sélectionnés correspondant à 90% du contenu total de l'information donnerait des résultats comparables à celui utilisant l'ensemble des canaux, puisque près de 98% de l'information est redondante.

	CO <sub>2</sub>		CH <sub>4</sub>	
DOFS	90%	99%	90%	99%
Nombre de canaux	1329	4648	1387	5924
% du nombre total de canaux	2.15%	7.54%	2.25%	9.61%

*Tableau 4.6: Nombre correspondant de canaux sélectionnées pour le DOFS de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub> et leur pourcentage respectif du nombre total de canaux pour CHRIS.*

Ces résultats montrent donc l'intérêt de déterminer un ensemble optimal de canaux pour chaque gaz séparément, c'est pourquoi cette sélection de canaux sera utilisée dans le processus d'inversion, ce qui le rendra plus simple avec un temps de calcul moins long.

## **Conclusion**

Dans ce chapitre, nous avons développé en détails l'étude de contenu en information nécessaire pour quantifier la capacité de mesure de l'instrument CHRIS. Dans la première étape nous avons simulé le modèle direct à l'aide du code ARAHMIS qui génère des spectres synthétiques en fonction d'un état de l'atmosphère. Puis, on a rappelé les bases théoriques du formalisme de la méthode d'estimation optimal (OEM) déjà décrite en détail dans Rodgers 2000.

Ensuite, on a étudié les averaging kernels et leur distribution verticale sur la colonne atmosphérique en fonction de deux matrices a priori : une matrice de variance diagonale et une autre matrice de covariance plus réaliste. Le principe des estimations d'erreurs a également été présenté, en montrant seulement la contribution statistique<sup>2</sup>. En outre, les DOFS de chaque gaz ont été discutés et la capacité de mesure de CHRIS est maintenant bien établie avec 3 à 4 degrés de libertés pour chaque gaz, pour l'erreur a priori définie en amont.

Ce travail réalisé sur les trois instruments : CHRIS, l'EM27/SUN et l'IFS125HR a permis de comparer leurs capacités de mesures et de quantifier l'apport de la synergie spectrale TIR/SWIR/NIR pour la restitution de CO<sub>2</sub> et CH<sub>4</sub>.

Le dernier chapitre sera dédié à la présentation de la campagne MAGIC et les travaux effectués durant cette campagne de mesures. L'analyse des concentrations de CO<sub>2</sub> obtenues par les différents instruments y est également présentée.



## **Bibliographie :**

- Cooper, Steven J., Tristan S. L'Ecuyer, Philip Gabriel, Anthony J. Baran, and Graeme L. Stephens. 2006. "Objective Assessment of the Information Content of Visible and Infrared Radiance Measurements for Cloud Microphysical Property Retrievals over the Global Oceans. Part II: Ice Clouds." *Journal of Applied Meteorology and Climatology* 45 (1): 42–62. <https://doi.org/10.1175/JAM2327.1>.
- Eguchi, N., R. Saito, T. Saeki, Y. Nakatsuka, D. Belikov, and S. Maksyutov. 2010. "A Priori Covariance Estimation for CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> Retrievals." *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 115 (10): 1–16. <https://doi.org/10.1029/2009JD013269>.
- Frey, M, M K Sha, F Hase, M Kiel, T Blumenstock, R Harig, G Surawicz, et al. 2019. "Building the Collaborative Carbon Column Observing Network (COCCON): Long-Term Stability and Ensemble Performance of the EM27/SUN Fourier Transform Spectrometer." *Atmos. Meas. Tech.* 12 (3): 1513–30. <https://doi.org/10.5194/amt-12-1513-2019>.
- Gisi, M., F. Hase, S. Dohe, T. Blumenstock, A. Simon, and A. Keens. 2012. "XCO<sub>2</sub>-Measurements with a Tabletop FTS Using Solar Absorption Spectroscopy." *Atmospheric Measurement Techniques* 5 (11): 2969–80. <https://doi.org/10.5194/amt-5-2969-2012>.
- Herbin, H., L. C. Labonnote, and P. Dubuisson. 2013. "Multispectral Information from TANSO-FTS Instrument - Part 1: Application to Greenhouse Gases (CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub>) in Clear Sky Conditions." *Atmospheric Measurement Techniques* 6 (11): 3301–11. <https://doi.org/10.5194/amt-6-3301-2013>.
- Michalsky, Joseph J. 1988. "The Astronomical Almanac's Algorithm for Approximate Solar Position (1950–2050)." *Solar Energy* 40 (3): 227–35. [https://doi.org/10.1016/0038-092X\(88\)90045-X](https://doi.org/10.1016/0038-092X(88)90045-X).
- Razavi, A., C. Clerbaux, C. Wespes, L. Clarisse, D. Hurtmans, S. Payan, C. Camy-Peyret, and P. F. Coheur. 2009. "Characterization of Methane Retrievals from the IASI Space-Borne Sounder." *Atmospheric Chemistry and Physics* 9 (20): 7889–99. <https://doi.org/10.5194/acp-9-7889-2009>.
- Rodgers, C.D. 2000. *Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice*. Singapore: World Scientific. <http://public.ebookcentral.proquest.com/choice/publicfullrecord.aspx?p=1223583>.
- Toon, Geoffrey C. 2015. "Solar Line List for the TCCON 2014 Data Release." CaltechDATA. <https://doi.org/10.14291/TCCON.GGG2014.SOLAR.R0/1221658>.
- U. Schmidt, and A. Khedim. 1991. "In Situ Measurements of Carbon Dioxide in the Winter Arctic Vortex and at Midaltitudes: An Indicator of the 'age' of Stratospheric Air" 18 (4): 763–66.
- Wachter, Evelyn De, Nicolas Kumps, Ann Carine Vandaele, Bavo Langerock, and Martine De Mazière. 2017. "Retrieval and Validation of MetOp/IASI Methane." *Atmospheric Measurement Techniques* 10 (12): 4623–38. <https://doi.org/10.5194/amt-10-4623-2017>.
- Wunch, D., G. C. Toon, P. O. Wennberg, S. C. Wofsy, B. B. Stephens, M. L. Fischer, O. Uchino, et al. 2010. "Calibration of the Total Carbon Column Observing Network Using Aircraft Profile Data." *Atmospheric Measurement Techniques* 3 (5): 1351–62. <https://doi.org/10.5194/amt-3-1351-2010>.
- Wunch, Debra, Joseph Mendonca, Orfeo Colebatch, Norton Allen, J.-F. Jean-François L Blavier, Sébastien Roche, Jacob K Hedelius, et al. 2016. "TCCON Data from Jet Propulsion Laboratory (US), 2011, Release GGG2014R1." Pasadena, California.

<https://doi.org/10.14291/tccon.ggg2014.indianapolis01.R1/1330094>.

Wunch, Debra, G.C. Geoffrey C Toon, Vanessa Sherlock, Nicholas M N.M. Deutscher, X. Liu, D.G. Dietrich G Feist, P.O. Paul O Wennberg, Cate Liu, D.G. Dietrich G Feist, and P.O. Paul O Wennberg. 2015. “The Total Carbon Column Observing Network’s GGG2014 Data Version,” 43. <https://doi.org/10.14291/tccon.ggg2014.documentation.R0/1221662>.

Zhou, Minqiang, Bavo Langerock, Corinne Vigouroux, Mahesh Kumar Sha, Christian Hermans, Jean Marc Metzger, Huilin Chen, et al. 2019. “TCCON and NDACC XCO Measurements: Difference, Discussion and Application.” *Atmospheric Measurement Techniques* 12 (11): 5979–95. <https://doi.org/10.5194/amt-12-5979-2019>.



## Chapitre 5 : Premières exploitations.

### **Introduction**

Dans le cadre des accords internationaux, plusieurs missions spatiales ont été approuvées pour surveiller l'évolution des concentrations des gaz à effet de serre dans l'atmosphère. Dans ce contexte, CHRIS participe à des campagnes de mesures, qui sont présentées dans la première partie de ce chapitre.

Le projet MAGIC (Monitoring of Atmospheric composition and Greenhouse gases through multi-Instruments Campaigns) (<https://magic.aeris-data.fr/>) est une initiative de la communauté française soutenue par le CNES afin de valider les missions spatiales actuelles et futures. L'instrumentation et les objectifs de chaque campagne depuis son lancement en 2018, sont présentés dans la deuxième partie de ce chapitre. CHRIS participe à ce projet afin de réaliser des mesures à la retombée des ballons ou directement sous la trace des satellites.

La dernière partie de ce chapitre présente les premières analyses et exploitations des spectres CHRIS durant les campagnes MAGIC (*Crevoisier and Bès 2018*). On représente notamment les simulations du modèle direct avec les profils issus des mesures sous ballons et des modèles atmosphériques, afin de montrer la sensibilité de notre instrument à la distribution verticale des concentrations de CO<sub>2</sub>. Enfin, nous présentons à titre d'exemple, une comparaison de colonnes totales de CO<sub>2</sub> obtenues par les différents instruments dont CHRIS.

#### **5.1. Les campagnes de mesure.**

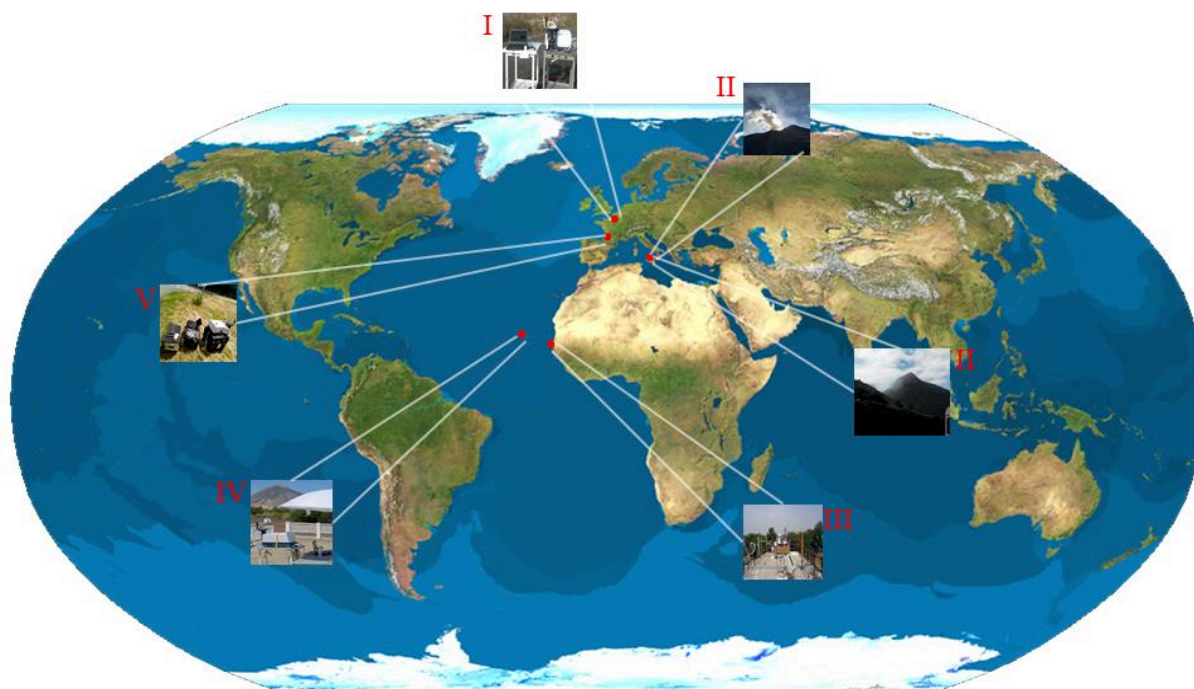
Les campagnes de mesures sont un outil essentiel pour surveiller et quantifier l'évolution de la composition atmosphérique et valider les produits satellitaires, notamment les gaz à effet de serre. Le prototype instrumental CHRIS présente plusieurs intérêts pour la communauté scientifique puisqu'en plus de sa portabilité, il permet de mesurer les bandes rovibrationnelles infrarouges de nombreux constituants du TIR jusqu'au SWIR avec une haute résolution spectrale et un très bon rapport signal sur bruit. Ainsi, comme discuté dans le chapitre précédent, ces caractéristiques complètent les mesures effectuées dans le proche infrarouge par l'EM27/SUN et l'IFS125HR du réseau TCCON pour une éventuelle validation des missions satellitaires.

Avant le début de cette thèse et dès son acquisition, une campagne de terrain s'est déroulée à l'observatoire d'Izaña équipé d'un instrument IFS125HR qui fait partie des deux réseaux internationaux NDACC et TCCON. L'objectif ici était d'une part de déterminer le meilleur protocole expérimental dans des conditions de ciel clair, et d'autre part de comparer les produits de niveau 1 (luminances absolues) de CHRIS avec l'IFS125HR qui est calibré radiométriquement.

CHRIS a également participé à d'autres campagnes « d'opportunités », notamment la campagne multi-instrumentale SHADOW-2 à M'Bour (Sénégal) afin d'étudier spécifiquement des événements de tempêtes désertiques et de transports de feux de biomasse ; ainsi que la campagne IMAGETNA-2 qui avait pour objectif la mesure du dioxyde de soufre (SO<sub>2</sub>) et les aérosols volcaniques à proximité des volcans Etna et Stromboli (Italie). En outre, des mesures sont effectuées depuis le toit

du laboratoire et en Région Hauts-de-France. La **Figure 5.1** présente les différentes campagnes de terrain effectuées par CHRIS depuis son acquisition en 2015.

De plus, CHRIS est impliqué dans le projet MAGIC dont l'exploitation des spectres est un des objectifs de cette thèse. Ce projet est expliqué en détails dans la section suivante.



**Figure 5.1:** Carte mondiale regroupant les différentes campagnes de mesure effectuées par CHRIS : I) Villeneuve d'Ascq (France), II) Etna et Stromboli (Italie), III) M'Bour (Sénégal), IV) Izaña (Iles Canaries), V) Aire-sur-l'Adour (France) et Trainou (France).

## 5.2. Les campagnes MAGIC.

Suite à la COP21 (Paris) en 2015, trois missions spatiales ont été confirmées : MERLIN (mission franco-allemande pour la mesure du méthane), MicroCarb (mission française pour la mesure du dioxyde de carbone) et IASI-NG (mission européenne pour la mesure de la composition atmosphérique et du climat). Afin de préparer ces missions et valider celles actuelles (OCO-2, IASI, TROPOMI) l'initiative MAGIC (Monitoring of Atmospheric composition and Greenhouse gases through multi-Instruments Campaigns) a été lancée avec le soutien du CNES afin de fédérer la communauté française autour de la surveillance et l'étude de la distribution verticale des gaz à effet de serre par diverses instrumentations. Cette série de campagnes (*Crevoisier and Bès 2018*) a été lancée en 2018 et on présente dans ce qui suit les objectifs, l'instrumentation et l'implication de CHRIS pour chacune d'elle.

### 5.2.1. Objectifs.

Ces campagnes de mesures ont deux objectifs principaux :

- Améliorer notre connaissance des distributions horizontales et verticales des GES, leur variabilité temporelle et les flux associés ;
- Valider les missions spatiales actuelles.

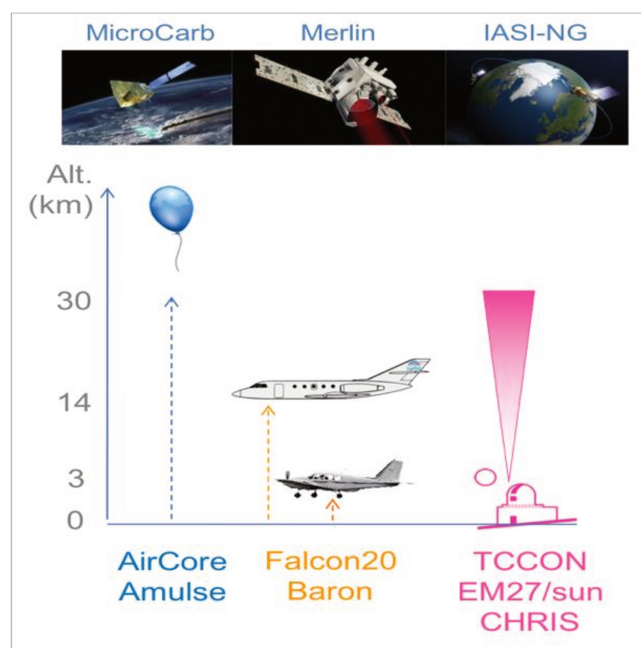


Ces campagnes présentent également un intérêt méthodologique puisqu'elles peuvent servir de démonstrateur dans le cadre du déploiement des moyens à mettre en œuvre pour valider efficacement les futures missions spatiales, en particulier Microcarb, Merlin et IASI-NG. Enfin, le projet MAGIC présente un intérêt stratégique en unifiant la communauté Française, lui permettant de pérenniser sa capacité de mesure et de contrôle des GES.

Durant les trois dernières années, le projet MAGIC a regroupé des campagnes ponctuelles et des campagnes plus régulières menées sur divers sites de mesures (Aire-sur- l'Adour et Trainou principalement), en lien avec le réseau international TCCON. La **Figure 5.2** présente un schéma de principe du déroulement d'une campagne classique.

Les mesures de profils verticaux de gaz et de colonnes totales ou partielles qui sont réalisées dans le cadre de ces campagnes visent à répondre à différents objectifs scientifiques :

- La validation des produits de niveau 2 de gaz mesurés depuis l'espace.
- L'estimation des niveaux 2 eux-mêmes, avec des questions sous-jacentes de spectroscopie et de connaissance a priori de l'état de l'atmosphère pour les inversions des luminances mesurées en colonnes de gaz.
- La compréhension des échanges verticaux de gaz, en lien avec le transport atmosphérique et les flux de gaz à la surface et dans l'atmosphère.



**Figure 5.2:** Les campagnes MAGIC multi-instruments sol-avions-ballons. (Source : MAGIC/Aeris)

### **5.2.2. Instrumentation.**

Différents types d'instruments sont déployés durant ce projet regroupant les mesures aéroportées, les mesures sous ballons ainsi que l'instrumentation depuis le sol. Tous ces instruments seront présentés dans la section suivante.

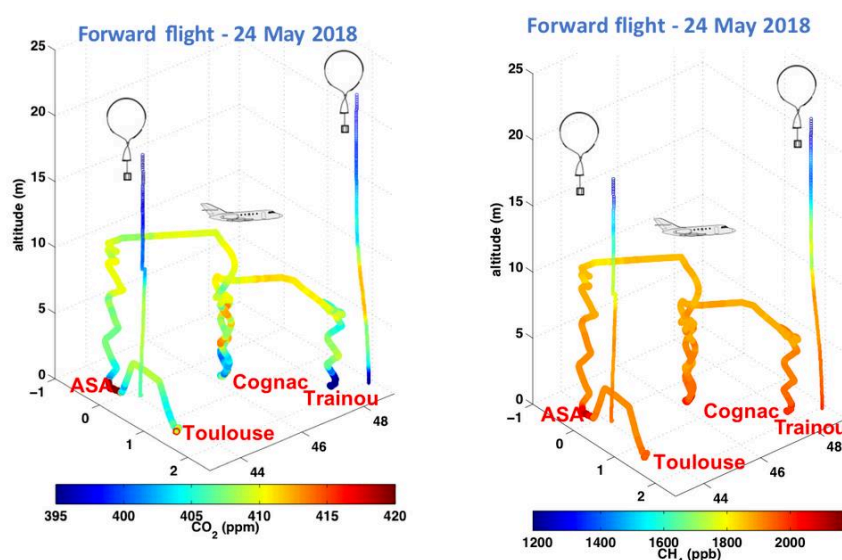
#### **5.2.2.1. Mesures satellitaires et sur avion.**

Trois campagnes de mesures ont été effectuées depuis 2018 qui est la date de démarrage du projet MAGIC :

- En 2018 : mesures sous ballons, depuis le sol et sur avion en coopération avec le DLR (Deutsches Zentrum für Luft und Raumfahrt) ;
- En 2019 : validation du sondeur IASI à bord la plateforme Metop-C (CNES/EUMETSAT) et TROPOMI sur Sentinel-5P (ESA) ;
- En 2020 : validation des colonnes totales de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub> des satellites OCO-2 (NASA) et TROPOMI/Sentinel-5P. En plus, des mesures localisées avec IASI-C et GOSAT (JAXA) ont été effectuées.

En ce qui concerne les vols avions, le projet s'est appuyé sur l'infrastructure nationale SAFIRE et l'avion Falcon 20, équipé de deux analyseurs à diodes laser Picarro G2401-m (cf. Chapitre 1) permettant la mesure très précise de la concentration entre 0 et 11 km d'altitude. Le Falcon 20 est aussi équipé d'un instrument SPIRIT du LPC2E pour mesurer le CH<sub>4</sub>, CO et NO<sub>2</sub> (cf. Chapitre 1). En coopération avec le centre aéronautique allemand (DLR), le lidar CHARM-F qui est le démonstrateur de la mission Merlin, effectue des mesures de XCH<sub>4</sub>.

La campagne MAGIC2018 s'est appuyée sur l'observation simultanée de la concentration des GES par instrumentation aéroportée, sous ballons météorologiques et depuis le sol. Elle s'est déroulée principalement entre les sites instrumentés d'Aire-sur-l'Adour (ASA) et de Trainou-Orléans (TRN). Le Falcon 20 reliait les stations ASA et TRN avec un aller-retour en une journée. Le long du parcours, cinq profils (en forme de tourbillon) ont été effectués entre 20 m et 11 km au-dessus d'Aire-sur-l'Adour, Cognac et Trainou, comme l'indique la **Figure 5.3**. L'avion Halo du DLR a effectué des mesures intégrées de la colonne CH<sub>4</sub> avec le lidar CHARM-F à partir d'une altitude de 15 km dans le but de valider les mesures de la colonne en utilisant les profils mesurés simultanément.



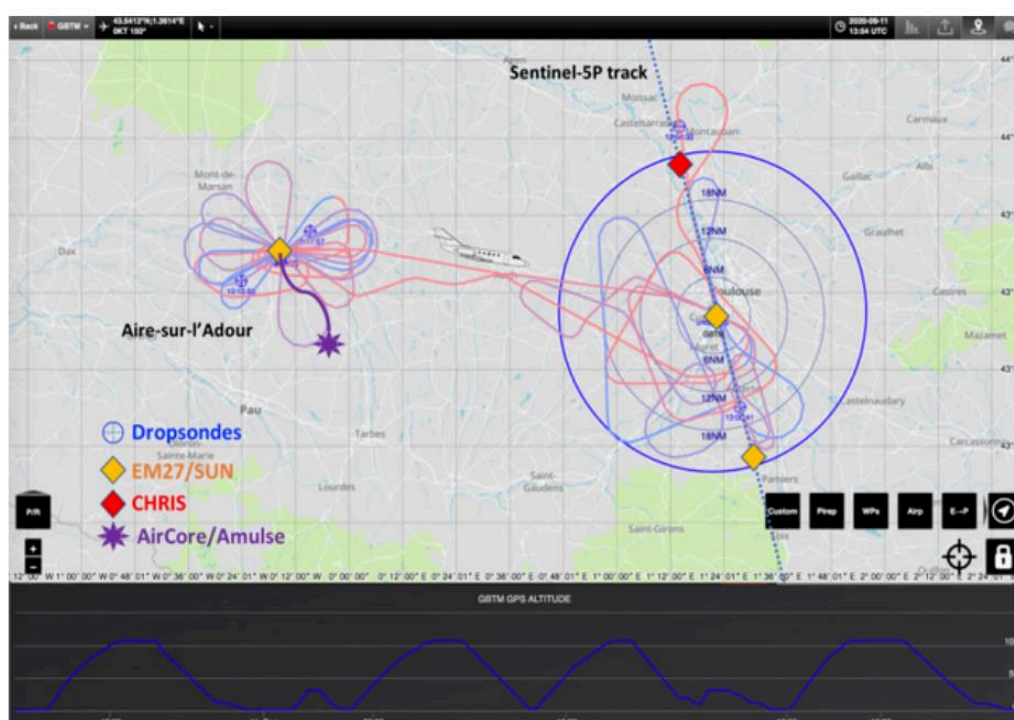
**Figure 5.3:** Les profils de concentration de CO<sub>2</sub> (à gauche) et de CH<sub>4</sub> (à droite) mesurés par le Falcon20 de SAFIRE et l'AirCore (LMD) le 24 mai 2018. (Source : MAGIC/Aeris)

Durant la campagne MAGIC2019, deux semaines de mesures étaient prévues tout en fixant le 13 et le 18 juin comme les jours où toutes les mesures sont disponibles (autour du jour J). Le Falcon20 a effectué des profils à 4 endroits : Aire-sur-l'Adour (ASA), Trainou, Puy-de-Dôme et au-dessus de l'océan Atlantique, afin de mesurer la variabilité spatio-temporelle des profils de température,

d'humidité, de CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> et CO. La journée du 13 juin était consacrée à des mesures intensives autour de ASA : 3h30 de vol dans un rayon de 15 km autour de la station CNES, avec 4 montées/descentes du Falcon 20 entre 0 et 11 km d'altitude.

La semaine suivante, le Falcon20 a effectué un premier profilage à ASA avec des altitudes de 4km-50m-11km. A 11km, 2 dropsondes ont été lâchées pour mesurer les profils thermodynamiques sous l'avion. Au temps de passage de Metop-C et de Sentinel-5P, l'avion continue son chemin vers l'océan pour effectuer des mesures en spirale de 11 km à 100 m au-dessus de la mer avec 4 dropsondes lâchées. Ces profils océaniques sont effectués sur un diamètre de 12 km correspondant à la taille d'un pixel IASI au nadir, afin de valider les profils de température et d'humidité. Enfin, deux mesures en spirale ont été effectuées au-dessus de la base militaire de Bricy et au-dessus de Puy-de-Dôme avant de compléter une mesure finale à ASA.

A cause de la propagation du COVID-19 et le confinement total de la population, la campagne MAGIC2020 a été reportée mi-septembre. Le Falcon 20 a réalisé des profils à 2 endroits au jour J (11 septembre) : Aire-sur-l'Adour et Toulouse-Francazal, afin d'obtenir des profils verticaux de CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> et CO, ainsi que de température et d'humidité. L'avion a effectué deux vols successifs en spirales ascendantes et descendantes à ASA, comme l'indique la **Figure 5.4**. Ensuite, un vol sous la trace de Sentinel-5P était mis en place pour valider les profils TROPOMI.



**Figure 5.4:** Mesures effectuées lors de MAGIC2020 (11 septembre) : Les trajectoires et les altitudes du Falcon20 sont indiquées, ainsi que les lieux de lâcher de 5 dropsondes, les 4 spectromètres au sol (3 EM27/SUN et notre instrument CHRIS) et le site d'atterrissage des AirCore et des Amulse lancé sous des ballons météorologiques depuis Aire-sur-l'Adour. (Source : MAGIC/Aeris)

#### 5.2.2.2. Instrumentation sous ballons.

Deux types d'instruments sont déployés sous ballons dont on présente les principales caractéristiques et leurs déploiements durant les campagnes.

L’AirCore déployé durant les campagnes MAGIC sous ballons météorologiques permet de mesurer des profils verticaux de concentration de GES ( $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{CO}$ ) jusqu’à 30 km d’altitude. Le concept de ce système est expliqué en détails dans (Karion *et al.* 2010) et (Membrive *et al.* 2017). L’AirCore est basé sur l’utilisation d’un long tube d’acier inoxydable mis sous ballon qui, en phase ascendante, se vide de son air par son extrémité ouverte, pour se remplir d’air lors de sa phase descendante. La colonne d’air ainsi capturée est ensuite interprétée en termes de profil vertical de concentration de gaz à l’aide d’un analyseur CRDS de type Picarro.

Ce système apporte des informations primordiales aux études des bilans de carbone régionaux ainsi qu’à la validation des observations spatiales. Il est aussi complémentaire aux autres mesures puisqu’il peut accéder à des altitudes non atteignables par des vols avions. Les concentrations de gaz restituées sont ramenées sur l’échelle internationale du WMO, comme pour le réseau TCCON (cf. Chapitre 4).

Une dizaine de ballons AirCore a été déployée durant la campagne MAGIC2018, contre une vingtaine l’année suivante sur les différents sites. En septembre 2020 et durant la dernière installation de la campagne, neuf AirCore ont été lâchés depuis le site du CNES à ASA.

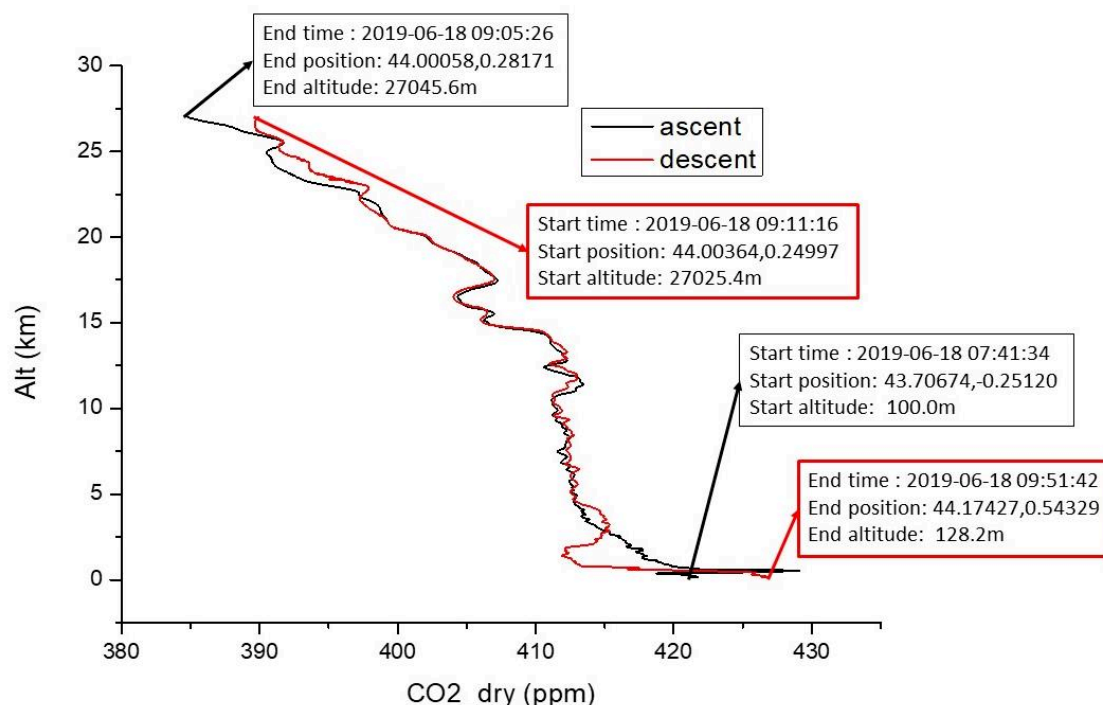
Le deuxième instrument sous ballons utilisé est l’AMULSE (Atmospheric Measurements by Ultra Light SpEctrometer). Ce système est compact et léger, pesant 1.8 kg et basé sur la technologie laser proche infrarouge à 2,04  $\mu\text{m}$  couplé à une cellule multi-passage à trajet ouvert de 6 m. Le fonctionnement de l’AMULSE est présenté dans (Joly *et al.* 2016). Les mesures sont effectuées à l’aide de la technique de spectroscopie à modulation de longueur d’onde (WMS) et le spectromètre est donc dédié à la mesure in-situ des profils verticaux du  $\text{CO}_2$  à des niveaux de précision élevés et avec une haute résolution temporelle/spatiale (1 Hz/5 m).

L’AMULSE est donc un capteur aéroporté sous ballons pour mesurer efficacement et en temps réel les émissions de gaz à effet de serre. Il permet aussi de caractériser la couche limite et ses différentes sources d’émissions gazeuses. Ce type d’instruments mesure des profils ascendants et après éclatement du ballon, il apporte des profils en descente qui nous donnent une idée sur la variabilité spatiale de la concentration du gaz concerné.

Pour étudier les variabilités spatiale et temporelle, on trace sur la **Figure 5.5** les profils montants et descendants d’un AMULSE au jour J. L’heure de démarrage et l’heure de fin de mesure de chaque profil sont précisées ainsi que la position de décollage et d’atterrissage du ballon (latitude, longitude) et l’altitude. Si on considère un même profil, par exemple l’ascendant, la latitude et la longitude de démarrage et de fin de mesure est différente. On peut remarquer qu’il y a une différence sur la verticale de 37 ppm (384 ppm à 27 km et 421 ppm à 100 m) entre ces deux lieux de mesure. Maintenant, on considère le même lieu de mesure mais avec une variation de temps donc « end position » en profil ascendant et « start position » en profil descendant. Après éclatement du ballon, l’AMULSE commence les mesures après 6 minutes. Une différence de 5 ppm entre les deux profils est observée.

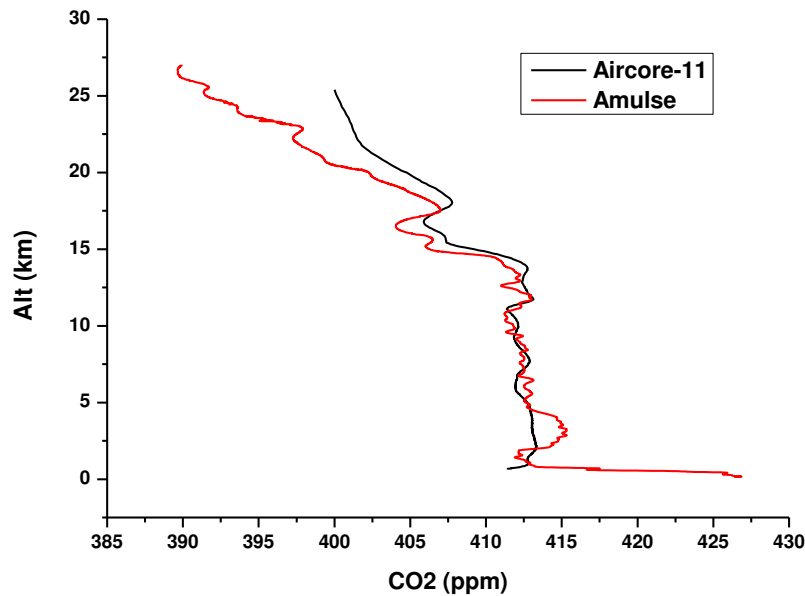
Comme déjà mentionné dans le Chapitre 1, le modèle standard américain (*National Geophysical Data Center 1992*) estime que la concentration de  $\text{CO}_2$  reste constante avec l’altitude. Ceci est lié à la durée de vie du  $\text{CO}_2$  dans l’atmosphère (environ 100 ans), qui lui permet d’avoir le temps de se mélanger de façon homogène sur la verticale. Cependant, en se référant à la **Figure 5.5**, on peut remarquer trois comportements différents de ce profil : entre 0 et 5 km le profil de  $\text{CO}_2$  n’est pas constant (variabilité au sein d’un même profil) et instable (variabilité entre profil ascendant et

descendant), entre 5 et 15 km le profil devient constant et stable et après 15 km le profil reste stable mais avec une décroissance importante jusqu'à 25 km.



*Figure 5.5: Les profils de CO<sub>2</sub> montants et descendants de l'AMULSE mesurés au jour J durant la campagne MAGIC2019.*

Outre la variabilité spatiale et temporelle, on s'intéresse aussi à la variabilité instrumentale. Pour cette raison, on montre dans la **Figure 5.6** la différence entre les profils de CO<sub>2</sub> pour l'AirCore et l'AMULSE lancés du même endroit (ASA) et au même moment (9h11 UTC). Il est à noter que le profil descendant de l'AMULSE est comparé à l'AirCore puisque ce dernier ne fait des mesures qu'en descente. Un comportement similaire à la figure précédente peut être observé : entre 0 et 5 km les profils de CO<sub>2</sub> sont très différents, ensuite entre 5 et 15 km ils deviennent très semblables et au-delà de 17 km les profils dérivent à nouveau.



*Figure 5.6: Les profils de CO<sub>2</sub> descendants de l'AMULSE et de l'AirCore mesurés au jour J durant la campagne MAGIC2019.*

### 5.2.2.3. Mesures depuis le sol.

Les mesures depuis le sol sont assurées par trois types d'instruments : l'IFS125HR du réseau international TCCON, l'EM27/SUN et CHRIS. Le réseau TCCON fournit des colonnes totales de GES référencées par rapport au standard WMO. Il maintient également une traçabilité de ses données avec une précision de 0.1 % pour le XCO<sub>2</sub>. Grâce à ces caractéristiques, les mesures TCCON sont largement exploitées dans le cadre des validations des instruments satellitaires. Dans le cadre du projet MAGIC, deux stations TCCON sont utilisées : la station de Trainou-Orléans opérée par l'Université de Brême et la station TCCON-Paris opérée par le LERMA.

Trois EM27/SUN appartenant à différents laboratoires sont déployés soit sur un site ou région donnée (2018 et 2019) ou le long de la trace du passage d'un satellite (2020). Il est particulièrement intéressant grâce à sa portabilité et sa précision comparable au réseau TCCON pour XCO<sub>2</sub> et XCH<sub>4</sub>. De plus, ces dernières sont rattachées au standard WMO tout comme les mesures de l'IFS125HR.

CHRIS est le troisième instrument utilisé. Son fonctionnement sur batterie lui permet d'effectuer des mesures n'importe où avec une autonomie d'une douzaine d'heures. Sa caractérisation instrumentale présentée dans le Chapitre 3 a conduit à l'obtention de spectres en luminances absolues qui permettent de quantifier précisément les concentrations des GES. En dehors de l'aspect instrumental, les algorithmes de transfert radiatif utilisés par les EM27/SUN et l'IFS125HR sont différents. Pour cela, un exercice d'inter-comparaison a été réalisé à Trainou avec les EM27/SUN du CNES et du LSCE et le FTIR du réseau TCCON (*Figure 5.7*) dont les premiers résultats théoriques sont présentés dans le Chapitre 4.

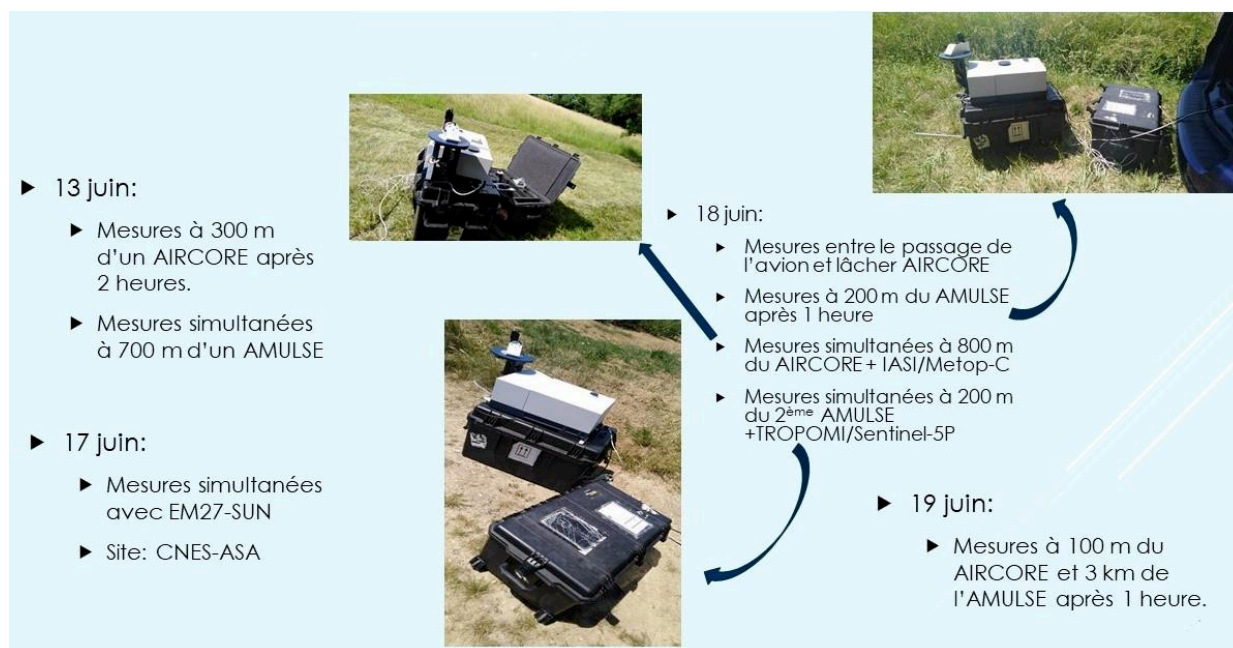




*Figure 5.7: L'exercice d'inter-comparaison réalisé à Trainou avec les EM27/SUN (droite), CHRIS (gauche) et l'IFS125HR du TCCON.*

Le rôle de CHRIS pour les campagnes MAGIC2018 et MAGIC2019 était d'effectuer des mesures aux endroits d'atterrissage des ballons lancés (AirCore et AMULSE) depuis la station du CNES à ASA. L'objectif était donc de se trouver le plus proche et le plus tôt possible à la retombée des ballons. Un récapitulatif des mesures effectuées durant l'année 2019 est présenté dans la **Figure 5.8**.

La campagne MAGIC2020 était dédiée à la validation des satellites OCO-2 et Sentinel-5P. Dans ce contexte, l'objectif était de réaliser des mesures coïncidentes sous la trace de ces satellites.

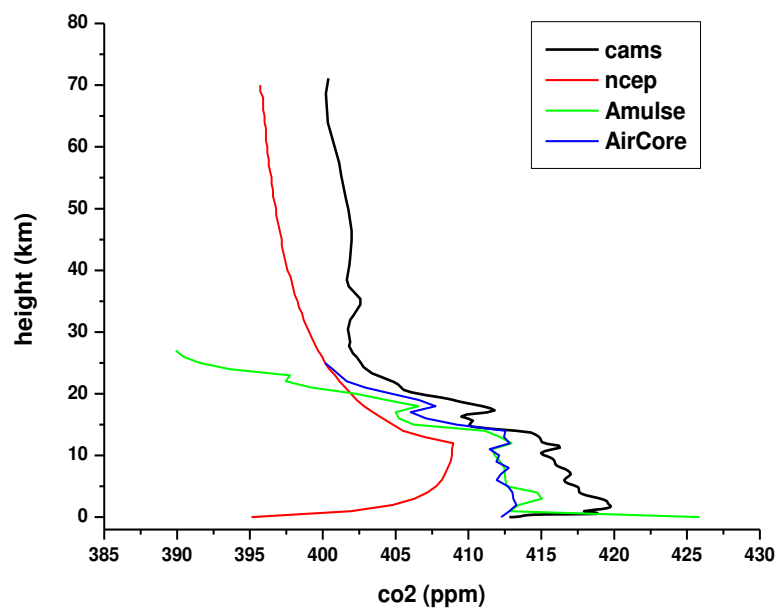


*Figure 5.8: Récapitulatif des mesures effectuées par l'équipe LOA durant la campagne MAGIC2019.*

### **5.3. Exploitations.**

Les mesures de profils de concentrations de gaz collectées durant les campagnes MAGIC par les divers instruments sont maintenant comparées afin d'étudier la variabilité et la cohérence de chacun d'entre eux. Cette comparaison est l'un des premiers objectifs de cette campagne, et elle doit prendre en considération les différentes sensibilités, notamment verticales, des instruments. Ces profils

serviront également à évaluer les simulations réalisées par divers modèles de transport disponibles, notamment CAMS (Copernicus Atmosphere Monitoring Service) et NCEP (National Centers for Environmental Prediction). La **Figure 5.9** montre la comparaison entre les profils de CO<sub>2</sub> de l’AirCore, l’AMULSE, CAMS et NCEP lors de la campagne MAGIC2019 pour la journée du 18 juin. Il apparaît que les modèles entourent les mesures expérimentales et dans la partie censée être constante (5-15 km), un biais de 4 ppm (~1%) est observé. Cet écart est particulièrement important pour les modèles CAMS et NCEP, d’autant qu’il peut entraîner un biais dans les estimations des sources et puits de CO<sub>2</sub>. Il est à noter que l’accord est bien meilleur entre les mesures AirCore et AMULSE. Une comparaison similaire peut être faite à partir du calcul des colonnes totales de CO<sub>2</sub> issues des profils de la **Figure 5.9** qui donne : 399.05 ppm et 409.045 ppm respectivement pour les modèles NCEP et CAMS ; 403.73 ppm pour l’AirCore et 404.89 ppm pour l’AMULSE.

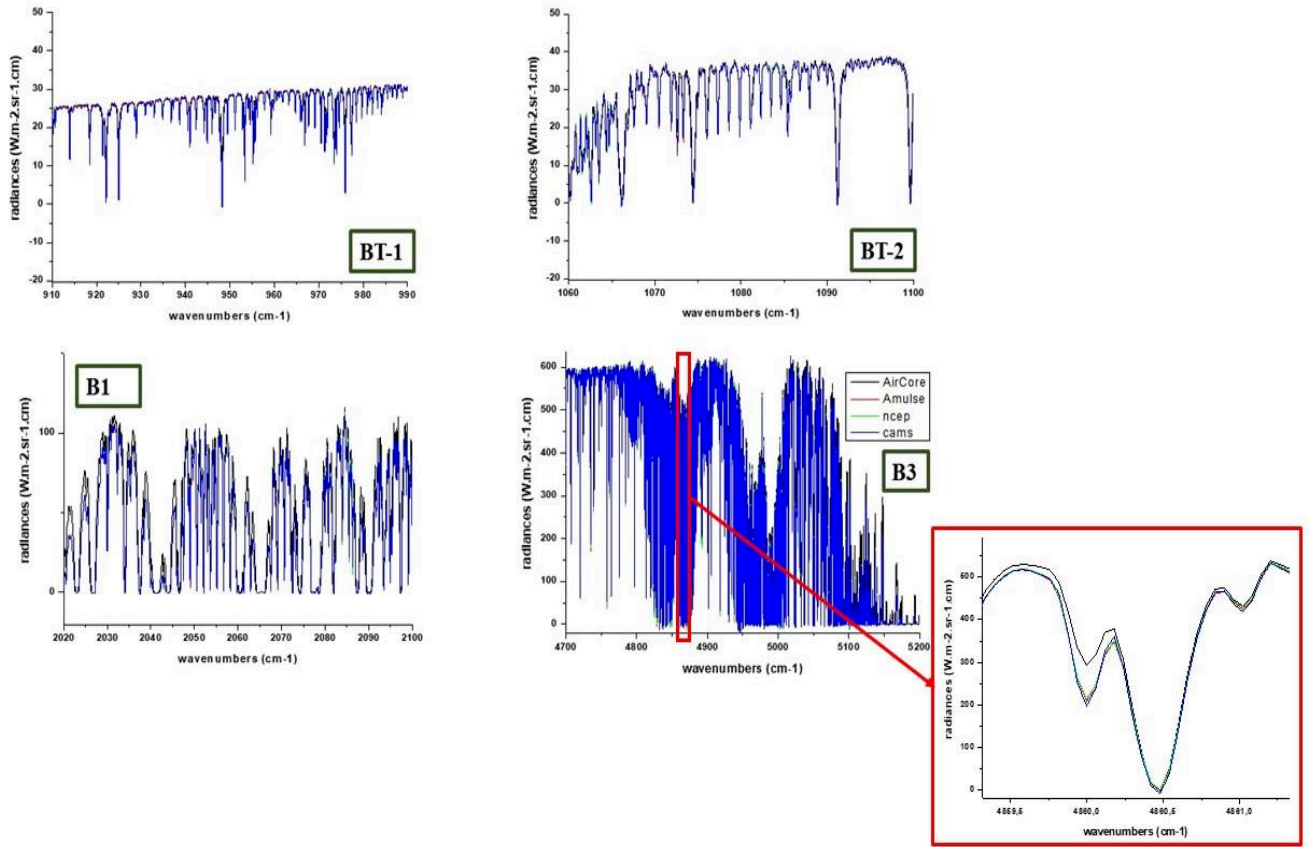


**Figure 5.9:** Comparaison des différents profils de CO<sub>2</sub> (gauche) pour la journée du 18 Juin 2019 à ASA.

La **Figure 5.10** représente les simulations des mesures de CHRIS à partir d’ARAHMIS en utilisant les profils de CO<sub>2</sub> de la **Figure 5.9**. Les différences observées pour chacune des bandes illustrent la sensibilité de nos mesures à la variabilité de la répartition verticale de CO<sub>2</sub>. Si on regarde une raie de CO<sub>2</sub> de plus près (cadre rouge de la **Figure 5.10**), on peut distinguer les quatre simulations différentes.

Dans ce qui suit, on sélectionne un spectre enregistré à 40 minutes après l’installation de CHRIS à 800 m de distance du point de chute de l’AMULSE. Ce spectre correspond à une élévation solaire de 62.92° calculée à partir de la méthode expliquée dans la section 2.1.2 du Chapitre 2 (voir **Annexe 1**). Afin de déterminer le profil le plus adapté à cette mesure, on a calculé les RMS (Root Mean Square) du spectre CHRIS avec ceux calculés à partir des modèles CAMS et NCEP, présentés dans la **Figure 5.10**. Le spectre calculé à partir du profil CAMS présente le RMS le plus faible, ce profil a donc été utilisé comme a priori dans notre algorithme de restitution.





*Figure 5.10: Le modèle direct calculé pour les bandes de CO<sub>2</sub> de CHRIS à partir d'ARAHMIS pour les différents profils fournis durant la campagne MAGIC2019. Le cadre rouge permet de distinguer les quatre simulations différentes.*

L'inversion a été réalisée à partir de la méthode d'itération de Gauss-Newton expliquée dans (Rodgers 2000) et dont on donne dans ce qui suit la formule utilisée pour calculer le nouveau vecteur d'état :

$$x_{i+1} = x_a + (\mathbf{S}_a^{-1} + \mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_\varepsilon^{-1} \mathbf{K}_i)^{-1} \mathbf{K}_i^T \mathbf{S}_\varepsilon^{-1} [y - F(x_i) + \mathbf{K}_i(x_i - x_a)] \quad 5.1$$

$x_a$  est une estimation a priori du vecteur d'état  $x$ ,  $F$  est le modèle direct donné par le code ARAHMIS,  $\mathbf{K}$  le Jacobien,  $\mathbf{S}_a$  et  $\mathbf{S}_\varepsilon$  sont respectivement les matrices de covariance a priori et des erreurs du modèle direct et de la mesure introduites dans le Chapitre 4.

La procédure d'inversion des spectres mesurés par les EM27/SUN consiste à choisir un profil a priori de CO<sub>2</sub> issu des modèles CAMS ou NCEP afin d'inverser uniquement une colonne totale en ajustant l'ensemble du profil par le biais d'un « scaling factor ». Cette procédure revient à considérer que la répartition verticale est correcte et que seule son amplitude est variable. L'étude de contenu en information présentée dans le Chapitre 4 montre que CHRIS est capable d'obtenir jusqu'à quatre colonnes partielles. Cependant, afin de pouvoir comparer les valeurs de XCO<sub>2</sub> de CHRIS à celles des EM27/SUN, il a été décidé d'utiliser une procédure d'inversion identique. Pour cette raison, les fenêtres spectrales issues de la sélection de canaux des bandes BT, B1 et B3 sont utilisées. Le profil de CO<sub>2</sub> a priori est celui du modèle CAMS comme mentionné précédemment. Les paramètres non-inversés du modèle tels que la pression, la température, l'humidité et les concentrations des molécules interférentes (H<sub>2</sub>O, CH<sub>4</sub>, CO) proviennent également du profil CAMS. Le vecteur d'état  $x_a$  de

l'*équation 5.1* est alors composé de deux paramètres : le scaling factor du profil de CO<sub>2</sub> et la température de brillance du soleil, tous les deux avec une variabilité de 1%.

Les résultats de l'inversion pour les différentes bandes sont présentés dans le *Tableau 5.1*. On remarque qu'il y a une cohérence entre les valeurs de XCO<sub>2</sub> obtenues pour chacune des bandes séparément et toutes les bandes simultanément. Toutefois, il est à noter que la concentration obtenue à partir de la bande thermique est inférieure aux autres bandes. Cependant, cet écart est toujours inférieur à 1%. Cela peut être expliquée par la compensation excessive de la ligne de base puisque la partie thermique du spectre CHRIS est la plus sensible aux variations de températures solaire et atmosphérique.

Il est important de noter qu'une inversion de colonne totale en scaling factor sous-dimensionne le problème inverse. En effet, la mesure de CHRIS qui contient quatre degrés d'information est ici réduite à un seul niveau d'information. En d'autres termes, la trace de la matrice **A** (averaging kernel) donne une valeur de deux. En conséquence, l'erreur de lissage  $S_{smoothing}$  qui est la source d'incertitude majeure (voir Chapitre 4) devient nulle (*Equation 4.7* du Chapitre 4). Ainsi, l'incertitude associée à la valeur de XCO<sub>2</sub> dans le cas de l'inversion « toutes bandes » (*Tableau 5.1*) est estimée à 0.1%.

<b>BT</b>	<b>B1</b>	<b>B3</b>	<b>Toutes bandes</b>
402.12 ppm	405.25 ppm	406.10 ppm	404.56 ppm

*Tableau 5.1: Les colonnes totales de CO<sub>2</sub> calculées pour les différentes bandes de CHRIS.*

Le spectre inversé correspond à un spectre obtenu à la retombée d'un AirCore dont la valeur de la colonne totale (403.73 ppm) peut être considérée comme la valeur « vraie » la mesure de la colonne de CO<sub>2</sub> donnée par l'AirCore, et qui correspond au spectre utilisé dans notre restitution, est de. La valeur de XCO<sub>2</sub> la plus proche est le résultat appelé « toutes bandes » qui exploite la synergie TIR/SWIR par l'utilisation conjointe des bandes BT, B1 et B3. L'écart entre la valeur vraie et celle restituée est alors de 0.83 ppm, soit 0.2%, qui est légèrement supérieure à l'incertitude estimée (0.1%). Toutefois, il est important de signaler que cet écart est très faible compte tenu du fait que les deux mesures ne sont pas parfaitement simultanées et que le profil vertical n'est pas strictement identique.

La valeur de XCO<sub>2</sub> obtenue par l'EM27/SUN à la même heure est 410.4 ppm, donc une différence beaucoup plus importante (environ 5 ppm). Cela est dû au fait que l'EM27/SUN se situait à la station du CNES à ASA donc à environ 52 km du point de chute.

Ces résultats sont très encourageants mais ils restent à confirmer, d'une part avec une exploitation systématique des mesures réalisées lors des campagnes MAGIC pour les comparer avec celles des AirCore et/ou des AMULSE ; et d'autre part en traitant les mesures acquises lors de l'exercice d'inter-comparaison effectué à Trainou avec les EM27/SUN.

## **Conclusion**

Dans la première partie de ce chapitre nous avons présenté la série de campagnes MAGIC qui a pour but de surveiller et quantifier l'évolution des concentrations des GES. Les différents instruments impliqués dans ces campagnes et leurs modes de fonctionnement ont également été décrits.

Les profils issus des différents instruments et des modèles CAMS et NCEP sont comparés afin d'illustrer les variabilités horizontales, verticales et temporelles des profils de concentration de CO<sub>2</sub>. L'étude montre également une bonne cohérence entre les profils ascendants/descendants de l'AMULSE et les profils AirCore et AMULSE.

En se basant sur l'étude du Chapitre 4, les valeurs de XCO<sub>2</sub> ont été calculées pour les bandes BT, B1, B3 et toutes les bandes par le biais d'une inversion en scaling factor. Les résultats ont montré que la meilleure valeur de la colonne totale de CO<sub>2</sub> est obtenue quand la synergie TIR/SWIR est utilisée. Cette valeur est très proche de la valeur « vraie » de l'AirCore avec un écart de seulement 0.2%.

Bien que très encourageant, ce résultat reste à confirmer en étendant ce travail d'inversion à tous les spectres MAGIC et les comparer aux mesures des AirCore et des AMULSE. De plus, les spectres de Trainou devront être traités pour une comparaison quantitative exhaustive avec les EM27/SUN. Enfin, d'autres méthodes d'inversions (par exemple en profil) devront être testées afin de définir la meilleure stratégie de restitution et exploiter pleinement les capacités instrumentales de CHRIS. Tous ces travaux pourront également être étendus à l'inversion des colonnes de CH<sub>4</sub>.



## **Bibliographie :**

- Crevoisier, Cyril, and Caroline Bès. 2018. "Magic, Une Campagne Inédite de Mesures Des Gaz à Effet de Serre." *La Météorologie*, no. 102: 5. <https://doi.org/10.4267/2042/68202>.
- Joly, Lilian, Rabih Maamary, Thomas Decarpenterie, Julien Cousin, Nicolas Dumelié, Nicolas Chauvin, Dominique Legain, Diane Tzanos, and Georges Durry. 2016. "Atmospheric Measurements by Ultra-Light SpEctrometer (AMULSE) Dedicated to Vertical Profile in Situ Measurements of Carbon Dioxide (CO<sub>2</sub>) Under Weather Balloons: Instrumental Development and Field Application." *Sensors* 16 (September): 1609. <https://doi.org/10.3390/s16101609>.
- Karion, Anna, Colm Sweeney, Pieter Tans, and Timothy Newberger. 2010. "AirCore: An Innovative Atmospheric Sampling System." *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 27 (11): 1839–53. <https://doi.org/10.1175/2010JTECHA1448.1>.
- Membrive, O, C Crevoisier, C Sweeney, F Danis, A Hertzog, A Engel, H Bönisch, and L Picon. 2017. "AirCore-HR: A High-Resolution Column Sampling to Enhance the Vertical Description of CH<sub>4</sub> and CO<sub>2</sub>." *Atmos. Meas. Tech.* 10 (6): 2163–81. <https://doi.org/10.5194/amt-10-2163-2017>.
- National Geophysical Data Center. 1992. "U.S. Standard Atmosphere (1976)." *Planetary and Space Science* 40 (4): 553–54. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0032-0633\(92\)90203-Z](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0032-0633(92)90203-Z).
- Rodgers, C.D. 2000. *Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice*. Singapore: World Scientific.  
<http://public.ebookcentral.proquest.com/choice/publicfullrecord.aspx?p=1223583>.



## **Conclusion générale et perspectives**

L'observation atmosphérique est primordiale pour comprendre la variabilité des gaz à effet de serre dont la concentration a fortement augmenté depuis l'ère industrielle. Cette augmentation provoque un changement climatique qui, s'il n'est pas maîtrisé, conduira inévitablement à de profonds bouleversements environnementaux. Ainsi, la connaissance et la quantification précise des concentrations des GES, tels que le CO<sub>2</sub> et le CH<sub>4</sub>, constituent un premier pas vers une compréhension globale du système radiatif Terre-Atmosphère et de ses implications à long terme.

En lien avec les accords internationaux visant à réduire l'impact du réchauffement climatique, la communauté scientifique s'est mobilisée pour diversifier et améliorer les techniques de surveillances et de contrôle de l'évolution de la composition atmosphérique. L'ensemble des travaux présentés dans ce manuscrit s'inscrit dans cet effort, par le biais de l'observation de l'atmosphère par télédétection passive. Il existe à l'heure actuelle deux réseaux internationaux (NDACC et TCCON) qui regroupent plusieurs stations dans le monde utilisant la spectrométrie infrarouge à transformée de Fourier à haute résolution spectrale. Mais les caractéristiques de ces instruments ne permettent pas d'envisager un déploiement plus important en dehors de quelques observatoires et centres de recherche, et ils sont également inadaptés aux mesures de terrains.

Le prototype instrumental CHRIS, qui est l'objet d'étude de cette thèse possède de nombreux atouts : transportable, fonctionnement sur batterie, haute résolution spectrale (0.135 cm<sup>-1</sup>), bon rapport signal sur bruit (780) et stabilité optique. Ces spécifications en font un complément ou une alternative prometteuse pour des mesures précises réalisées depuis le sol. Une première partie de ce travail de thèse a consisté à caractériser cet instrument en termes de fonction d'appareil, de calibration radiométrique et spectrale dans le but d'étudier son potentiel de restitution des concentrations des GES. A cette fin, une étude exhaustive de contenu en information a été effectuée, montrant les capacités de cet instrument à restituer les GES en utilisant deux SZA différents (10° et 80°) afin de quantifier l'évolution de l'information au regard du trajet optique. Deux matrices de covariance a priori ont été utilisées : une diagonale et une autre dérivée des données climatologiques. L'incertitude totale de la colonne est estimée, montrant que lorsque l'on utilise une matrice de covariance a priori diagonale, l'erreur pour un angle de 10° est de l'ordre de 2,89% pour le CO<sub>2</sub> et de 4,4% pour le CH<sub>4</sub> pour toutes les bandes. Cependant, lorsque l'on utilise une distribution climatologique, l'incertitude totale de la colonne pour le même angle et pour toutes les bandes est réduite à 1,01% pour le CO<sub>2</sub> et à 1,5% pour le CH<sub>4</sub> mais avec une diminution significative du nombre de degrés de liberté (de 2,95 à 2,38 pour le CO<sub>2</sub> et de 3,34 à 2,57 pour le CH<sub>4</sub>).

Afin d'étudier la synergie TIR/SWIR/NIR, deux études ont été effectuées : l'une comparative avec l'IFS25HR du réseau TCCON, et une autre complémentaire avec l'EM27/SUN. L'IFS25HR est largement utilisé dans le processus de validation des satellites, et l'étude réalisée a illustré les avantages de la « très » haute résolution spectrale pour la restitution des GES. L'étude complémentaire menée sur l'EM27/SUN a montré qu'une amélioration significative peut être obtenue : par exemple, avec un SZA de 10°, les DOFS passent de 2,95 à 3,67, montrant ainsi l'importance de la synergie spectrale. En outre, une sélection de canaux a été mise en œuvre afin d'éliminer les informations redondantes dans les restitutions des colonnes de CO<sub>2</sub> et de CH<sub>4</sub> et ainsi améliorer le processus d'inversion.

Les campagnes MAGIC ont été lancées en 2018 afin de fédérer la communauté française autour des mesures diversifiées et précises des GES et valider les missions spatiales actuelles et futures. Plusieurs instruments sont impliqués dans ce projet, dont CHRIS. Les premières exploitations des spectres obtenus durant cette campagne nous ont permis d'étudier la sensibilité « réelle » de CHRIS à la répartition verticale des concentrations de CO<sub>2</sub>. Enfin, les premiers résultats d'inversions de colonnes totales de CO<sub>2</sub> ont été comparés avec ceux provenant des autres instruments, notamment AirCore, AMULSE et EM27/SUN, aboutissant à des résultats très encourageants.

L'instrument est parfaitement caractérisé à ce stade et les spectres sont calibrés spectralement et radiométriquement. De plus, le modèle direct ARAHMIS qui permet de resimuler les observations et le module d'inversion basé sur la méthode d'estimation optimale (OEM) sont désormais opérationnels.

Ainsi à la suite de cette thèse, il est prévu un important travail d'exploitation :

- Inversion systématique de l'ensemble des mesures MAGIC et la comparaison avec les AirCore et les AMULSE ;
- Inversion des mesures effectuées à Trainou et la comparaison avec les valeurs de XCO<sub>2</sub> des EM27/SUN ;
- Tests d'inversions en profils au lieu de scaling factor ;
- Tests sur les différents profils a priori et leur variabilité (matrices de covariance) ;
- Tests sur les différentes méthodes d'inversions (vecteur d'état logarithmique, OEM, Gauss-Newton, Levenberg-Marquardt, Thikonov-Philips, etc.)
- Inversion du CH<sub>4</sub>.

Du point de vue expérimental, les perspectives à court terme sont :

- Participation à la campagne MAGIC2021 qui se déroulera à Kiruna (Suède) incluant des mesures de ballons stratosphériques (BSO) ;
- Calibration radiométrique de l'ensemble des EM27/SUN impliqués dans MAGIC ;
- Exercices de comparaison de radiances (Toulouse) avec les futurs instruments spatiaux Microcarb et IASI-NG.





## **Bibliographie**

- Aumann, H, M T Chahine, Catherine Gautier, Mitch Goldberg, Eugenia Kalnay, L M McMillin, Henry Revercomb, et al. 2003. "AIRS/AMSU/HSB on the Aqua Mission: Design, Science Objective, Data Products, and Processing Systems." *Geoscience and Remote Sensing, IEEE Transactions On* 41 (March): 253–64. <https://doi.org/10.1109/TGRS.2002.808356>.
- Banwell, Colin N. 1983. *Fundamentals of Molecular Spectroscopy*. McGraw-Hill.
- Baray, J, Y Courcoux, Philippe Keckhut, Thierry Portafaix, Pierre Tulet, J.-P Cammas, Alain Hauchecorne, et al. 2013. "Maïdo Observatory: A New High-Altitude Station Facility at Reunion Island (21 S, 55 E) for Long-Term Atmospheric Remote Sensing and in Situ Measurements." *Atmospheric Measurement Techniques* 6 (October): 2865–77. <https://doi.org/10.5194/amt-6-2865-2013>.
- Bernardo, Cirilo, and David W T Griffith. 2005. "Fourier Transform Spectrometer Instrument Lineshape (ILS) Retrieval by Fourier Deconvolution." *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 95 (2): 141–50. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2004.10.001>.
- Boone, Christopher D, Kaley A Walker, Sean D McLeod, Ray Nassar, and Peter F Bernath. 2004. "Atmospheric Chemistry Experiment (ACE): Mission Overview and Early Results." In *Proc.SPIE*. Vol. 5584. <https://doi.org/10.1117/12.579945>.
- Catling, David C, and Kevin J Zahnle. 2009. "The Planetary Air Leak." *Planetary Science*.
- Catoire, Valéry, Claude Robert, Michel Chartier, Patrick Jacquet, Christophe Guimbaud, and Gisèle Krysztofiak. 2017. "The SPIRIT Airborne Instrument: A Three-Channel Infrared Absorption Spectrometer with Quantum Cascade Lasers for in Situ Atmospheric Trace-Gas Measurements." *Applied Physics B* 123 (9): 244. <https://doi.org/10.1007/s00340-017-6820-x>.
- Cheewaphongphan, Penwadee, and Satoru Chatani. 2019. "Exploring Gaps between Bottom-Up and Top-Down Emission Estimates Based on Uncertainties in Multiple Emission Inventories : A Case Study on CH 4 Emissions in China." <https://doi.org/10.3390/su11072054>.
- Ciais, P, J Tan, X Wang, C Roedenbeck, F Chevallier, S.-L. Piao, R Moriarty, et al. 2019. "Five Decades of Northern Land Carbon Uptake Revealed by the Interhemispheric CO2 Gradient." *Nature* 568 (7751): 221–25. <https://doi.org/10.1038/s41586-019-1078-6>.
- Ciais, Philippe, David Crisp, Hugo Denier van der Gon, Richard Engelen, Greet Janssens-Maenhout, Martin Heimann, Peter Rayner, and Marko Scholze. 2015. "Towards a European Operational Observing System to Monitor Fossil CO2 Emissions, Final Report from the Expert Group." *European Comission*.
- Clerbaux, Cathy, Juliette Hadji-Lazaro, Sébastien Payan, Claude Camy-Peyret, Jinxue Wang, David P Edwards, and Ming Luo. 2002. "Retrieval of CO from Nadir Remote-Sensing Measurements in the Infrared by Use of Four Different Inversion Algorithms." *Applied Optics* 41 (33): 7068–78. <https://doi.org/10.1364/AO.41.007068>.
- Clough, S. A., M. W. Shephard, E. J. Mlawer, J. S. Delamere, M. J. Iacono, K. Cady-Pereira, S. Boukabara, and P. D. Brown. 2005a. "Atmospheric Radiative Transfer Modeling: A Summary of the AER Codes." *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 91 (2): 233–44. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2004.05.058>.
- Clough, S A, M W Shephard, E J Mlawer, J S Delamere, M J Iacono, K Cady-Pereira, S Boukabara, and P D Brown. 2005b. "Atmospheric Radiative Transfer Modeling: A Summary of the AER

- Codes.” *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 91 (2): 233–44. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2004.05.058>.
- Cooley, James W., and John W. Tukey. 1965. “An Algorithm for the Machine Calculation of Complex Fourier Series.” *Mathematics of Computation*. <http://www.jstor.org/>.
- Cooper, Steven J., Tristan S. L’Ecuyer, Philip Gabriel, Anthony J. Baran, and Graeme L. Stephens. 2006. “Objective Assessment of the Information Content of Visible and Infrared Radiance Measurements for Cloud Microphysical Property Retrievals over the Global Oceans. Part II: Ice Clouds.” *Journal of Applied Meteorology and Climatology* 45 (1): 42–62. <https://doi.org/10.1175/JAM2327.1>.
- Crawford, M F, H L Welsh, and J L Locke. 1949. “Infra-Red Absorption of Oxygen and Nitrogen Induced by Intermolecular Forces.” *Physical Review* 75 (10): 1607. <https://doi.org/10.1103/PhysRev.75.1607>.
- Crevoisier, C, C Clerbaux, V Guidard, T Phulpin, R Armante, B Barret, C Camy-Peyret, et al. 2014. “Towards IASI-New Generation (IASI-NG): Impact of Improved Spectral Resolution and Radiometric Noise on the Retrieval of Thermodynamic, Chemistry and Climate Variables.” *Atmos. Meas. Tech.* 7 (12): 4367–85. <https://doi.org/10.5194/amt-7-4367-2014>.
- Crevoisier, Cyril, and Caroline Bès. 2018. “Magic, Une Campagne Inédite de Mesures Des Gaz à Effet de Serre.” *La Météorologie*, no. 102: 5. <https://doi.org/10.4267/2042/68202>.
- Crisp, David. 2011. “Measuring Atmospheric Carbon Dioxide from Space: The GOSAT and OCO-2 Missions.” *Optics InfoBase Conference Papers* 2. <https://doi.org/10.1364/e2.2011.ewc6>.
- Dohe, Susanne. 2013. “Measurements of Atmospheric CO<sub>2</sub> Columns Using Ground-Based FTIR Spectra.”
- Dudhia, Anu. 2017. “The Reference Forward Model (RFM).” *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 186: 243–53. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2016.06.018>.
- Eguchi, N., R. Saito, T. Saeki, Y. Nakatsuka, D. Belikov, and S. Maksyutov. 2010. “A Priori Covariance Estimation for CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> Retrievals.” *Journal of Geophysical Research Atmospheres* 115 (10): 1–16. <https://doi.org/10.1029/2009JD013269>.
- Ehret, Gerhard, Philippe Bousquet, Clemence Pierangelo, Matthias Alpers, Bruno Millet, James Abshire, Heinrich Bovensmann, et al. 2017. “MERLIN: A French-German Space Lidar Mission Dedicated to Atmospheric Methane.” *Remote Sensing* 9 (October): 1052. <https://doi.org/10.3390/rs9101052>.
- FAO/WHO/UNEP. 2015. “Report of the Global Environment Facility to the Twenty-First Session of the Conference of the Parties to the United Nations Framework Convention on Climate Change” 15452 (September). <https://unfccc.int/sites/default/files/resource/docs/2015/cop21/eng/04.pdf>.
- Forster, Piers M, Harriet I Forster, Mat J Evans, Matthew J Gidden, Chris D Jones, Christoph A Keller, Robin D Lamboll, et al. 2020. “Current and Future Global Climate Impacts Resulting from COVID-19.” *Nature Climate Change* 10 (10): 913–19. <https://doi.org/10.1038/s41558-020-0883-0>.
- Foucher, P. Y., A. Chédin, R. Armante, C. Boone, C. Crevoisier, and P. Bernath. 2011. “Carbon Dioxide Atmospheric Vertical Profiles Retrieved from Space Observation Using ACE-FTS Solar Occultation Instrument.” *Atmospheric Chemistry and Physics* 11 (6): 2455–70. <https://doi.org/10.5194/acp-11-2455-2011>.

- Frey, M, F Hase, T Blumenstock, J Groß, M Kiel, G Mengistu Tsidu, K Schäfer, M K Sha, and J Orphal. 2015. “Calibration and Instrumental Line Shape Characterization of a Set of Portable FTIR Spectrometers for Detecting Greenhouse Gas Emissions.” *Atmos. Meas. Tech.* 8 (7): 3047–57. <https://doi.org/10.5194/amt-8-3047-2015>.
- Frey, M, M K Sha, F Hase, M Kiel, T Blumenstock, R Harig, G Surawicz, et al. 2019. “Building the COLlaborative Carbon Column Observing Network (COCCON): Long-Term Stability and Ensemble Performance of the EM27/SUN Fourier Transform Spectrometer.” *Atmos. Meas. Tech.* 12 (3): 1513–30. <https://doi.org/10.5194/amt-12-1513-2019>.
- Gałkowski, Michał, Armin Jordan, Michael Rothe, Julia Marshall, Frank-thomas Koch, Jinxuan Chen, Anna Agusti-panareda, Andreas Fix, and Christoph Gerbig. 2020. “In Situ Observations of Greenhouse Gases over Europe during the CoMet 1.0 Campaign Aboard the HALO Aircraft.” *Atmospheric Measurement Techniques Discussions* 7 (August): 1–29. <https://doi.org/10.5194/amt-2020-287>.
- Gille, John, John Barnett, Philip Arter, Marion Barker, Peter Bernath, Chris Boone, Charles Cavanaugh, et al. 2008. “High Resolution Dynamics Limb Sounder: Experiment Overview, Recovery, and Validation of Initial Temperature Data.” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 113 (D16). <https://doi.org/10.1029/2007JD008824>.
- Gisi, M., F. Hase, S. Dohe, and T. Blumenstock. 2011. “Camtracker: A New Camera Controlled High Precision Solar Tracker System for FTIR-Spectrometers.” *Atmospheric Measurement Techniques* 4 (1): 47–54. <https://doi.org/10.5194/amt-4-47-2011>.
- Gisi, M., F. Hase, S. Dohe, T. Blumenstock, A. Simon, and A. Keens. 2012. “XCO<sub>2</sub>-Measurements with a Tabletop FTS Using Solar Absorption Spectroscopy.” *Atmospheric Measurement Techniques* 5 (11): 2969–80. <https://doi.org/10.5194/amt-5-2969-2012>.
- Gordon, I. E., L. S. Rothman, C. Hill, R. V. Kochanov, Y. Tan, P. F. Bernath, M. Birk, et al. 2017. “The HITRAN2016 Molecular Spectroscopic Database.” *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 203: 3–69. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2017.06.038>.
- Griffiths, Peter R, and James A de Haseth. 2007. *Fourier Transform Infrared Spectrometry*. Fourier Transform Infrared Spectrometry. Second edi. Wiley.
- Groenigen, Kees Jan van, Craig W Osenberg, and Bruce A Hungate. 2011. “Increased Soil Emissions of Potent Greenhouse Gases under Increased Atmospheric CO<sub>2</sub>.” *Nature* 475 (7355): 214–16. <https://doi.org/10.1038/nature10176>.
- Harrison, J J. 2018. “New and Improved Infrared Absorption Cross Sections for Trichlorofluoromethane (CFC-11).” *Atmos. Meas. Tech.* 11 (10): 5827–36. <https://doi.org/10.5194/amt-11-5827-2018>.
- Hartmann, Jean-Michel, C. Boulet, and Daniel Robert. 2008. *Collisional Effects on Molecular Spectra*. Elsevier Science. [https://www.m-culture.go.th/mculture\\_th/download/king9/Glossary\\_about\\_HM\\_King\\_Bhumibol\\_Adulyadej's\\_Funeral.pdf](https://www.m-culture.go.th/mculture_th/download/king9/Glossary_about_HM_King_Bhumibol_Adulyadej's_Funeral.pdf).
- Hase, F, J W Hannigan, M T Coffey, A Goldman, M Höpfner, N B Jones, C P Rinsland, and S W Wood. 2004. “Intercomparison of Retrieval Codes Used for the Analysis of High-Resolution, Ground-Based FTIR Measurements.” *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 87 (1): 25–52. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2003.12.008>.
- Hase, Frank, Thomas Blumenstock, and Clare Paton-Walsh. 1999. “Analysis of the Instrumental Line

Shape of High-Resolution Fourier Transform IR Spectrometers with Gas Cell Measurements and New Retrieval Software.” *Applied Optics* 38 (15): 3417–22. <https://doi.org/10.1364/AO.38.003417>.

Herbin, H., and P. Dubuisson. 2016. *Observation Infrarouge de l’atmosphère Terrestre*. ISTE editi. <https://doi.org/10.1515/9783110932409-toc>.

Herbin, H., L. C. Labonnote, and P. Dubuisson. 2013. “Multispectral Information from TANSO-FTS Instrument - Part 1: Application to Greenhouse Gases (CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub>) in Clear Sky Conditions.” *Atmospheric Measurement Techniques* 6 (11): 3301–11. <https://doi.org/10.5194/amt-6-3301-2013>.

Herres, W., and J. Gronholz. 1984. “Understanding FT-IR Data Processing.” *J. Comput. Appl. Lab.* 2: 216–20.

Houweling, S, F.-M. Breon, I Aben, C Rödenbeck, M Gloor, M Heimann, and P Ciais. 2004. “Inverse Modeling of CO<sub>2</sub> Sources and Sinks Using Satellite Data: A Synthetic Inter-Comparison of Measurement Techniques and Their Performance as a Function of Space and Time.” *Atmos. Chem. Phys.* 4 (2): 523–38. <https://doi.org/10.5194/acp-4-523-2004>.

Inness, A, M Ades, A Agustí-Panareda, J Barré, A Benedictow, A.-M. Blechschmidt, J J Dominguez, et al. 2019. “The CAMS Reanalysis of Atmospheric Composition.” *Atmos. Chem. Phys.* 19 (6): 3515–56. <https://doi.org/10.5194/acp-19-3515-2019>.

IPCC, 2013. 2013. “IPCC Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Chapter 2: Observations: Atmosphere and Surface.” *Climate Change 2013 the Physical Science Basis: Working Group I Contribution to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* 9781107057: 159–254.

IPCC, 2014. 2014. “Climate Change 2014: Synthesis Report. Contribution of Working Groups I, II and III to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change.” IPCC, Geneva, Switzerland, 151 pp.

Jacquinet-Husson, N, R Armante, N A Scott, A Chédin, L Crépeau, C Boutammine, A Bouhdaoui, et al. 2016. “The 2015 Edition of the GEISA Spectroscopic Database.” *Journal of Molecular Spectroscopy* 327: 31–72. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jms.2016.06.007>.

Joly, Lilian, Rabih Maamary, Thomas Decarpenterie, Julien Cousin, Nicolas Dumelié, Nicolas Chauvin, Dominique Legain, Diane Tzanos, and Georges Durry. 2016. “Atmospheric Measurements by Ultra-Light SpEctrometer (AMULSE) Dedicated to Vertical Profile in Situ Measurements of Carbon Dioxide (CO<sub>2</sub>) Under Weather Balloons: Instrumental Development and Field Application.” *Sensors* 16 (September): 1609. <https://doi.org/10.3390/s16101609>.

Karion, Anna, Colm Sweeney, Pieter Tans, and Timothy Newberger. 2010. “AirCore: An Innovative Atmospheric Sampling System.” *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 27 (11): 1839–53. <https://doi.org/10.1175/2010JTECHA1448.1>.

Karman, Tijs, Iouli E Gordon, Ad van der Avoird, Yury I Baranov, Christian Boulet, Brian J Drouin, Gerrit C Groenenboom, et al. 2019. “Update of the HITRAN Collision-Induced Absorption Section.” *Icarus* 328: 160–75. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.icarus.2019.02.034>.

Kato, Seiji, Norman G Loeb, Fred G Rose, David R Doelling, David A Rutan, Thomas E Caldwell, Lisan Yu, and Robert A Weller. 2013. “Surface Irradiances Consistent with CERES-Derived Top-of-Atmosphere Shortwave and Longwave Irradiances.” *Journal of Climate* 26 (9): 2719–40. <https://doi.org/10.1175/JCLI-D-12-00436.1>.

- Kattar, Marie-Thérèse El, Frédérique Auriol, and Hervé Herbin. 2020. “Instrumental Characteristics and Potential Greenhouse Gas Measurement Capabilities of the Compact High-Spectral-Resolution Infrared Spectrometer: CHRIS.” *Atmospheric Measurement Techniques* 13 (7): 3769–86. <https://doi.org/10.5194/amt-13-3769-2020>.
- Keeling, Charles D. 1960. “The Concentration and Isotopic Abundances of Carbon Dioxide in the Atmosphere.” *Tellus* 12 (2): 200–203. <https://doi.org/10.3402/tellusa.v12i2.9366>.
- Ki-moon, Ban. 2008. “Kyoto Protocol Reference Manual.” *United Nations Framework Convention on Climate Change*, 130. <https://doi.org/10.5213/jkcs.1998.2.2.62>.
- Kirschke, Stefanie, Philippe Bousquet, Philippe Ciais, Marielle Saunois, Josep G Canadell, Edward J Dlugokencky, Peter Bergamaschi, et al. 2013. “Three Decades of Global Methane Sources and Sinks.” *Nature Geoscience* 6 (10): 813–23. <https://doi.org/10.1038/ngeo1955>.
- Kobayashi, N, G Inoue, M Kawasaki, H Yoshioka, M Minomura, I Murata, T Nagahama, et al. 2010. “Remotely Operable Compact Instruments for Measuring Atmospheric CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> Column Densities at Surface Monitoring Sites.” *Atmos. Meas. Tech.* 3 (4): 1103–12. <https://doi.org/10.5194/amt-3-1103-2010>.
- Krings, Thomas, Bruno Neininger, Konstantin Gerilowski, Sven Krautwurst, Michael Buchwitz, John P. Burrows, Carsten Lindemann, Thomas Ruhtz, Dirk Schüttemeyer, and Heinrich Bovensmann. 2018. “Airborne Remote Sensing and in Situ Measurements of Atmospheric CO<sub>2</sub> to Quantify Point Source Emissions.” *Atmospheric Measurement Techniques* 11 (2): 721–39. <https://doi.org/10.5194/amt-11-721-2018>.
- Liu, Yi, Zhaonan Cai, Dongxu Yang, Yuquan Zheng, Minzheng Duan, and Daren Lü. 2014. “Effects of Spectral Sampling Rate and Range of CO<sub>2</sub> Absorption Bands on XCO<sub>2</sub> Retrieval from TanSat Hyperspectral Spectrometer.” *Chinese Science Bulletin* 59 (14): 1485–91. <https://doi.org/10.1007/s11434-014-0215-8>.
- Loeb, Norman G, Bruce A Wielicki, David R Doelling, G Louis Smith, Dennis F Keyes, Seiji Kato, Natividad Manalo-Smith, and Takmeng Wong. 2009. “Toward Optimal Closure of the Earth’s Top-of-Atmosphere Radiation Budget.” *Journal of Climate* 22 (3): 748–66. <https://doi.org/10.1175/2008JCLI2637.1>.
- Membrive, O, C Crevoisier, C Sweeney, F Danis, A Hertzog, A Engel, H Bönisch, and L Picon. 2017. “AirCore-HR: A High-Resolution Column Sampling to Enhance the Vertical Description of CH<sub>4</sub> and CO<sub>2</sub>.” *Atmos. Meas. Tech.* 10 (6): 2163–81. <https://doi.org/10.5194/amt-10-2163-2017>.
- Mendonca, J, K Strong, G C Toon, D Wunch, K Sung, N M Deutscher, D W T Griffith, and J E Franklin. 2016. “Improving Atmospheric CO<sub>2</sub> Retrievals Using Line Mixing and Speed-Dependence When Fitting High-Resolution Ground-Based Solar Spectra.” *Journal of Molecular Spectroscopy* 323: 15–27. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jms.2016.01.007>.
- Michalsky, Joseph J. 1988. “The Astronomical Almanac’s Algorithm for Approximate Solar Position (1950–2050).” *Solar Energy* 40 (3): 227–35. [https://doi.org/10.1016/0038-092X\(88\)90045-X](https://doi.org/10.1016/0038-092X(88)90045-X).
- National Geophysical Data Center. 1992. “U.S. Standard Atmosphere (1976).” *Planetary and Space Science* 40 (4): 553–54. [https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0032-0633\(92\)90203-Z](https://doi.org/https://doi.org/10.1016/0032-0633(92)90203-Z).
- Neef, Lisa, M van Weele, and Peter Velthoven. 2010. “Optimal Estimation of the Present-Day Global Methane Budget.” *Global Biogeochemical Cycles* 24 (December): GB4024. <https://doi.org/10.1029/2009GB003661>.
- Oliver, John E. 2005. “Kyoto Protocol BT - Encyclopedia of World Climatology.” In , edited by John

- E Oliver, 443. Dordrecht: Springer Netherlands. [https://doi.org/10.1007/1-4020-3266-8\\_118](https://doi.org/10.1007/1-4020-3266-8_118).
- Ozak, N, O Aharonson, and I Halevy. 2016. "Radiative Transfer in CO<sub>2</sub>-Rich Atmospheres: 1. Collisional Line Mixing Implies a Colder Early Mars." *Journal of Geophysical Research: Planets* 121 (6): 965–85. <https://doi.org/10.1002/2015JE004871>.
- Pathakoti, M, S Gaddamidi, B Gharai, S S Mullapudi Venkata Rama, R Kumar Sundaran, and W Wang. 2019. "Retrieval of CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, CO and N<sub>2</sub>O Using Ground- Based FTIR Data and Validation against Satellite Observations over the Shadnagar, India." *Atmos. Meas. Tech. Discuss.* 2019 (February): 1–19. <https://doi.org/10.5194/amt-2019-7>.
- Persky, M J. 1995. "A Review of Spaceborne Infrared Fourier Transform Spectrometers for Remote Sensing." *Review of Scientific Instruments* 66 (10): 4763–97. <https://doi.org/10.1063/1.1146154>.
- Petri, Christof. 2017. "Ground Based Remote Sensing of Atmospheric Greenhouse Gases Using Mobile FTIR Spectrometers Dissertation."
- Petri, Christof, Thorsten Warneke, Nicholas Jones, T Ridder, J Messerschmidt, T Weinzierl, M Geibel, and Justus Notholt. 2012. "Remote Sensing of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> Using Solar Absorption Spectrometry with a Low Resolution Spectrometer." *Atmospheric Measurement Techniques* 5 (July): 1627–35. <https://doi.org/10.5194/amt-5-1627-2012>.
- Pougatchev, N S, B J Connor, and CP Rinsland. 1995. "Infrared Measurements of the Ozone Vertical Distribution above Kitt Peak." *JOURNAL OF GEOPHYSICAL RESEARCH* 100: 16,689-16,697.
- Pougatchev, N S, and C P Rinsland. 1995. "Spectroscopic Study of the Seasonal Variation of Carbon Monoxide Vertical Distribution above Kitt Peak" 100: 1409–16.
- Quéré, Corinne Le, Robert B Jackson, Matthew W Jones, Adam J P Smith, Sam Abernethy, Robbie M Andrew, Anthony J De-Gol, et al. 2020. "Temporary Reduction in Daily Global CO<sub>2</sub> Emissions during the COVID-19 Forced Confinement." *Nature Climate Change* 10 (7): 647–53. <https://doi.org/10.1038/s41558-020-0797-x>.
- Razavi, A., C. Clerbaux, C. Wespes, L. Clarisse, D. Hurtmans, S. Payan, C. Camy-Peyret, and P. F. Coheur. 2009. "Characterization of Methane Retrievals from the IASI Space-Borne Sounder." *Atmospheric Chemistry and Physics* 9 (20): 7889–99. <https://doi.org/10.5194/acp-9-7889-2009>.
- Revercomb, Henry E, H Buijs, Hugh B Howell, D D Laporte, William L Smith, and L A Sromovsky. 1988. "Radiometric Calibration of IR Fourier Transform Spectrometers: Solution to a Problem with the High-Resolution Interferometer Sounder," 1–9. [papers3://publication/uuid/B6A930EA-EAE1-4294-92C7-F7CC7A6BBD61](https://pubs3://publication/uuid/B6A930EA-EAE1-4294-92C7-F7CC7A6BBD61).
- Rigby, M, R G Prinn, P J Fraser, P G Simmonds, R L Langenfelds, J Huang, D M Cunnold, et al. 2008. "Renewed Growth of Atmospheric Methane." *Geophysical Research Letters* 35 (22). <https://doi.org/10.1029/2008GL036037>.
- Rodgers, C.D. 2000. *Inverse Methods for Atmospheric Sounding: Theory and Practice*. Singapore: World Scientific. <http://public.ebookcentral.proquest.com/choice/publicfullrecord.aspx?p=1223583>.
- Rodimova, O B. 2018. "Carbon Dioxide and Water Vapor Continuum Absorption in the Infrared Spectral Region." *Atmospheric and Oceanic Optics* 31 (6): 564–69. <https://doi.org/10.1134/S1024856018060143>.
- Rothman, L. S., I. E. Gordon, Y. Babikov, A. Barbe, D. Chris Benner, P. F. Bernath, M. Birk, et al. 2013. "The HITRAN2012 Molecular Spectroscopic Database." *Journal of Quantitative*

*Spectroscopy and Radiative Transfer* 130: 4–50. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2013.07.002>.

- Rothman, L. S., D. Jacquemart, A. Barbe, D. Chris Benner, M. Birk, L. R. Brown, M. R. Carleer, et al. 2005. “The HITRAN 2004 Molecular Spectroscopic Database.” *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 96 (2 SPEC. ISS.): 139–204. <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2004.10.008>.
- Saunders, R, J Hocking, E Turner, P Rayer, D Rundle, P Brunel, J Vidot, et al. 2018. “An Update on the RTTOV Fast Radiative Transfer Model (Currently at Version 12).” *Geosci. Model Dev.* 11 (7): 2717–37. <https://doi.org/10.5194/gmd-11-2717-2018>.
- Schlatter, Thomas W. 2010. “Vertical Structure of the Atmosphere,” 1–12. <https://doi.org/10.1002/9780470686652.eae582>.
- Scott, N A, and A Chedin. 1981. “A Fast Line-by-Line Method for Atmospheric Absorption Computations: The Automatized Atmospheric Absorption Atlas.” *Journal of Applied Meteorology* 20 (7): 802–12. [https://doi.org/10.1175/1520-0450\(1981\)020<0802:AFLBLM>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0450(1981)020<0802:AFLBLM>2.0.CO;2).
- Siva Kumar, V, P B Rao, and M Krishnaiah. 2003. “Lidar Measurements of Stratosphere-Mesosphere Thermal Structure at a Low Latitude: Comparison with Satellite Data and Models.” *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 108 (D11). <https://doi.org/10.1029/2002JD003029>.
- Suto, H, Akihiko Kuze, Yugo Kaneko, and Takashi Hamazaki. 2006. “Characterization of TANSO-FTS on GOSAT.” *AGU Fall Meeting Abstracts* 1 (November): 903.
- Tarnocai, C, J G Canadell, E A G Schuur, P Kuhry, G Mazhitova, and S Zimov. 2009. “Soil Organic Carbon Pools in the Northern Circumpolar Permafrost Region.” *Global Biogeochemical Cycles* 23 (2). <https://doi.org/10.1029/2008GB003327>.
- Toon, Geoffrey C. 2015. “Solar Line List for the TCCON 2014 Data Release.” CaltechDATA. <https://doi.org/10.14291/TCCON.GGG2014.SOLAR.R0/1221658>.
- Trishchenko, Alexander P. 2006. “Solar Irradiance and Effective Brightness Temperature for SWIR Channels of AVHRR/NOAA and GOES Images.” *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 23 (2): 198–210. <https://doi.org/10.1175/JTECH1850.1>.
- U. Schmidt, and A. Khedim. 1991. “In Situ Measurements of Carbon Dioxide in the Winter Arctic Vortex and at Midaltitudes: An Indicator of the ‘age’ of Stratospheric Air” 18 (4): 763–66.
- Veselovskii, I, P Goloub, Q Hu, T Podvin, D N Whiteman, M Korenskiy, and E Landulfo. 2019. “Profiling of CH<sub>4</sub> Background Mixing Ratio in the Lower Troposphere with Raman Lidar: A Feasibility Experiment.” *Atmos. Meas. Tech.* 12 (1): 119–28. <https://doi.org/10.5194/amt-12-119-2019>.
- Wachter, Evelyn De, Nicolas Kumps, Ann Carine Vandaele, Bavo Langerock, and Martine De Mazière. 2017. “Retrieval and Validation of MetOp/IASI Methane.” *Atmospheric Measurement Techniques* 10 (12): 4623–38. <https://doi.org/10.5194/amt-10-4623-2017>.
- Wcisło, P, I E Gordon, H Tran, Y Tan, S.-M. Hu, A Campargue, S Kassi, et al. 2016. “The Implementation of Non-Voigt Line Profiles in the HITRAN Database: H<sub>2</sub> Case Study.” *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer* 177: 75–91. <https://doi.org/https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2016.01.024>.
- Weitkamp, Claus. 2005. “Lidar, Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere.” *Lidar, Range-Resolved Optical Remote Sensing of the Atmosphere, Edited by Claus Weitkamp. Berlin:*



Springer, 2005. 102 (January). <https://doi.org/10.1007/b106786>.

- Wiacek, Aldona, J. R. Taylor, K. Strong, R. Saari, T. E. Kerzenmacher, N. B. Jones, and D. W.T. Griffith. 2007. "Ground-Based Solar Absorption FTIR Spectroscopy: Characterization of Retrievals and First Results from a Novel Optical Design Instrument at a New NDACC Complementary Station." *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 24 (3): 432–48. <https://doi.org/10.1175/JTECH1962.1>.
- Wielicki, Bruce A, Bruce R Barkstrom, Edwin F Harrison, Robert B Lee III, G Louis Smith, and John E Cooper. 1996. "Clouds and the Earth's Radiant Energy System (CERES): An Earth Observing System Experiment." *Bulletin of the American Meteorological Society* 77 (5): 853–68. [https://doi.org/10.1175/1520-0477\(1996\)077<0853:CATERE>2.0.CO;2](https://doi.org/10.1175/1520-0477(1996)077<0853:CATERE>2.0.CO;2).
- Winker, D M, J Pelon, J A Coakley, S A Ackerman, R J Charlson, P R Colarco, P Flamant, et al. 2010. "The CALIPSO Mission: A Global 3D View of Aerosols and Clouds." *Bulletin of the American Meteorological Society* 91 (9): 1211–30. <https://doi.org/10.1175/2010BAMS3009.1>.
- Wührer, Christian, Christopher Köhl, Stefano Lucarelli, and M Bode. 2019. "MERLIN: Overview of the Design Status of the Lidar Instrument." In *Proc.SPIE*. Vol. 11180. <https://doi.org/10.1117/12.2535999>.
- Wunch, D., G. C. Toon, P. O. Wennberg, S. C. Wofsy, B. B. Stephens, M. L. Fischer, O. Uchino, et al. 2010. "Calibration of the Total Carbon Column Observing Network Using Aircraft Profile Data." *Atmospheric Measurement Techniques* 3 (5): 1351–62. <https://doi.org/10.5194/amt-3-1351-2010>.
- Wunch, Debra, Joseph Mendonca, Orfeo Colebatch, Norton Allen, J.-F. Jean-François L Blavier, Sébastien Roche, Jacob K Hedelius, et al. 2016. "TCCON Data from Jet Propulsion Laboratory (US), 2011, Release GGG2014R1." Pasadena, California. <https://doi.org/10.14291/tcon.ggg2014.indianapolis01.R1/1330094>.
- Wunch, Debra, G.C. Geoffrey C Toon, Vanessa Sherlock, Nicholas M N.M. Deutscher, X. Liu, D.G. Dietrich G Feist, P.O. Paul O Wennberg, Cate Liu, D.G. Dietrich G Feist, and P.O. Paul O Wennberg. 2015. "The Total Carbon Column Observing Network's GGG2014 Data Version," 43. <https://doi.org/10.14291/tcon.ggg2014.documentation.R0/1221662>.
- Wunch, Debra, Geoffrey C Toon, Jean-François L Blavier, Rebecca A Washenfelder, Justus Notholt, Brian J Connor, David W T Griffith, Vanessa Sherlock, and Paul O Wennberg. 2011. "The Total Carbon Column Observing Network." *Philosophical Transactions of the Royal Society A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 369 (1943): 2087–2112. <https://doi.org/10.1098/rsta.2010.0240>.
- Zhou, Minqiang, Bavo Langerock, Corinne Vigouroux, Mahesh Kumar Sha, Christian Hermans, Jean Marc Metzger, Huilin Chen, et al. 2019. "TCCON and NDACC XCO Measurements: Difference, Discussion and Application." *Atmospheric Measurement Techniques* 12 (11): 5979–95. <https://doi.org/10.5194/amt-12-5979-2019>.
- Zhou, Minqiang, Bavo Langerock, Corinne Vigouroux, Mahesh Kumar Sha, Michel Ramonet, Marc Delmotte, Emmanuel Mahieu, et al. 2018. "Atmospheric CO and CH<sub>4</sub> Time Series and Seasonal Variations on Reunion Island from Ground-Based in Situ and FTIR (NDACC and TCCON) Measurements." *Atmospheric Chemistry and Physics* 18 (19): 13881–901. <https://doi.org/10.5194/acp-18-13881-2018>.



## Liste des acronymes

<b>4A/OP</b> : Automatized Atmospheric Absorption Atlas	<b>DOFS</b> : Degrees Of Freedom for Signal
<b>AC</b> : Alternative current	<b>ECMWF</b> : European Centre for Medium-Range Weather Forecasts
<b>ACE-FTS</b> : Atmospheric Chemistry Experiment-Fourier Transform Spectrometer	<b>EDGAR</b> : Emissions Database for Global Atmospheric Research
<b>ADC</b> : Analog to Digital Converter	<b>ESA</b> : European Space Agency
<b>AIRS</b> : Atmospheric Infrared Sounder	<b>ETR</b> : Equation de Transfert Radiatif
<b>AMULSE</b> :Atmospheric Measurements by Ultra-Light SpEctrometer	<b>FFT</b> : Fast Fourier Transform
<b>AR5</b> : Assessment Report	<b>FTIR</b> : Fourier Transform Infrared
<b>ARA</b> : Atmospheric Radiation Analysis	<b>FWHM</b> : Full Width at Half Maximum
<b>ARAHMIS</b> : Atmospheric Radiation Algorithm for High-spectral Measurements from Infrared Spectrometer	<b>GEISA</b> : Gestion et Etude des Informations Spectroscopiques Atmosphériques
<b>ASTM</b> : American Society for Testing and Materials	<b>GES</b> : Gaz à Effet de Serre
<b>BOA</b> : Bottom Of Atmosphere	<b>GOSAT</b> : Greenhouse Gases Observing Satellite
<b>BSO</b> : Ballons Stratosphériques Ouverts	<b>GWP</b> : Global Warming Potential
<b>CALIOP</b> : Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization	<b>HCFC</b> : Hydrochlorofluorocarbons
<b>CALIPSO</b> : Cloud-Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observation	<b>HFL</b> : High Folding Limit
<b>CAMS</b> : Copernicus Atmosphere Monitoring Service	<b>HIRDLS</b> : High Resolution Dynamics Limb Sounder
<b>CCD</b> : Charge Coupled Device	<b>HITRAN</b> : High-resolution Transmission molecular absorption
<b>CERES</b> : Clouds and the Earth's Radiant Energy System	<b>HWHM</b> : Half Width at Half Maximum
<b>CFC</b> : Chlorofluorocarbones	<b>IASI/IASI-NG</b> : Infrared Atmospheric Sounding Interferometer/New-Generation
<b>CHARM-F</b> : CO <sub>2</sub> and CH <sub>4</sub> Remote Monitoring—Flugzeug	<b>IC</b> : Information content
<b>CHRIS</b> : Compact High Spectral Resolution Infrared Spectrometer	<b>IFOV</b> : Field Of View
<b>CIA</b> : Collision Induced Absorption	<b>ILS</b> : Instrumental Line Shape
<b>CNES</b> : Centre National d'Etudes Spatiales	<b>IPCC</b> : Intergovernmental Panel on Climate Change
<b>COCCON</b> : COllaborative Carbon Column Observing Network	<b>IR</b> : Infrared
<b>CoMet</b> : Carbon dioxide and Methane mission	<b>IRHSR</b> : Infrared High Spectral Resolution
<b>COP</b> : Conference Of Parties	<b>JPL</b> :Jet Propulsion Laboratory
<b>COVID</b> : COrona VIrus Disease	<b>KIT</b> : Karlsruhe Institute of Technology
<b>DFT</b> : Discrete Fourier Transform	<b>LBL</b> : Line By Line
<b>DLR</b> : Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt	<b>LBLRTM</b> : Line By Line Radiative Transfer Model
	<b>LFL</b> : Low Folding Limit
	<b>LILAS</b> : Lille LidarAtmosphereS
	<b>LMD</b> : Laboratoire de Météorologie Dynamique
	<b>LNE</b> : Laboratoire national de métrologie et d'essais

**LOA** : Laboratoire d'Optique  
 Atmosphérique  
**LPC2E** : Laboratoire de Physique et de  
 Chimie de l'Environnement et de  
 l'Espace  
**MAGIC** : Monitoring Atmospheric  
 composition and Greenhouse gases  
 through multi-Instrument Campaigns  
**MCT** : Mercury Cadmium Telluride  
**MERLIN** : Methane Remote Sensing  
 Lidar Mission  
**MIR** : Middle Infrared Region  
**MT-CKD** : Mlawer–Tobin–Clough–  
 Kneizys–Davies  
**NASA** : National Aeronautics and Space  
 Administration  
**NCEP** : National Centers for  
 Environmental Prediction  
**NDACC** : Network for the Detection of  
 Atmospheric Composition Change  
**NIR** : Near Infrared Region  
**OCO** : Orbiting Carbon Observatory  
**OEM** : Optimal Estimation Method  
**OPD** : Optical Path Difference  
**PC2A** : PhysicoChimie des Processus de  
 Combustion et de l'Atmosphère  
**PROFFIT** : PROFile FIT  
**QCL** : Quantum Cascade Laser  
**RMS** : Root Mean Square  
**SAFIRE** : Service des avions français  
 instrumentés pour la recherche en  
 environnement  
**SCISAT-1** : Scientific Satellite  
**SNR** : Signal to Noise Ratio  
**SPIRIT** : Spectromètres Infra-Rouges In  
 situ Troposphérique  
**SWIR** : ShortWave Infrared Region  
**SZA** : Solar Zenithal Angle  
**TANSO-FTS** : Thermal And Near  
 infrared Sensor for carbon Observation -  
 Fourier Transform Spectrometer  
**TCCON** : Total Carbon Column  
 Observing Network  
**TIR** : Thermal Infrared Region  
**TOA** : Top Of Atmosphere

**TROPOMI** : TROPOspheric  
 Monitoring Instrument  
**UV** : UltraViolet  
**WHO** : World Health Organization  
**WMO** : World Meteorological  
 Organization  
**WS-CRDS** : Wavelength-Scanned  
 Cavity Ring-Down Spectroscopy  
**ZFF** : Zero Filling Factor  
**ZPD** : Zero Path Difference



## Annexes

Annexe 1 : Code Matlab pour la calibration radiométrique et spectrale, incluant le code pour calculer l'angle solaire zénithal.

```
clear;

%% insert the spectra
[filename, pathname] = uigetfile('*.*', 'All Files (*.*)', ...
    'C:\Users\EI Kattar\Desktop\Fichier ASCII\2019\18-06', 'MultiSelect',
    'on');
numfiles = size(filename,2);
j=0;

%% defining the wn interval BT
for i=1:numfiles
    fullspectrum=load(filename{i});%VDA22062018_8h48.0026
    wn= fullspectrum(:,1);
    wn2=wn(end:-1:1);
    wnBT=wn2(1:11690);
    v=fullspectrum(:,2);
    v2=v(end:-1:1);
    vBT=v2(1:11690);

%% angle solaire
rad=pi/180;
lat=44.2628*rad;
longitude=0.6339;
year=2019;
day=169;
hour=15.48+j;
% get the current Julian date
delta=year-1949;
leap=fix(delta/4);
jd=2432916.5+(delta*365)+leap+day+(hour/24);
% calculate ecliptic coordinates
n=jd-2451545;
%force mean longitude between 0 and 360 degs
L=280.46+0.9856474*n;
L=mod(L,360);
if(L<0)
    L=L+360;
end
% mean anomaly in radians between 0, 2*pi
g=357.528+0.9856003*n;
g=mod(g,360);
if(g<0)
    g=g+360;
end
g=g*rad;
% compute ecliptic longitude and obliquity of ecliptic
l=L+1.915*sin(g)+0.02*sin(2*g);
l=mod(l,360);
if(l<0)
```

```

        l=l+360;
    end
    ep=23.439-0.0000004*n;
    l=l*rad;
    ep=ep*rad;
    %calculate right ascension and declination
    num=cos(ep)*sin(l);
    den=cos(l);
    ra=atan(num/den);
    %force ra between 0 and 2*pi
    if(den<0)
        ra=ra+pi;
    elseif(num<0)
        ra=ra+2*pi;
    end
    %calculate Greenwich mean sidereal time in hours
    gmst=6.697375+0.0657098242*n+hour;
    %hour not changed to sidereal sine "time" includes the fractional day
    gmst=mod(gmst,24);
    if(gmst<0)
        gmst=gmst+24;
    end
    % calculate local mean sidereal time in radians
    lmst=gmst+longitude/15;
    lmst=mod(lmst,24);
    if(lmst<0)
        lmst=lmst+24;
    end
    lmst=lmst*15*rad;
    % calculate hour angle in radians between -pi, pi
    ha = lmst-ra;
    if(ha<-pi)
        ha=ha+2*pi;
    end
    if(ha>pi)
        ha=ha-2*pi;
    end
    dec=asin(sin(ep)*sin(l));
    Zd=asin(sin(dec)*sin(lat)+cos(dec)*cos(lat)*cos(ha)); %elevation degrees
    Z=Zd/rad; %elevation rad
    j=j+0.03;

    %% fonction de planck BT
    xq(:,1)=679.9709:0.06025:5299.8922;
    load('Interpolatedcn540.mat');
    cn540wn=cn540(:,1);
    cn540value=cn540(:,2);
    load('Interpolatedcn1200.mat');
    cn1200wnBT=cn1200(:,1);
    cn1200valueBT=cn1200(:,2);
    FBT = griddedInterpolant(cn540wn,cn540value,'pchip','nearest');
    y1_BT = FBT(wnBT);
    F2_BT = griddedInterpolant(cn1200wnBT,cn1200valueBT,'pchip','nearest');
    y2_BT = F2_BT(wnBT);

    load('Fonction_Planck_Référence_new');

```

```

fT0=(1.1910427e-8*(wnBT.^3))./(exp((1.4387752.*wnBT)/4846.25)-
1)+(1.1910427e-8*(wnBT.^3))./(exp((1.4387752.*wnBT)/292.85)-1);

%% plotting the blackbody functions BT
C540=load('TestCNCav540_100scans.0.txt');
C1200=load('TestCNCav1200_100scans.0.txt');
C_540wn1=C540(:,1);
CN540=C_540wn1(end:-1:1);
C_540wn=CN540(1:11690);
C_1200wn1=C1200(:,1);
CN1200=C_1200wn1(end:-1:1);
C_1200wnBT=CN1200(1:11690);
C_540v1=C540(:,2);
cn540v=C_540v1(end:-1:1);
C_540v=cn540v(1:11690);
Cn1200vBT=C1200(:,2);
cn1200v=Cn1200vBT(end:-1:1);
C_1200vBT=cn1200v(1:11690);
yy1_BT=y1_BT; %S1
yy2_BT=y2_BT; %S2

%% calculating the planck functions
B1=(1.1910427e-8*(wnBT.^3))./(exp((1.4387752.*wnBT)/813.15)-1);
B2=(1.1910427e-8*(wnBT.^3))./(exp((1.4387752.*wnBT)/1473.15)-1);

%% calculating the gain and the offset
gT=(yy1_BT-yy2_BT)./(B1-B2);%gain
bT=(yy1_BT.*B2-yy2_BT.*B1)./(B2-B1);%offset

%% spectrum to calibrate
%facteur 16/25: différence entre les mesures des spectres faites à 5mm et
celles des CN faites à 4mm
Lcal=(vBT-bT)./gT;
LT=(Lcal*25)/25;

%% Transmittance
Tr0=LpostBT./fT0;
x0=max(Tr0);
TrBT=Tr0./x0;

%% defining the wn interval B1
wnB1=wn2(18590:26391);
vB1=v2(18590:26391);

xqB1=xq(18590:26391);
load('Interpolatedcn1000.mat');
cn1000wnB1=cn1000(:,1);
cn1000valueB1=cn1000(:,2);
F1_B1 = griddedInterpolant(cn1000wnB1,cn1000valueB1,'pchip','nearest');
y1_B1 = F1_B1(wnB1);
F2_B1 = griddedInterpolant(cn1200wnBT,cn1200valueBT,'pchip','nearest');
y2_B1 = F2_B1(wnB1);

pT = polyfit(xq,A,6);
fT = polyval(pT,xq);
fT1 = interp1(xq,fT,wnB1,'linear','extrap');

```



```

%% plotting the blackbody functions B1
C1000=load('TestCNCav1000_100scans.0.txt');
C_1000wn1=C1000(:,1);
cn1000=C_1000wn1(end:-1:1);
C_1000wnB1=cn1000(18590:26391);
C_1200wnB1=cn1200(18590:26391);
C_1000v1=C1000(:,2);
cn1000v=C_1000v1(end:-1:1);
C_1000vB1=cn1000v(18590:26391);
C_1200vB1=cn1200v(18590:26391);
yy1_B1=y1_B1; %S1
yy2_B1=y2_B1; %S2

%% calculating the planck functions
B1_1=(1.1910427e-8*(wnB1.^3))./(exp((1.4387752.*wnB1)/1273.15)-1);
B2_1=(1.1910427e-8*(wnB1.^3))./(exp((1.4387752.*wnB1)/1473.15)-1);

%% calculating the gain and the offset
g1=(yy1_B1-yy2_B1)./(B1_1-B2_1);%gain
b1=(yy1_B1.*B2_1-yy2_B1.*B1_1)./(B2_1-B1_1);%offset

%% spectrum to calibrate
L1cal=(vB1-b1)./g1;
L1=(L1cal*25)/25;

%% Transmittance B1
T1=Lpost1./fT1;
x1=max(T1);
Tr1=T1./x1;

%% fonction de planck B2
wnB2=wn2(27860:48600);
vB2=v2(27860:48600);

%% defining the wn interval
xq(:,1)=679.9709:0.06025:5299.8922;
F1_B2 = griddedInterpolant(cn1000wnB1,cn1000valueB1,'pchip','nearest');
y1_B2 = F1_B2(wnB2);
F2_B2 = griddedInterpolant(cn1200wnBT,cn1200valueBT,'pchip','nearest');
y2_B2 = F2_B2(wnB2);
fT2 = interp1(xq,fT,wnB2,'linear','extrap');

%% plotting the blackbody functions B2
C_1000wnB2=cn1000(27860:48600);
C_1200wnB2=cn1200(27860:48600);
C_1000vB2=cn1000v(27860:48600);
C_1200vB2=cn1200v(27860:48600);
yy1_B2=y1_B2; %S1
yy2_B2=y2_B2; %S2

%% calculating the planck functions B2
B1_2=(1.1910427e-8*(wnB2.^3))./(exp((1.4387752.*wnB2)/1273.15)-1);
B2_2=(1.1910427e-8*(wnB2.^3))./(exp((1.4387752.*wnB2)/1473.15)-1);

%% calculating the gain and the offset B2

```

```

g2=(yy1_B2-yy2_B2)./(B1_2-B2_2);%gain
b2=(yy1_B2.*B2_2-yy2_B2.*B1_2)./(B2_2-B1_2);%offset

%% spectrum to calibrate B2
L2cal=(vB2-b2)./g2;
L2=(L2cal*25)/25;

%% Transmittance
T2=Lpost2./fT2;
x2=max(T2);
Tr2=T2./x2;
%% defining the wn interval B3
wnB3=wn2(54030:75420);
vB3=v2(54030:75420);

%% fonction de planck B3
xq(:,1)=679.9709:0.06025:5299.8922;
F1_B3 = griddedInterpolant(cn1000wnB1,cn1000valueB1,'pchip','nearest');
y1_B3 = F1_B3(wnB3);
F2_B3 = griddedInterpolant(cn1200wnBT,cn1200valueBT,'pchip','nearest');
y2_B3 = F2_B3(wnB3);

fT3=interp1(xq,fT,wnB3,'linear','extrap');

%% plotting the blackbody functions B3
C_1000wnB3=cn1000(54275:75101);
C_1200wnB3=cn1200(54275:75101);
C_1000vB3=cn1000v(54275:75101);
C_1200vB3=cn1200v(54275:75101);
yy1_B3 = y1_B3; %S1
yy2_B3 = y2_B3; %S2

%% calculating the planck functions B3
B1_3=(1.1910427e-8*(wnB3.^3))./(exp((1.4387752.*wnB3)/1273.15)-1);
B2_3=(1.1910427e-8*(wnB3.^3))./(exp((1.4387752.*wnB3)/1473.15)-1);

%% calculating the gain and the offset B3
g3=(yy1_B3-yy2_B3)./(B1_3-B2_3);%gain
b3=(yy1_B3.*B2_3-yy2_B3.*B1_3)./(B2_3-B1_3);%offset

%% spectrum to calibrate B3
L3cal=(vB3-b3)./g3;
L3=(L3cal*25)/25;

%% Transmittance B3
T3=Lpost3./fT3;%(1:20576)
x3=max(T3);
Tr3=T3./x3;

%% sauvegarder les TR,Rad,FP
wavenumber=vertcat(wnBT,wn2(11691:18589),wnB1,wn2(26391:27860),wnB2,wn2(48600:54030),wnB3);
valuesRad=vertcat(LpostBT,v2(11691:18589),Lpost1,v2(26391:27860),Lpost2,v2(48600:54030),Lpost3);
valuesTr=vertcat(TrBT,v2(11691:18589),Tr1,v2(26391:27860),Tr2,v2(48600:54030),Tr3);

```

```

%% calibration spectrale
P1=find(wavenumber==4699.71222);
P2=find(wavenumber==4699.77249);
P=sort(valuesTr(P1:P2));
index1=find(valuesTr==P(1));
Raie=wavenumber(index1);
index2=find(valuesTr==P(2));
Raie2=wavenumber(index2);
x=1/(P(1)+P(2));
calsp=x*(P(1)*Raie2+P(2)*Raie);
alpha=(4699.753-calsp)/4699.753;

%delete the duplicated wavenumbers (for Arahmis)
wavenumber1=wavenumber.*(1+alpha);
[wavenumber2, ind] = unique(wavenumber1, 'rows');
% duplicate indices
duplicate_ind = setdiff(1:size(wavenumber1, 1), ind);
valuesRad(duplicate_ind)=[];

Radiance=[wavenumber2 valuesRad.*1.81];
Transmittance=[wavenumber1 valuesTr];

save(sprintf('ASA18062019_Amulse_15H29_Rad_%f_%i.txt',Z,i),'Radiance','-
ascii');

end

%% plot résultats
plot(xq,A,'r',xq,fT,'k',wavenumber2,valuesRad.*1.81),...
    xlabel('Nombre d"onde (cm-1)'),ylabel('I(W.m-2.sr-1.cm)');

```

## Annexe 3 : Bruker OPUS Data collection and analysis FTIR software program

Après l'écran de Login il y a une page d'accueil qui énumère des informations sur OPUS (numéro de version, code de License, etc.).

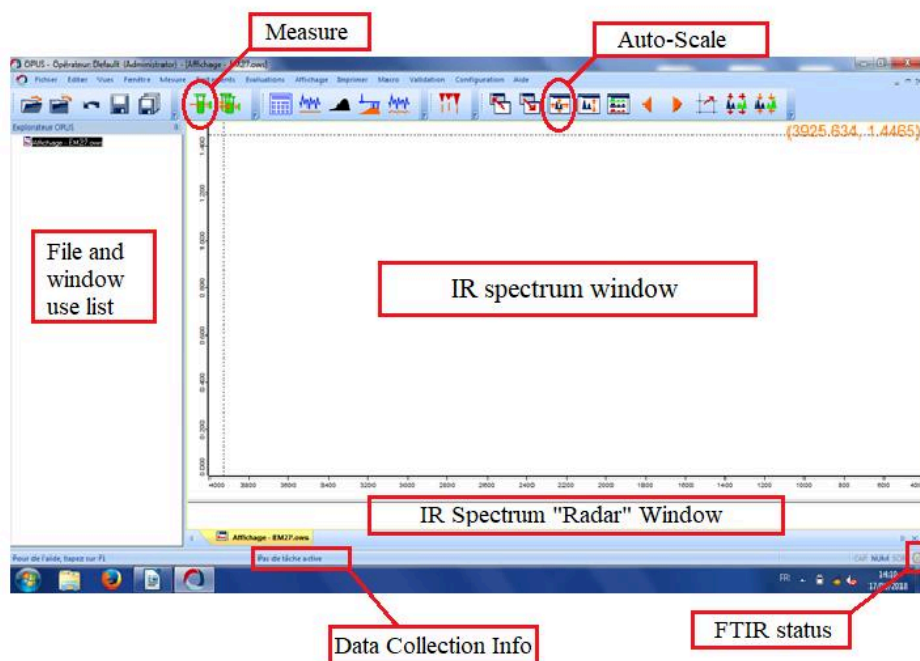


**Figure 1 :** Page d'accueil d'OPUS.

### Data Collection Details/Settings :



Le menu d'acquisition des données est ouvert en cliquant sur **Measure** (cf. Fig. 2), puis sur **Advanced Measurement**. Cela va ouvrir la fenêtre des mesures (voir fig.3) où il y a plusieurs onglets donnant des détails sur plusieurs aspects du mode d'acquisition, collection de données, le traitement de TF, etc... La fenêtre principale d'OPUS est montrée ci-dessous.



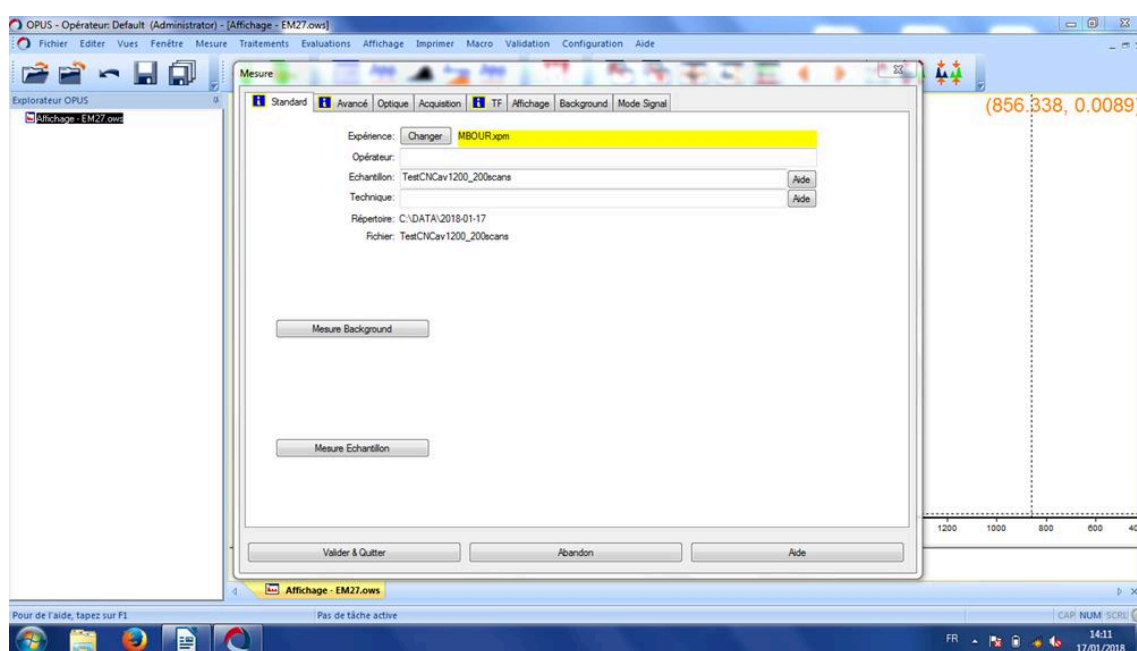
**Figure 2 :** Fenêtre principale d'OPUS.

## **1-Standard :**

**Aspect pratique :** L'onglet **Standard** affiche le contenu du protocole expérimental (cf. Figure 3). Ce fichier s'appelle par exemple « NOM ».xpm et se trouve dans C : \ Program Files \ OPUS \ XPM. Par défaut, le protocole utilisé est MBOUR.xpm.

**Lorsqu'on configure un test spécial et on modifie nos données, on peut enregistrer l'expérience sous forme de fichier XPM.**

Dans cet écran il est important de spécifier le nom de fichier marqué **Echantillon** : cela correspond à l'emplacement où les spectres et les données sont stockés. Généralement, on utilise un nom de fichier informatif du type : « LieuJJmmaaaa\_heure », comme par exemple : Izana02072015\_13h11. OPUS ajoutera un numéro en tant qu'extension de fichier, en commençant par 0. Ensuite, Il va auto-incrémenter le numéro d'extension à chaque nouveau spectre enregistré en gardant le même nom de fichier.



**Figure 3 :** L'onglet Standard sur l'écran de « Mesure ».

**Remarque :** il y a plusieurs fichiers XPM (Fig. 4), les plus utilisés sont MBOUR pour les mesures atmosphériques et les fichiers CN40 et CN80 (figure ci-dessous) pour les mesures de corps noir à l'intérieur de l'instrument. Le protocole MBOUR est le protocole « Standard » pour CHRIS :

- Résolution :  $0.2 \text{ cm}^{-1}$
- Nombre de scans : 100 et 1 pour background
- Domaine spectral :  $680\text{-}5200 \text{ cm}^{-1}$
- Canal de mesure : External
- Détecteur : Mode AC+DC
- Vitesse de balayage : 120 KHz
- Gain échantillon et préampli : x1, référence.
- Mode d'acquisition: single sided forward backward
- TF: Boxcar

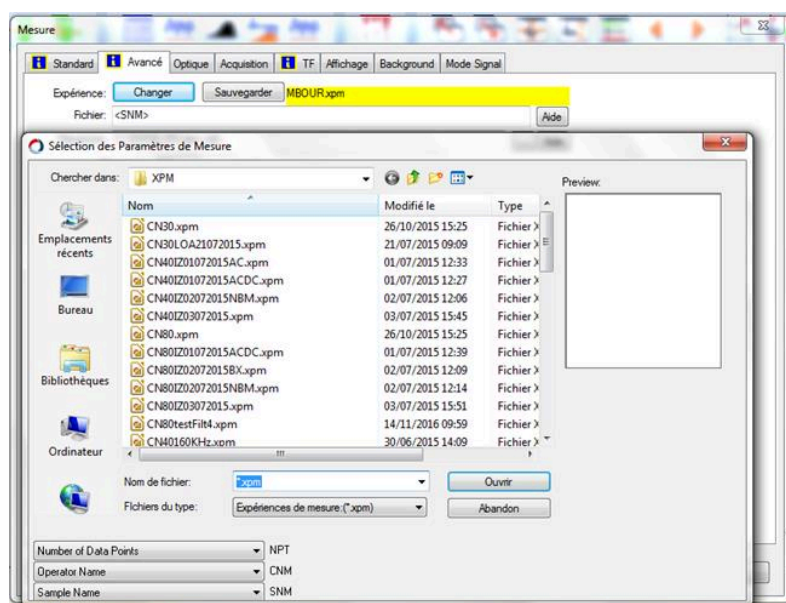
**Remarque :** il est important de spécifier l'heure d'acquisition car l'heure est importante pour calculer l'élévation solaire lors de l'exploitation des mesures.



Après chaque journée de mesures il faut effectuer des mesures corps noir à 40 et 80°C pour s'assurer qu'il n'y a pas une dérive dans le détecteur et refaire une mesure SUN directement après pour éteindre le corps noir car sinon le corps noir ne s'éteint pas qui nous emmène à un BUG!!

Les mesures corps noir sont des mesures échantillons effectués successivement :

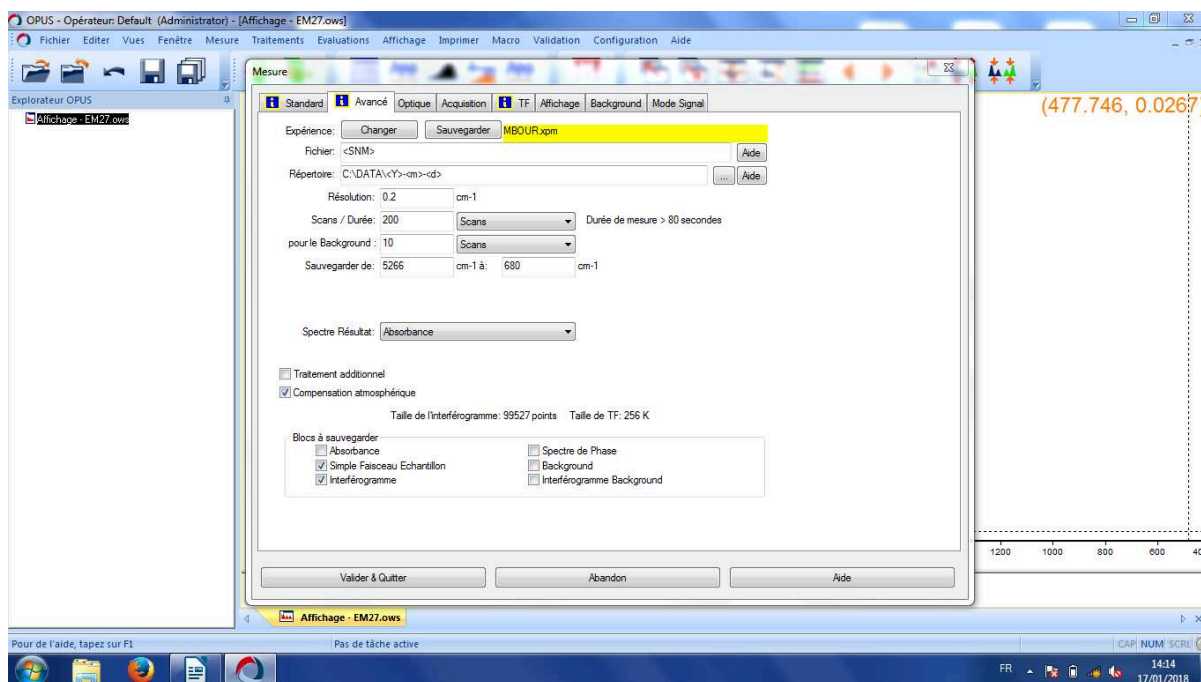
- On choisit un fichier xpm (Figure 4) correspondant à la température souhaitée (40° C d'abord) et on exécute une mesure « test » le temps que le corps noir se réchauffe,
- On exécute une deuxième « vraie » mesure à 40° C,
- On choisit de nouveau un fichier xpm mais cette fois correspondant à la température 80° C, et on effectue les mesures de façon similaire.



**Figure 4 :** Fenêtre de sélection des paramètres de mesures.

## **2-Avancé :**

Cet écran "avancé" (Figure 5) a presque tous les paramètres communs modifiables : résolution, nombre de scans, Background et échantillon, domaine spectral, traitement additionnel et les blocs de données qu'on veut enregistrer dans le fichier du spectre. Les descriptions de ces paramètres clés sont discutées ci-dessous.



**Figure 5 :** Différentes options modifiables : résolution, nombre de scans, les blocs à sauvegarder... dans l'onglet Avancé.

## I- Résolution :

**Aspect pratique :** C'est la résolution spectrale de l'instrument en unité de nombres d'onde ( $\text{cm}^{-1}$ ). Le réglage par défaut est  $0.2 \text{ cm}^{-1}$  qui correspond à une résolution de  $0.135 \text{ cm}^{-1}$  de CHRIS (la plus fine possible), car OPUS n'accepte pas de valeurs inférieure à  $0.2 \text{ cm}^{-1}$  (sinon erreur). Le pas d'échantillonnage correspond au critère de Nyquist qui stipule que la fréquence d'échantillonnage doit être au moins le double de la plus haute fréquence enregistrée pour une restitution correcte de la transformée de Fourier. Ce pas est défini par la formule suivante :

$$\frac{\text{Valeur Maximale de nb d'onde} - \text{Valeur Minimale}}{\text{nombre de points}}$$

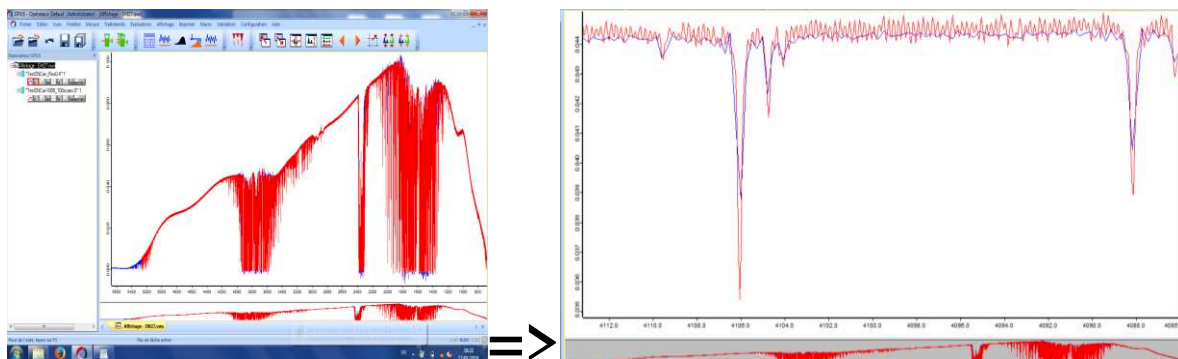
Cette formule donne une valeur de  $0.06025 \text{ cm}^{-1}$ . La différence de marche optique maximale (MOPD) de l'instrument CHRIS est de 4.42 cm, et puisqu'on utilise une fonction Boxcar on peut se référer au Tableau 1 (L représente MOPD) pour calculer la résolution spectrale. On obtient une valeur de  $0.135 \text{ cm}^{-1}$  ce qui est conforme avec le critère de Nyquist.



ID	Name	HWHM
NO	No instrumental effect	0
BX	Boxcar (no apodisation)	0.6033/L
TR	Triangle	0.8859/L
TP	Trapeze	0.6187/L
HG	Happ-Genzell	0.9105/L
NW	Norton-Beer Weak	0.6768/L
NM	Norton-Beer Medium	0.7820/L
NS	Norton-Beer Strong	0.8111/L
B3	Blackmann-Harris 3 Points	1.0535/L
B4	Blackmann-Harris 4 Points	1.1204/L

**Tableau 1 :** Différents fonctions d'apodisations et leur largeur de raie correspondante où  $L$  est la différence de marche optique maximale.

**Exemple d'exécution :** Dans la figure 6 ci-dessous on trace 2 spectres, un correspondant à une résolution de  $0.2 \text{ cm}^{-1}$  (rouge) avec un pas de  $0.06025 \text{ cm}^{-1}$  et l'autre correspondant à  $0.4 \text{ cm}^{-1}$  (bleu) avec un pas de  $0.2 \text{ cm}^{-1}$ . Les caractéristiques générales de ces 2 spectres sont les mêmes. Toutefois, les pics d'une résolution à  $0.2 \text{ cm}^{-1}$  sont plus intenses et donnent une signature spectrale plus prononcée, mais remarquons aussi que le bruit augmente avec la résolution.



**Figure 6 :** a) 2 spectres corps noirs avec des résolutions différentes :  $0.2 \text{ cm}^{-1}$  (rouge) et  $0.4 \text{ cm}^{-1}$  (bleu) ; b) un zoom sur les 2 spectres pour observer la différence entre les 2 résolutions.

## II- Nombre de scans :

**Aspect pratique : Background et échantillon :** Nous spécifions généralement ceci avec le nombre de scans (le temps en minutes est l'autre option). CHRIS est un interféromètre à balayage rapide « **rapid scan** ». Le miroir mobile se déplace à une vitesse constante pendant chaque scan. Le SNR (Signal-to-Noise ratio, rapport signal sur bruit) du spectre est amélioré par des mesures répétées (un grand nombre de scans) et la co-addition des interférogrammes. Le signal s'ajoute de manière cohérente, contrairement au bruit qui est aléatoire et n'augmente donc qu'avec la racine carrée du nombre des scans. Le miroir mobile commence la collecte des données au point central de l'interférogramme ou la différence de marche nulle (ZPD : zero path difference). Le miroir se déplace ensuite à travers la différence de marche jusqu'au retard maximum de l'autre côté de l'interférogramme jusqu'à la

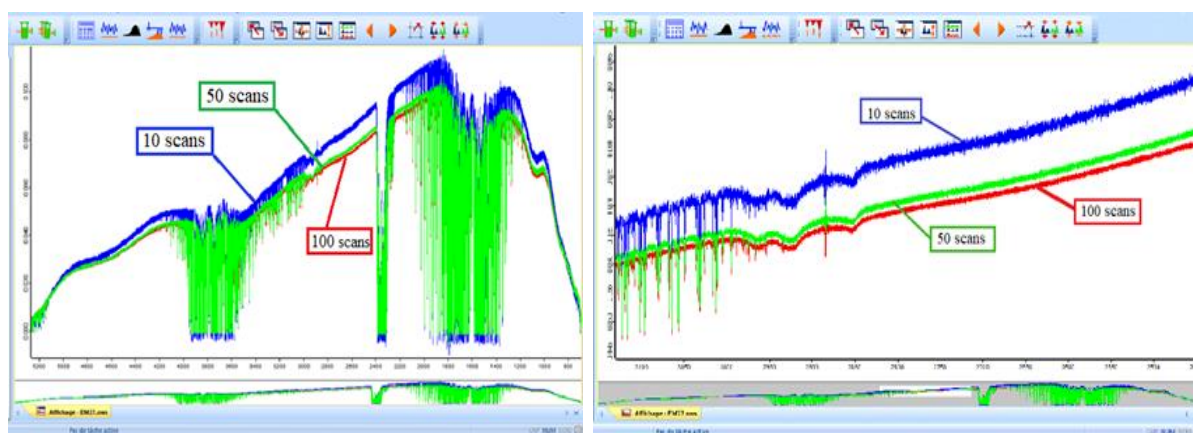


résolution désirée. L'interférogramme est échantillonné selon le critère de Nyquist. Lorsque le retard maximum a été atteint, le miroir mobile est décéléré et sa direction est inversée où il retourne à sa position initiale. Ce processus est répété aussi souvent que nécessaire pour atteindre le SNR souhaité. Un scan correspond donc à un mouvement de déplacement du miroir mobile, de sa position initiale à sa position maximale.

**Remarque :** Dans la fenêtre « Avancé », on peut indiquer le nombre de scans pour le background, mais l'instrument CHRIS ne génère pas de signal background (une cellule vide pour tester l'instrument avant de mettre un échantillon). On fixe donc, le nombre de scans background à 1.

**Remarque :** Notons que le rapport signal sur bruit (S/N) dans un spectre est proportionnel à la racine carrée du temps d'acquisition (nombre de scans). Donc, si le rapport signal/bruit n'est pas suffisant, on peut augmenter le nombre de scans d'une puissance de 2 (par exemple de 16 à 256).

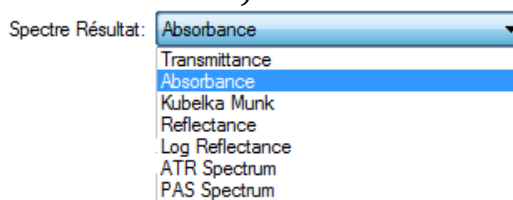
**Exemple d'exécution :** Le spectre avec un nombre de scans=10 (voir Fig. 7a) a une intensité plus forte que celui à 50 et 100 scans. Par contre, quand on zoom (Figure 7b) on peut voir que les spectres à 50 et 100 scans sont moins bruités que celui de 10 scans qui contient beaucoup plus de bruit. Ceci est dû au fait que l'augmentation de nombre de scans entraîne une augmentation du SNR et donc par conséquence le bruit diminue, alors les spectres avec un grand nombre de scans ont une intensité moindre que celui de 10 scans. Cependant, il y a une limite au nombre de scans au-delà duquel aucune amélioration du SNR n'est obtenue, pour cela les spectres de 100 et 200 scans n'ont pas une grande différence. De plus, le fond thermique a un rôle très important d'où il affecte le spectre fortement à des nombres de scans petits (10 scans) tandis qu'il a un effet négligeable quand on augmente le nombre de scans (100 et 200 scans). En plus, il y a des critères spécifiques pour choisir le nombre de scans approprié. Notamment, quand on veut mesurer des espèces dont la concentration change rapidement comme par exemple les panaches volcaniques, on a besoin d'un nombre de scans relativement petit pour pouvoir suivre temporellement le changement de la composition atmosphérique. Par contre, quand on fait des mesures de composition atmosphérique relativement stable comme par exemple les gaz à effet de serre ( $\text{CO}_2$  et  $\text{CH}_4$ ) on peut augmenter le nombre de scans jusqu'à 100.



**Figure 7 :** a) Représentation de 3 spectres avec des nombres de scans différents : 10(bleu), 50(vert) et 100 scans (rouge) ; b) un zoom sur les 3 spectres

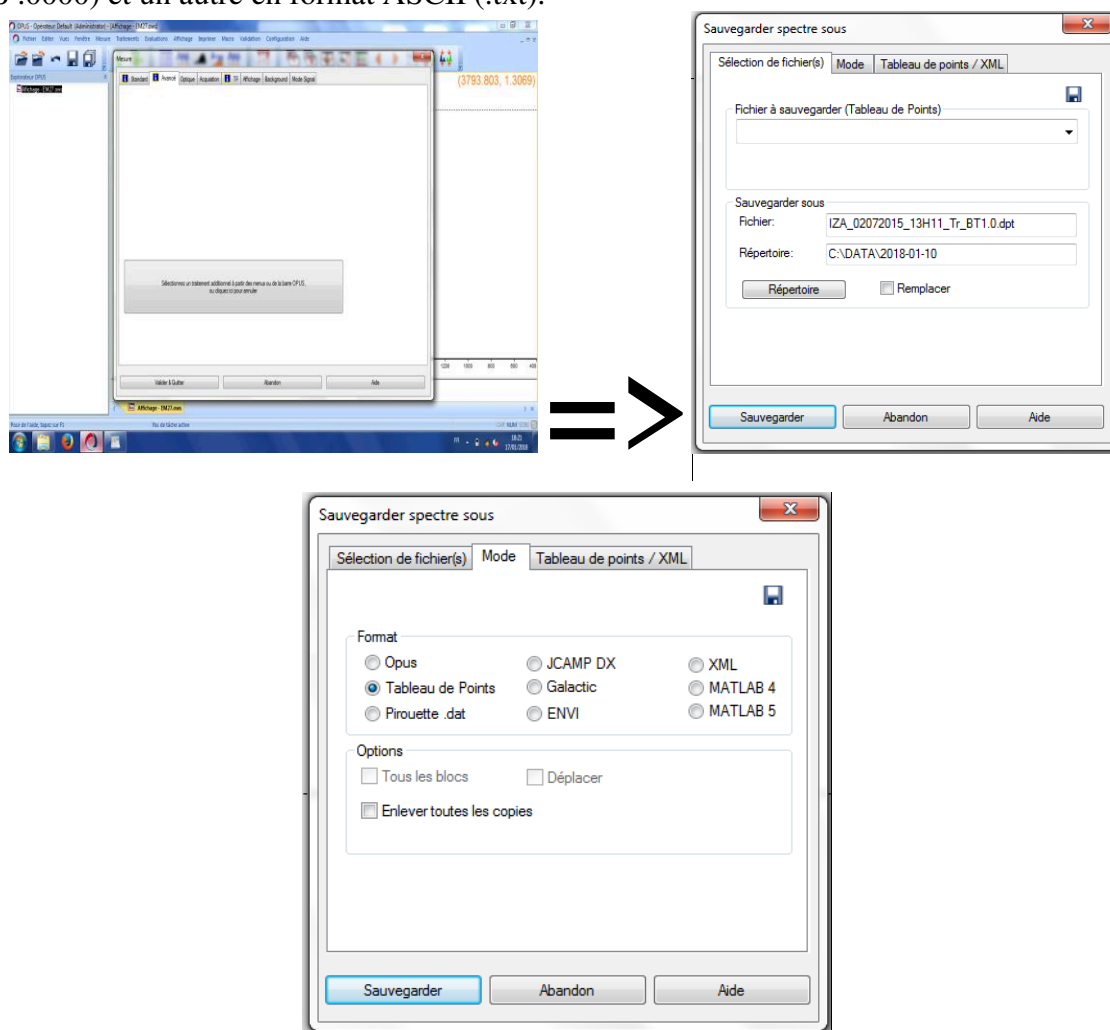
**III-Sauvegarder la fenêtre spectrale :** Ceci représente la plage du nombre d'onde qui sera enregistrée et affichée pour le spectre. Notez que l'interféromètre scanne de 0 à  $8000\text{ cm}^{-1}$ , mais nous n'enregistrons qu'une partie de cette plage ( $680\text{--}5200\text{ cm}^{-1}$ ) car la séparatrice KBr qui se trouve dans CHRIS coupe le signal à  $5200\text{ cm}^{-1}$ .

**IV-Spectre Résultat :** Cela doit être réglé sur Absorbance, comme le montre la figure 8. Cette absorbance est en unité arbitraire (u.a) doit ensuite être transformée par un processus de calibration en Radiance qui a pour unité ( $\mu W.m^{-2}.sr^{-1}.cm^{-1}$ ).



**Figure 8 :** Le spectre résultat à sauvegarder.

**V-Traitement additionnel :** Afin d'enregistrer les blocs de données en format OPUS et aussi en format ASCII, nous devons effectuer les étapes suivantes : Quand on clique sur traitement additionnel, on clique sur le côté droit (...) pour pouvoir choisir une fonction OPUS quelconque. On choisit **Enregistrer sous** (Save As, Figure 9a). Ensuite, on définit les paramètres (Figure 9b) comme le nom du fichier et le répertoire. **Faire bien attention de préciser le répertoire où les fichiers sont enregistrés (Figure 9b) et de cocher la case « Tableau de points » dans l'onglet Mode (Figure 9c).** On vérifie tout et on clique sur OK, une ligne de commande aura été créée dans la boîte de dialogue de mesure avancée. Dans ce cas, il y a toujours 2 fichiers dans le répertoire : un en format binaire (OPUS .0000) et un autre en format ASCII (.txt).



**Figure 9 :** a) L'option Traitement Additionnel ; b) Sauvegarder le spectre sous format .txt avec une incrémentation automatique du nombre du spectre ; c) vérifier que la case Tableau de Points est cochée.



il faut faire attention à la différence entre l'incrémentation automatique des fichiers binaires et celle des fichiers ASCII. En effet, l'incrémentation des fichiers binaires (qui seront transformés en fichier ASCII en exécutant une Macro commande) se fait au niveau de l'extension des fichiers par exemple :

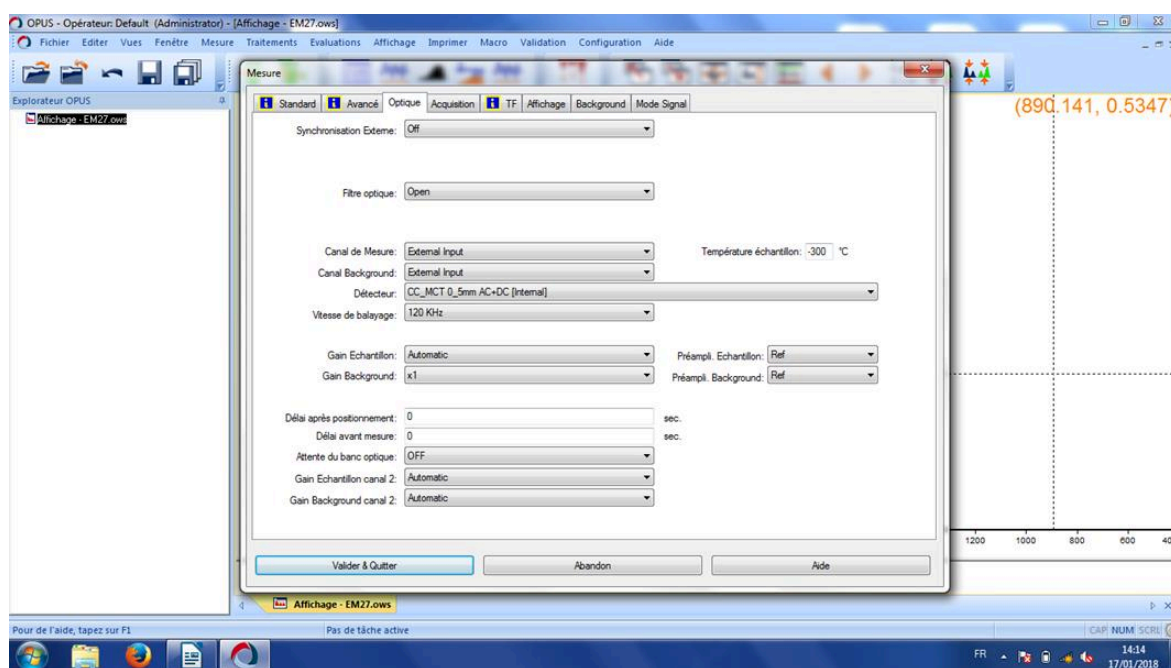
- AireAdour23052018\_11h30.0000 (.txt)
- AireAdour23052018\_11h30.0001 (.txt)

Tandis que l'incrémentation des fichiers ASCII se fait au niveau du nombre du spectre :

- AireAdour23052018\_11h30.txt
- AireAdour23052018\_11h31.txt

**VI-Compensation Atmosphérique :** Cette option n'est pas utile pour l'instrument CHRIS et n'affecte pas les mesures, donc il ne faut pas l'activer.

**3- Optique :** On parlera de quelques-uns des paramètres qu'on peut changer dans certaines circonstances (Figure 10).



**Figure 10 :** L'onglet Optique avec les différentes options modifiables : vitesse de balayage, gain et préampli...

**I-Canal de mesure :** On met « External Input » car si on met « Référence » l'instrument fait une mesure de corps noir à l'intérieur de CHRIS. La température « -300°C » indique celle du corps noir. Durant les mesures solaires cette température doit être toujours fixe sur -300°C (corps noir éteint), mais quand on fait des mesures corps noir on choisit les protocoles de mesure CN40 et CN80 qui correspondent respectivement à des températures de 40° et 80°C du corps noir.

**⚠** *Noter que si on fait les mesures corps noir avant les mesures solaires, le corps noir reste allumé et peut affecter les spectres. Pour cela, il faut toujours faire attention d'exécuter les mesures corps noir à la fin des mesures solaires.*

## **II- Détecteur :**

Aspect pratique : L'instrument CHRIS comporte un seul détecteur infrarouge quantique : MCT (tellure de mercure et de cadmium) qui couvre une gamme spectrale de 600 à 10 000  $\text{cm}^{-1}$  ; il est très sensible et très rapide. La réponse de ce détecteur est non linéaire liée à la saturation du détecteur en présence d'un flux important de photons. En plus il y a l'incidence d'un fond thermique qui est défini comme étant un signal détecté en absence de source et qui est propre à l'optique de l'instrument. Ce fond se présente seulement dans la bande thermique.

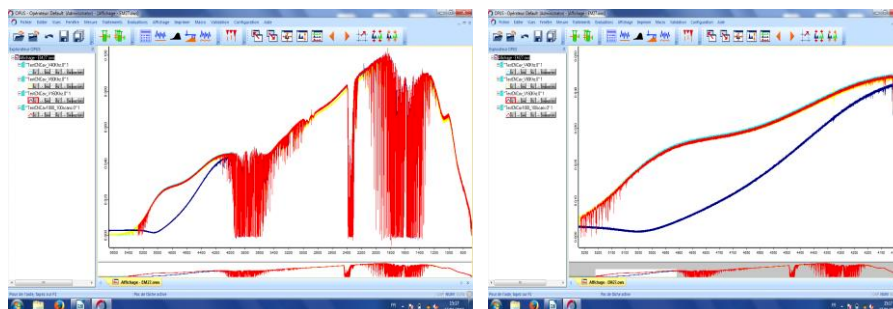
*Noter que les valeurs négatives dans un spectre sont dues à la saturation du détecteur dans un moment précis à cause du flux important de photons.*

Exemple d'exécution : Le détecteur MCT dans CHRIS mesure le signal en mode AC+DC (Figure 10).

## **III-Vitesse de balayage :**

Aspect pratique : Dans l'instrument CHRIS, un Cryo-cooler est utilisé pour refroidir le détecteur ce qui cause des vibrations du compresseur qui peuvent introduire du bruit dans les spectres ; pour cela une vitesse de balayage élevée (par ex : 120 KHz) est recommandée pour réduire ce bruit. Par contre, quand la vitesse de balayage augmente le domaine spectral du spectre diminue (voir figure 11).

Exemple d'exécution : Dans les figures suivantes, on a tracé des spectres à 40, 80, 120 et 160 KHz. On peut remarquer que la gamme spectrale a diminué spécialement dans la bande 3 (3892-5200  $\text{cm}^{-1}$ , fig. 11b) et cela se voit dans le zoom aussi (Fig. 11-b).



**Figure 11 :** *a) Spectres avec différentes vitesses de balayage : 40 KHz (cyan), 80 KHz (jaune), 160 KHz (bleu gitane) et 120 KHz (rouge) ; b) zoom in sur une partie des spectres où on peut observer une différence prononcée dans le cas d'une vitesse égale à 160 KHz où le domaine spectral diminue.*

## **IV- Gain échantillon et Préampli :**

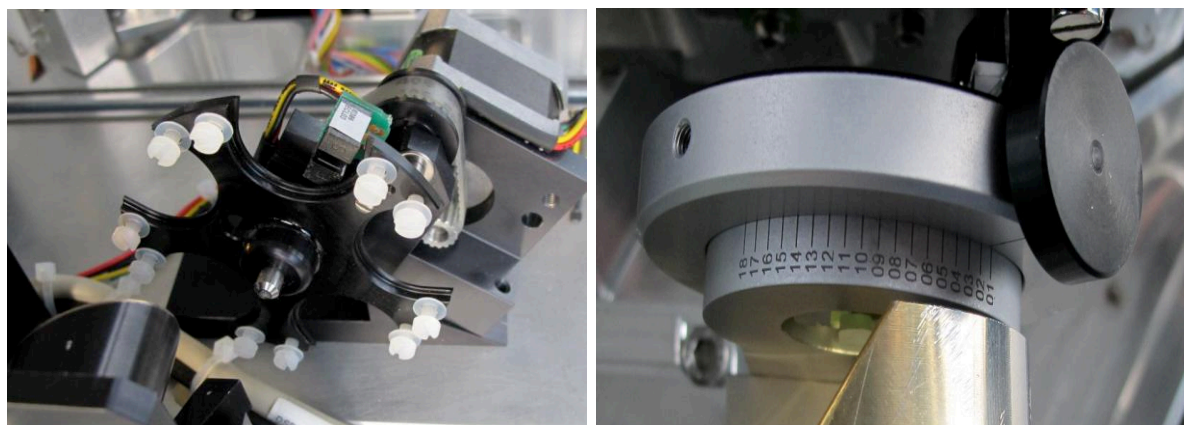
Aspect pratique : Ceci définit le gain sur l'électronique interne. Le gain ici contient plusieurs options : x1, x2, x4, x8, x16 et Automatic, et juste à côté se trouve le préampli qui a comme options A, B, C et Référence. Ces préamplis amplifient le signal analogique avant la numérisation. Les étapes d'amplification sont approximativement : 1 :3.1 :10 :67. Ces paramètres doivent être choisis de telle sorte que le compte ADC du détecteur est le plus convenable. Augmenter le gain augmente le signal du détecteur, mais augmente également le bruit de fond d'un montant similaire. Ainsi, on peut voir sur



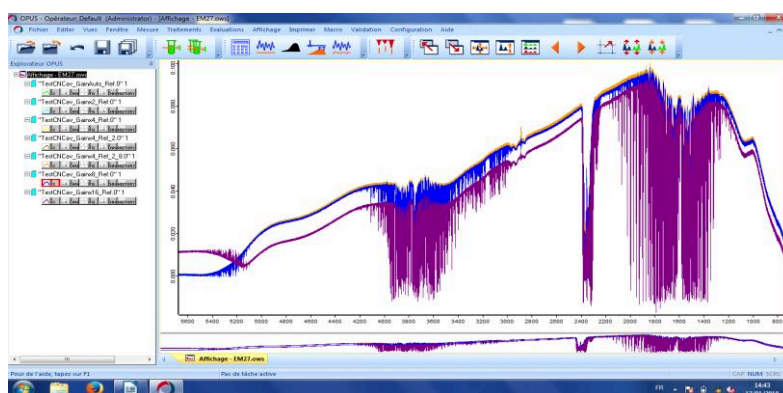
les figures ci-dessous (Fig. 13 et 14) que l'intensité n'est pas linéaire. Il est donc préférable de ne pas mettre le gain au-dessus de 1 ou automatique. Si on veut augmenter le signal d'une autre manière, on peut utiliser un filtre sur la roue qui peut être équipée de 5 filtres optiques d'un diamètre de 25 mm (figure 12 a) ou on peut augmenter le diamètre du diaphragme (figure 12 b).

**Rappelons que si on a besoin de plus de signal sur bruit, on peut effectuer des mesures avec un nombre de scans plus grand.**

Exemple d'exécution : La figure 13 représente l'effet de différents gains, mais le préampli est fixé sur « Référence ». On peut voir clairement qu'il n'y a pas une différence d'intensité entre ces courbes sauf celle où le gain est x16 (violet) car le signal est très proche de la saturation.



**Figure 12 :** a) roue à filtres qui peut être équipée jusqu'à 5 filtres optiques d'un diamètre de 25 mm chacun ; b) diaphragme d'ouverture réglable.

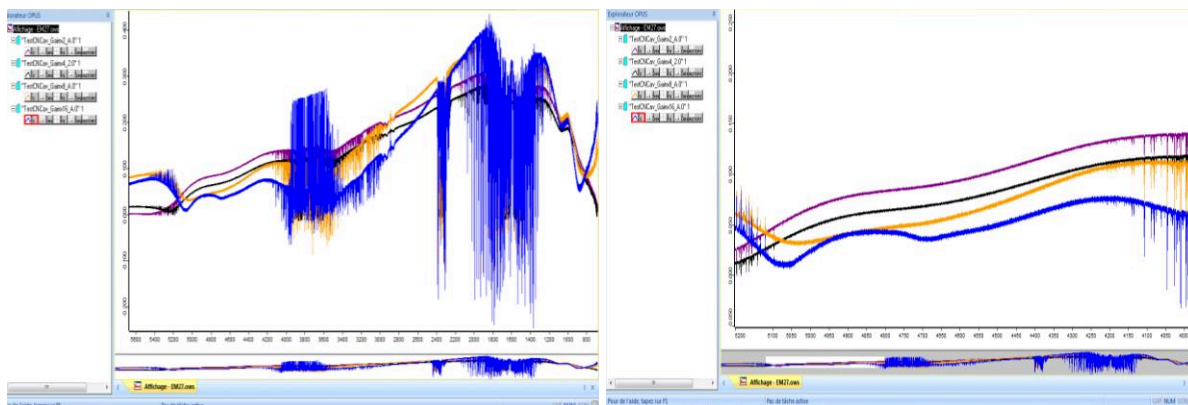


**Figure 13 :** Représentation des spectres avec des gains différents mais avec un préampli fixé sur Référence.

Dans la figure 14, on a changé le préampli de référence à « A ». Apparemment, le préampli « A » augmente le compte ADC d'une manière importante, et il induit une non-linéarité (figure 14b) dans le signal et aboutit à la saturation dans le cas du gain x16 (valeurs négatifs). Il faut bien noter que les préamplis B et C arrêtent le flux du signal où ils diminuent le compte ADC de 3000 environ jusqu'à 16. L'utilisation des gains et des préamplis peuvent être envisagées uniquement pour des mesures de faible signal comme les mesures lunaires.



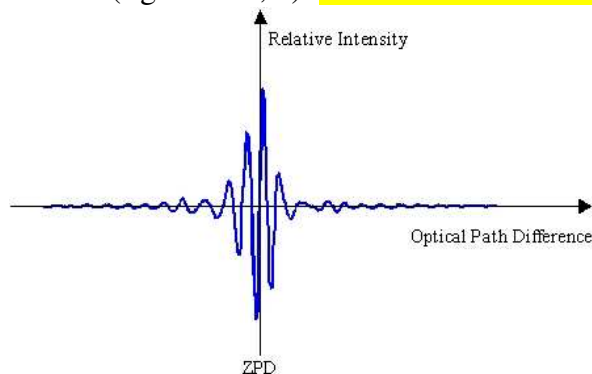
il ne faut pas dépasser 32000 comptes numériques (cf. 7). Cette valeur doit être vérifiée avant le lancement de chaque mesure.



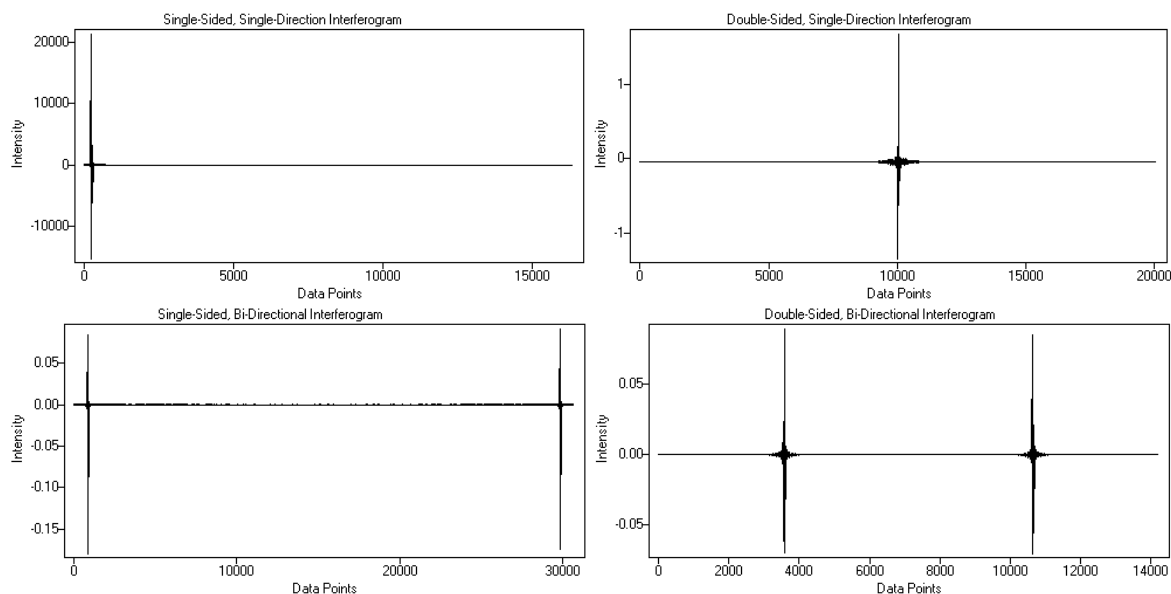
**Figure 14 :** a) Représentation des spectres avec différents gains et un préampli fixé sur A ; b) zoom in sur les spectres pour souligner l'effet du préampli sur la saturation du détecteur et notamment sur le spectre.

#### 4-Acquisition :

Aspect pratique : Un interférogramme a un point zéro de différence de trajectoire (ZPD, Zero Path Difference). Cela correspond à l'endroit où le miroir mobile de l'instrument produit une interférence maximale. Ce ZPD peut être placé au milieu (Figure 15) ou près du début de l'interférogramme. Le placement du ZPD est déterminé par le moment où l'instrument commence à collecter des données pendant la course du miroir. Lorsque le ZPD est au milieu, l'interférogramme est appelé « double sided » ou « symétrique » (figure 16 b). Lorsqu'il est placé au début de l'interférogramme, il est appelé « single sided » ou « asymétrique » (figure 16 a). La mesure des interférogrammes single sided est bonne car elle réduit à moitié le temps de collecte et réduit le nombre de points dans l'interférogramme, ce qui augmente la vitesse de calcul de la transformée de Fourier. Par contre, le mode double sided réduit la gamme spectrale accessible ( $1970 \text{ cm}^{-1}$ ) donc pour cela on peut s'affranchir de l'asymétrie des interférogrammes single sided par un processus connu sous le nom de correction de phase dans la partie TF (voir figure 19). De plus, l'interférogramme peut être « bidirectionnel », ce qui signifie que les données sont recueillies dans les deux sens du miroir (forward and backward). Ces deux interférogrammes (figure 18) sont typiquement combinés en un seul vecteur, avec l'interférogramme dans le sens avant (forward) dans la première moitié et l'interférogramme dans le sens arrière (backward) dans la seconde moitié (figure 16 c, d). **Intérêt et différence ?**

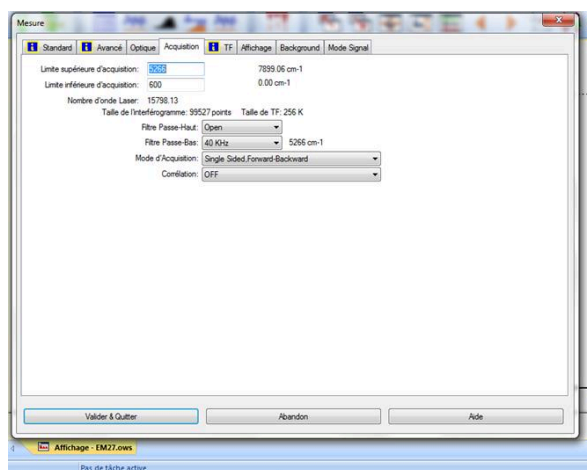


**Figure 15 :** le point zéro de différence de trajectoire ou ZPD en anglais : zero path difference.



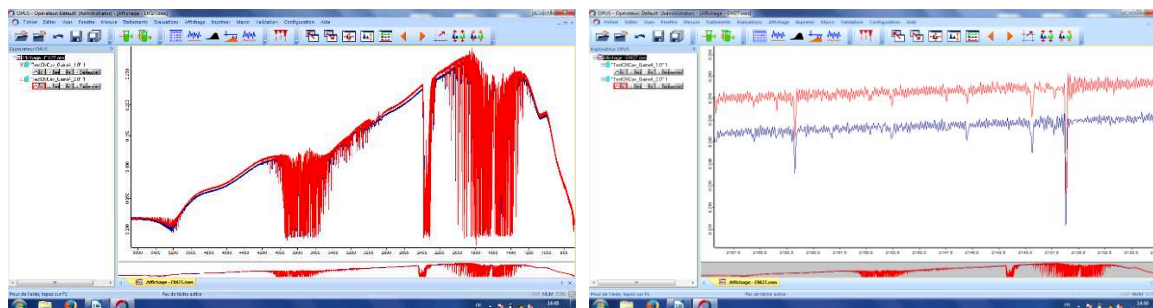
**Figure 16 :** Différents types d'interférogrammes : a) interférogramme single sided; b) interférogramme double sided; c) interférogramme single sided forward-backward; d) interférogramme double sided forward-backward.

**Exemple d'exécution :** Dans nos mesures on utilise le mode Single sided Forward-Backward comme l'indique la figure 17.



**Figure 17 :** L'onglet Acquisition où le mode single sided forward-backward est choisi.

Dans les 2 figures suivantes, on peut voir le spectre single sided forward backward (rouge) et le single sided (bleu). On remarque qu'il n'y a pas une différence entre ces 2 spectres.



**Figure 18 :** a) 2 spectres avec des modes d'acquisition différents : single sided forward-backward (rouge), single sided (bleu gitane) ; b) zoom sur une partie des spectres.

**Remarque :** le filtre passe-haut doit être désactivé (Open) sinon la composante DC est perdue. Le filtre passe-bas empêche les distorsions qui peuvent être induites par l'électronique au-dessus de la plage spectrale enregistrée.

## 5- TF (Transformée de Fourier) :

*Aspect pratique :* Pour une source non-monochromatique de densité spectrale  $F(\sigma)$ , dans la bande spectrale  $[\sigma_1, \sigma_2]$ , l'interférogramme prend la valeur :

$$I(\delta) = \int_{\sigma_1}^{\sigma_2} \mathcal{F}(\sigma) [1 + \cos 2\pi\sigma\delta] d\sigma$$

La partie *modulée* (qui dépend de la différence de marche  $\delta$ ) de l'interférogramme, correspond à la partie réelle de la TF (qui transforme le domaine de temps en domaine de fréquence, Figure 19) :

$$I'(\delta) = \text{Re} \left\{ \int_{\sigma_1}^{\sigma_2} \mathcal{F}(\sigma) \exp(i2\pi\sigma\delta) d\sigma \right\} \simeq \text{Re} \{ \text{TF}(\mathcal{F}(\sigma)) \}$$

Il s'ensuit que la TF inverse de l'interférogramme permet de remonter au spectre :

$$\mathcal{F}(\sigma) \simeq \text{TF}^{-1}\{I(\delta)\}$$

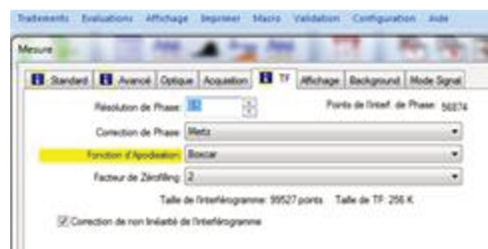
La TF inverse est réalisée par calcul numérique.



**Figure 19 :** l'effet d'une transformée de Fourier.

On peut remarquer qu'il y a des lobes secondaires qui se présentent dans la fonction Sinc et par conséquent dans les bandes d'absorbances du spectre mesuré. Ces lobes sont supprimés en multipliant l'interférogramme par une fonction d'apodisation. Un effet secondaire de la fonction d'apodisation utilisée est que la résolution spectrale est réduite. Lorsque les largeurs des raies spectrales sont plus larges que la résolution, l'apodisation sert de fonction de lissage mais dégrade la qualité spectrale en raison de la perte de résolution. Une liste de quelques fonctions d'apodisations est présentée dans le Tableau 1. Une fonction spécifique doit être utilisée pour une application donnée dépendant de l'expérience en cours.

*Exemple d'exécution :* Puisqu'on privilégie la résolution, on n'utilise pas de fonction d'apodisation, on choisit donc la fonction Boxcar (Figure 19 et 20). Il faut noter qu'on peut choisir différentes options du drop down list.



**Figure 20 :** L'onglet TF (Transformée de Fourier) où la fonction Boxcar est choisie comme fonction d'apodisation par défaut.



## **6- Affichage**

Normalement, on ne change rien ici. L'affichage initial montrera des nombres d'onde de 680 à 5300  $\text{cm}^{-1}$ . Cette fenêtre suit généralement ce qui est défini pour la plage de sauvegarde de la collecte de données (680 à 5300  $\text{cm}^{-1}$ ). La fenêtre d'affichage du spectre peut toutefois être ajustée à la plage de fréquences enregistrée en cliquant sur « Echelle automatique » (Auto-scale, voir Figure 2).

## **7-Mode Signal :**

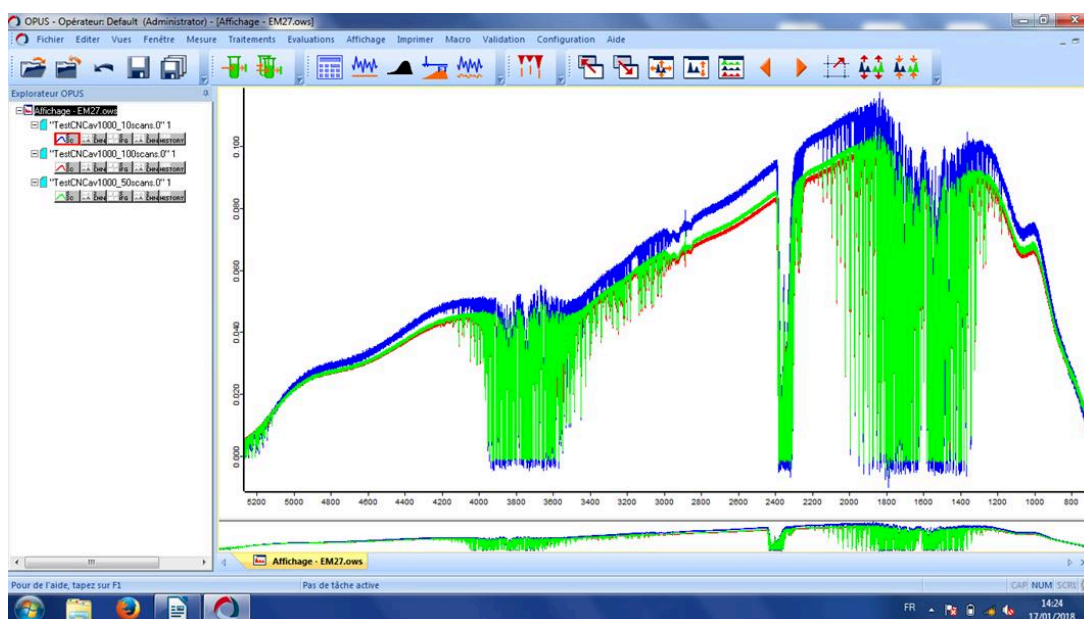
Il faut vérifier cet onglet avant chaque lancement de mesure !! Cela nous permet de connaître la quantité de rayonnement reçue par le détecteur. Trois types d'affichages sont disponibles : l'interférogramme, le spectre et le nombre d'ADC. Dans la figure 21, le nombre ADC est affiché qui varie en fonction de l'ouverture du diaphragme. Le nombre maximum de comptes de rayonnement IR que le détecteur peut gérer avant de produire des "distorsions" dans le spectre collecté est de 36 000. Au-dessus, le détecteur commence à saturer. Un compte numérique (ADC) trop bas et on ne sera pas en mesure d'enregistrer un spectre. Les mesures solaires ont typiquement un compte de 15000 environ.




***Figure 21 :*** L'onglet Mode Signal avec l'option ADC Count où on peut voir les contes numériques du détecteur.

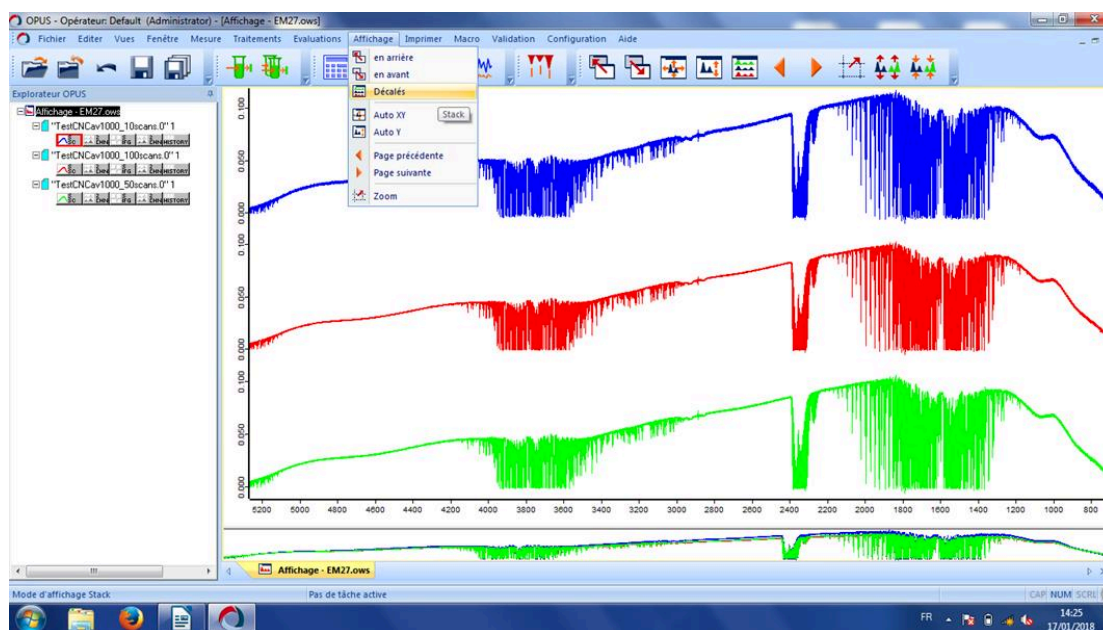
## Notes :

Si on veut afficher plusieurs spectres : Le mode par défaut lorsqu'on charge plusieurs spectres est superposé comme le montre la figure 22.



**Figure 22 :** Affichage de plusieurs spectres en mode superposé.

En cliquant sur la fonction du menu **Affichage** Décalés (Stack) ou l'icône , cela génère un écran où les échelles de chaque spectre sont clairement identifiées (Figure 23). En cliquant à nouveau sur l'icône Décalés, on retourne en mode superposition. En mode superposition, l'affichage est mis à l'échelle du plus grand pic de l'un des spectres et il n'y a pas d'option d'affichage pour étendre verticalement un (ou plusieurs) des autres spectres s'ils sont moins intenses pour mieux voir ces pics.



**Figure 23 :** Affichage de plusieurs spectres en mode Décalés (Stack).

Annexe 3 : Article AMT.



# Instrumental characteristics and potential greenhouse gas measurement capabilities of the Compact High-Spectral-Resolution Infrared Spectrometer: CHRIS

Marie-Thérèse El Kattar, Frédérique Auriol, and Hervé Herbin

Univ. Lille, CNRS, UMR 8518 – LOA – Laboratoire d'Optique Atmosphérique, 59000 Lille, France

**Correspondence:** Hervé Herbin (herve.herbin@univ-lille.fr)

Received: 11 October 2019 – Discussion started: 5 November 2019

Revised: 5 April 2020 – Accepted: 27 May 2020 – Published: 13 July 2020

**Abstract.** Ground-based high-spectral-resolution infrared measurements are an efficient way to obtain accurate tropospheric abundances of different gaseous species, in particular greenhouse gases (GHGs) such as CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub>. Many ground-based spectrometers are used in the NDACC and TCCON networks to validate the Level 2 satellite data, but their large dimensions and heavy mass make them inadequate for field campaigns. To overcome these problems, the use of portable spectrometers was recently investigated. In this context, this paper deals with the CHRIS (Compact High-Spectral-Resolution Infrared Spectrometer) prototype with unique characteristics such as its high spectral resolution (0.135 cm<sup>-1</sup> nonapodized) and its wide spectral range (680 to 5200 cm<sup>-1</sup>). Its main objective is the characterization of gases and aerosols in the thermal and shortwave infrared regions. That is why it requires high radiometric precision and accuracy, which are achieved by performing spectral and radiometric calibrations that are described in this paper. Furthermore, CHRIS's capabilities to retrieve vertical CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> profiles are presented through a complete information content analysis, a channel selection and an error budget estimation in the attempt to join ongoing campaigns such as MAGIC (Monitoring of Atmospheric composition and Greenhouse gases through multi-Instruments Campaigns) to monitor GHGs and validate the actual and future space missions such as IASI-NG and Microcarb.

continuous monitoring of the atmosphere (Persky, 1995). Greenhouse gases and trace gases as well as clouds and aerosols are detected and retrieved, thus improving our understanding of the chemistry, physics and dynamics of the atmosphere. Global-scale observations are achieved using satellites, and one major technique is infrared high-spectral-resolution spectroscopy (IRHSR). This technique offers radiometrically precise observations at high spectral resolution (Revercomb et al., 1988) where quality measurements of absorption spectra are obtained. TANSO-FTS (Suto et al., 2006), IASI (Clerbaux et al., 2007) and AIRS (Aumann et al., 2003) are examples of satellite sounders covering the thermal infrared (TIR) region. The observations acquired from such satellites have many advantages: day and night data acquisition, possibility to measure concentrations of different gases, the ability to cover land and sea surfaces (Herbin et al., 2013a), and the added characteristic of being highly sensitive to various types of aerosol (Clarisse et al., 2010). These spectrometers also have some disadvantages: local observations are challenging to achieve due to the pixel size that limits the spatial resolution, and the sensitivity in the low atmospheric layers, where many short-lived gaseous species are emitted but rarely detected, is weak.

To fill these gaps, ground-based instruments are used as a complementary technique, and one famous high-precision Fourier-transform spectrometer is the IFS125HR from Bruker<sup>TM</sup>, which is briefly discussed in Sect. 3.5 (further details can be found in Wunch et al., 2011). More than 30 instruments are currently deployed all over the world in two major international networks: TCCON (<https://tcconda.org/>, last access: 22 June 2020) and NDACC (<https://www.ndsc.ncep.noaa.gov/>, last access: 22 June 2020). This partic-

## 1 Introduction

Remote-sensing techniques have gained a lot of popularity in the past few decades due to the increasing need of

ular instrument has a very large size ( $1\text{ m} \times 1\text{ m} \times 3\text{ m}$ ) and a mass well beyond 100 kg, therefore achieving a long optical path difference and leading to a very high spectral resolution ( $0.02$  and  $5 \times 10^{-3}\text{ cm}^{-1}$  for TCCON and NDACC, respectively). Despite its outstanding capabilities, this spectrometer is not suitable for field campaigns, so it is mainly used to validate Level 2 satellite data, thus limiting the scientifically important ground-based extension of atmospheric measurement around the world.

One alternative is the new IFS125M from Bruker (Pathak et al., 2019), which is the mobile version of the well-established IFS125HR spectrometer. This spectrometer provides the highest resolution available for a commercial mobile Fourier-transform infrared (FTIR) spectrometer, but it still has a length of about 2 m and requires on-site realignment by qualified personnel. Another alternative is the use of several compact medium- to low-resolution instruments that are currently under investigation, such as a grating spectrometer ( $0.16\text{ cm}^{-1}$ ), a fiber Fabry–Pérot interferometer (both setups presented in Kobayashi et al., 2010) and the IFS66 from Bruker ( $0.11\text{ cm}^{-1}$ ) described in Petri et al. (2012). The EM27/SUN is the first instrument to offer a compact, optically stable, transportable spectrometer (Gisi et al., 2012) with a high signal-to-noise ratio (SNR) and that operates in the SWIR (short-wavelength infrared) region. A new prototype called CHRIS (Compact High-Spectral-Resolution Infrared Spectrometer) was conceived to satisfy some very specific characteristics: high spectral resolution ( $0.135\text{ cm}^{-1}$ , better than TANSO-FTS and the future IASI-NG) and a large spectral band ( $680\text{--}5200\text{ cm}^{-1}$ ) to cover the current and future infrared satellite spectral range and optimize the quantity of the measured species. Furthermore, this prototype is transportable and can be operated for several hours by battery ( $> 12\text{ h}$ ), so it is suitable for field campaigns. The full presentation of the characteristics and the calibration of this instrumental prototype is presented in Sect. 2.

Since carbon dioxide ( $\text{CO}_2$ ) and methane ( $\text{CH}_4$ ) are the two main greenhouse gases emitted by human activities, multiple campaigns have been launched, such as the MAGIC (Monitoring of Atmospheric composition and Greenhouse gases through multi-Instruments Campaigns) initiative, to better understand the vertical exchange of these greenhouse gases (GHGs) along the atmospheric column and to contribute to the preparation and validation of future space missions dedicated to GHG monitoring. CHRIS is part of this ongoing mission, and this work presents for the first time the capabilities of such a setup in achieving GHG measurements. Analysis of the forward model, state vector and errors is explained in Sect. 3.

In this context, we present in Sect. 3.5 a complete information content study for the retrieval of  $\text{CO}_2$  and  $\text{CH}_4$  of two other ground-based instruments that also participated in the MAGIC campaign: a comparison study with the IFS125HR instrument and, since CHRIS and the EM27/SUN have a common band in the SWIR region, a study to in-

vestigate the spectral synergy in order to quantify the complementary aspects of the TIR–SWIR–NIR (NIR stands for near-infrared) coupling for these two instruments. Moreover, Sect. 4 describes the channel selection made in this study. Finally, we summarize our results and perspectives for future applications, in particular the retrieval of GHGs in the MAGIC framework.

## 2 The CHRIS spectrometer

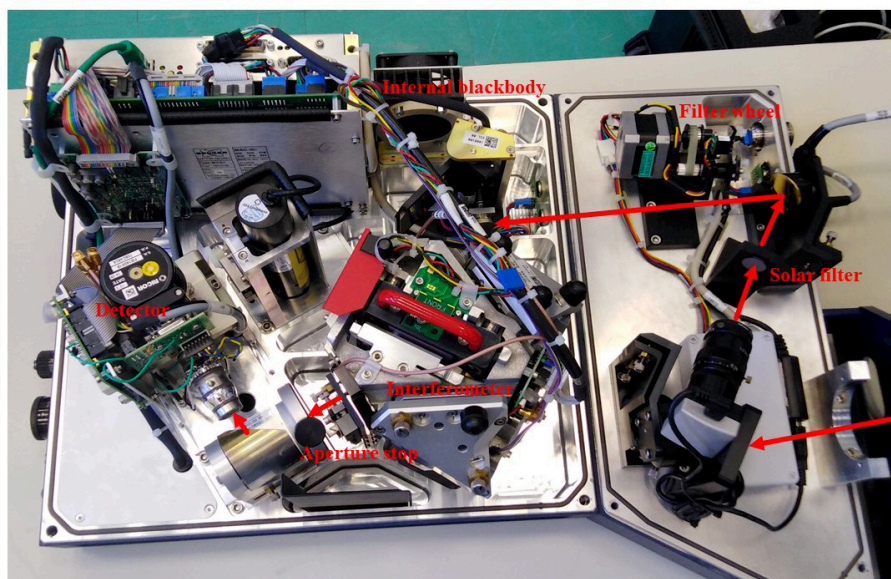
CHRIS is an instrumental prototype built by Bruker<sup>TM</sup> and used in different domains of atmospheric optics. Its recorded spectra contain signatures of various atmospheric constituents such as GHGs ( $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ) and trace gases. The capacity to measure these species from a technical point of view as well as the characterization of this prototype in terms of spectral and radiometric calibrations is presented in the following subsections.

### 2.1 General characteristics

CHRIS is a portable instrumental prototype with a mass of approximately 40 kg and dimensions of  $70\text{ cm} \times 40\text{ cm} \times 40\text{ cm}$ , making it easy to operate in the field. The tracker, which is similar to the one installed on the EM27/SUN and described in detail in Gisi et al. (2012), leads the solar radiation through multiple reflections on the mirrors to a wedged fused-silica window.

An internal look at CHRIS is shown in Fig. 1, where the optical path of the solar beam is represented with red arrows: after multiple reflections on the tracker's mirrors, the solar radiation enters the spectrometer through the opening and is then reflected by the first mirror, where the charge-coupled device (CCD) camera verifies the collimation of the beam on the second mirror, which has a solar filter. At this level, CHRIS has a filter wheel that can be equipped with up to five optical filters with a diameter of 25 mm. Filters are widely used when making solar measurements to reduce noise and nonlinearity effects. After reflection on the second mirror, the beam enters the RockSolid<sup>TM</sup> Michelson interferometer, which has two cube-corner mirrors to ensure the optical alignment stability of the beam and a KBr beam splitter. After that, the radiation is blocked by an adjustable aperture stop, which can be set to between 1 and 18 mm. This limits the parallel beam parameter and can be used to reduce the intensity of the incoming sunlight in case of saturation of the detector. The remaining radiation falls onto an MCT (mercury cadmium telluride) detector; then it is digitized to obtain the solar absorption spectra in arbitrary units. This detector uses a closed-cycle Stirling cooling system (a.k.a. cryocooler), so no liquid nitrogen has to be used. As the vibrations of the compressor may introduce noise in the spectra (see Sect. 2.6), a high scanning velocity (120 KHz) is needed.





**Figure 1.** An internal look at CHRIS. The red arrows illustrate the optical path of the solar beam inside the spectrometer.

A standard nonstabilized He–Ne laser controls the sampling of the interferogram. The condensation of the warm, humid air on the beam splitter due to its transportation between cold and warm environments is the main reason a dessicant cartridge is used, so the spectrometer can operate under various environmental conditions. CHRIS also has an internal blackbody, which can be heated up to 353 K to make sure that there is no drift in the TIR region, and it also serves as an optical source to regularly verify the response of the detector.

## 2.2 Measurements and analysis

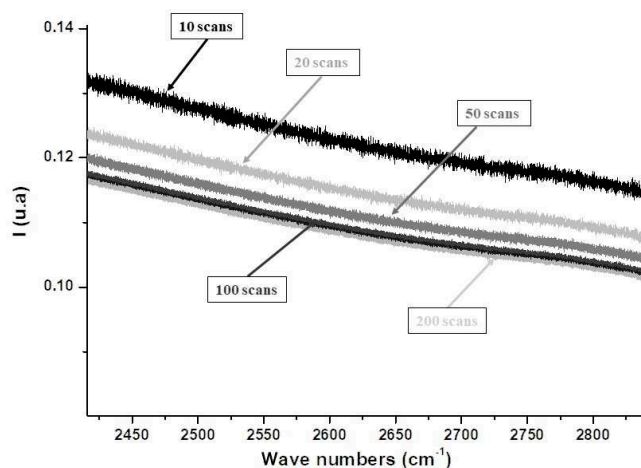
CHRIS's method of data acquisition is explained as follows: the interferograms are sampled and digitized by an analog-to-digital converter (ADC) and then numerically resampled at constant intervals of optical path difference (OPD) by a He–Ne reference laser signal controlled by the aperture stop diameter. In order to determine a suitable compromise between the latter and to avoid the saturation of the signal, measurements must be done in a clear (no clouds or aerosols) and nonpolluted (no gases with high chemical reactivity) atmosphere. For this purpose, a field campaign was carried out at El Observatorio Atmosférico de Izaña (28.30° N, 16.48° W) on the island of Tenerife. This particular observatory site is high in altitude (2374 m), away from pollution sites and has an IFS125HR listed in both the NDACC and TCCON networks. Saturation of CHRIS's detector is reached at a value of 32 000 ADC. The MCT detector is known for its high photometric accuracy, but it also exhibits a nonlinear response with regard to the energy flux in cases of high incident energy. This led us to choose an aperture stop of 5 mm, which

is the best compromise between saturation and incoming energy flux.

Each spectrum corresponds to the solar transmission light in the total atmospheric column in a field of view (FOV) of 0.006 mrad. The spectral range spans the region from 680 to 5200  $\text{cm}^{-1}$  (1.9 to 14.7  $\mu\text{m}$ ), which corresponds to the middle-infrared region (MIR). The water vapor causes the saturation we see between the bands, thereby explaining the zero signal. Therefore, we divided the spectrum into four distinctive spectral bands presented in Table 3: TB (thermal band; 680–1250  $\text{cm}^{-1}$ ), B1 (1800–2300  $\text{cm}^{-1}$ ), B2 (2400–3600  $\text{cm}^{-1}$ ) and B3 (3900–5200  $\text{cm}^{-1}$ ). This annotation is used for the rest of the paper.

## 2.3 Optical features

A technical study was conducted on this prototype in order to evaluate its optical and technical properties with a constant aperture stop diameter of 5 mm. One of the most important findings is the effect of the number of scans on the measured spectra. In practice, a scan is the acquisition of a single interferogram when the mobile mirror of the Michelson interferometer begins data collection at the zero path difference (ZPD) and finishes at the maximum length, therefore achieving the highest resolution required. In Fig. 2, the spectrum with 10 scans has a higher amplitude than those with 50 and 100 scans. On the other hand, the spectra with 50 and 100 scans are clearly less noisy than that with 10 scans. This is due to the fact that the increase in the number of scans causes an increase in the SNR, which leads to a decrease in noise. However, there is a limit to the number of scans beyond which no improvement of the SNR is obtained. The SNR is proportional to the square root of the acquisition time



**Figure 2.** Improvement of the SNR with different scan numbers and a fixed scan speed of 120 KHz.

(number of scans), also known as Fellgett's advantage, and since the detector is dominated by shot noise, the improvement of the SNR with the number of scans is blocked at a certain value. This is why the spectra of 100 and 200 scans do not show a significant difference. The SNR is an estimation of the root-mean-squared noise of the covered spectral domain and can be calculated in OPUS (the running program for CHRIS) using the function SNR with the "fit parabola" option; it is estimated to be approximately 780. An optimized criterion is chosen to select the appropriate number of scans: when the wanted species has a fast-changing concentration, such as volcanic plumes, a relatively small number of scans is needed to be able to follow the change in the atmospheric composition temporally. In contrast, when measurements of relatively stable atmospheric composition are made, for example GHGs ( $\text{CO}_2$  and  $\text{CH}_4$ ), the number of scans can be increased to 100. For instance, the time needed for one scan with a scanning velocity of 120 KHz is 0.83 s, so 100 scans take approximately 83 s, which is low in comparison to the variability of  $\text{CO}_2$  and  $\text{CH}_4$  in the atmosphere.

Another important feature is the effect of the gain amplitude (and preamplifiers, which amplify the signal before digitization) on the spectra. Those parameters should be chosen in a way that the numeric count falls in a region where no detector saturation occurs. If the gain is increased by a certain amount, the background noise is increased by the same amount. The use of such an option in the measurement procedure might be considered in cases where the signal is very weak, like lunar measurements. Note that there are other ways to increase the intensity of the signal, like using signal amplifying filters (see Sect. 2.1) or increasing the aperture stop diameter.

## 2.4 Radiometric and spectral calibration

In the following section, the spectral and radiometric calibrations are discussed in order to convert spectra from numeric counts (expressed in arbitrary units) to radiance ( $\text{W m}^{-2} \text{sr}^{-1} \text{cm}$ ).

### 2.4.1 Radiometric calibration

Despite the fact that CHRIS has an internal blackbody, radiometric calibration cannot be overlooked because of its narrow spectral coverage (only the TIR region), and since the radiometric noise and the time- and wavelength-dependent calibration errors are magnified in the inversion process, high radiometric precision is required to derive atmospheric parameters from a spectrum. We calibrate our spectra using the two-point calibration method explained in Revercomb et al. (1988). This method consists of using the observations of hot and cold blackbody reference sources, which will be used as the basis for the two-point calibration at each wave number. A cavity blackbody was acquired by the LOA (Laboratoire d'Optique Atmosphérique) to perform regular radiometric calibrations. The latter is an HGH/RCN1250N2, certified by the LNE (Laboratoire National de métrologie et d'Essais) as having an emissivity greater than 0.99 in the spectral domain spanned by CHRIS, a stability of 0.1 at 1173 K and an opening diameter of up to 50 mm (corresponding to that of CHRIS) and as covering temperatures from 323 to 1523 K. This cavity blackbody is mounted on an optical bench and used before and after each campaign to perform absolute radiometric calibrations through open-path measurements and to make sure that this calibration is stable across the whole spectral range. These two blackbody temperatures are viewed to determine the slope  $m$  and offset  $b$  (Eqs. 1 and 2), which define the linear instrument response at each wave number. The slope and the offset can be written following Revercomb et al. (1988):

$$m = \frac{S_c - S_h}{B_v(T_c) - B_v(T_h)} \quad (1)$$

$$b = \frac{S_c \cdot B_v(T_h) - S_h \cdot B_v(T_c)}{B_v(T_h) - B_v(T_c)}, \quad (2)$$

where  $S$  is the blackbody spectrum recorded, and  $B_v$  corresponds to the calculated Planck blackbody radiance. The subscripts h and c correspond to the hot (1473 K) and cold (1273 K) blackbody temperatures, respectively. Finally, the calibrated spectrum expressed in watts per square meter steradian centimeter is obtained by applying the following formula:

$$L = \frac{S - b}{m}, \quad (3)$$

where  $S$  is the spectrum recorded by CHRIS.

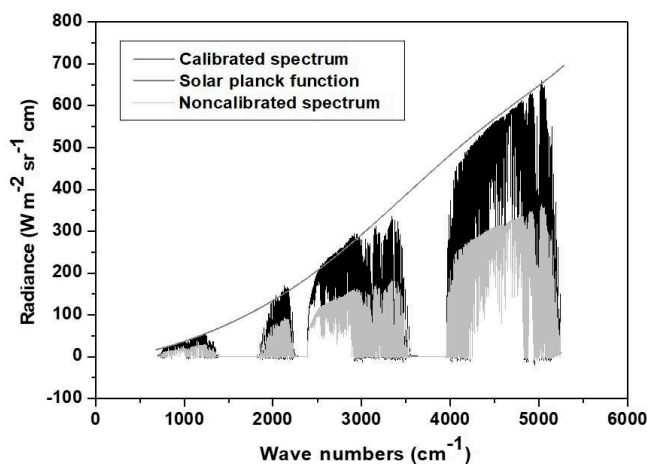
## 2.4.2 Instrumental line shape and spectral calibration

One open-path measurement using the calibrated HGH blackbody as source was performed, similar to the one previously described in Wiacek et al. (2007), to record a spectrum without applying any apodization. Our colleagues in the PC2A laboratory provided us with a 10 cm long cell with a free diameter of 5 cm, where the pressure inside is monitored by a capacitive gauge. With the help of the line-by-line radiative transfer algorithm ARAHMIS (atmospheric radiation algorithm for high-spectral measurements from infrared spectrometer) developed at the LOA laboratory, a maximum optical path difference (MOPD) of 4.42 cm was determined, corresponding to a spectral resolution of  $0.135 \text{ cm}^{-1}$  using a sinc function with a spectral sampling every  $0.06025 \text{ cm}^{-1}$  to satisfy the Nyquist criterion. In FTIR spectroscopy, a poor instrumental line shape (ILS) determination generates a significant error in the retrieval process, so we are currently modifying the optical bench in order to perform an ILS determination at the same time as the radiometric and spectral calibrations before each field campaign.

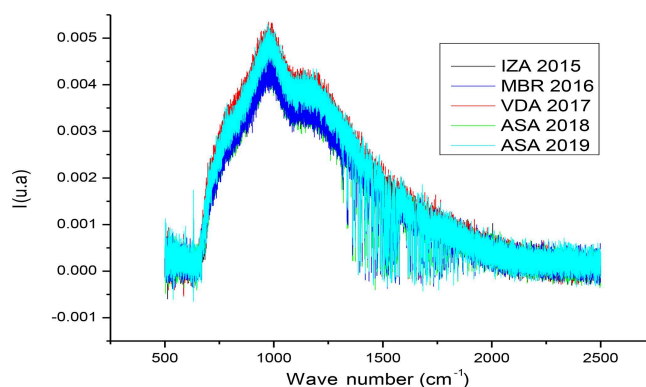
The sampling of the interferogram is controlled by a standard, non-frequency-stabilized He-Ne laser with a wavelength of 632.8 nm, which serves as a reference while converting from the distance scale to the wave number scale. The instrument is subjected to changes in pressure and temperature since it operates in different locations and therefore under different meteorological conditions. This will cause a change in the refractive index and as a consequence a change in the reference wavelength of the laser, which will lead to an instability in the conversion process and therefore the need for a spectral calibration to reduce this error. The ILS line defined above is used to resimulate isolated absorption lines from the high-resolution transmission molecular absorption (HITRAN) database (Gordon et al., 2017) considering nonapodized spectra, which allows the exploitation of the full spectral resolution. In short, we choose an intense unsaturated  $\text{H}_2\text{O}$  absorption line that is always present in the spectra; then we compare the central wave number ( $\nu$ ) with the calculated one ( $\nu^*$ ) following the equation

$$\nu^* = \nu(1 + \alpha), \quad (4)$$

where  $\alpha$  is the calibration factor. Equation (4) is limited by a precision of  $0.038 \text{ cm}^{-1}$ , corresponding to roughly half of the spectral sampling, estimated from the standard deviation between the theoretical HITRAN spectroscopic lines and the measured ones by CHRIS. Figure 3 shows the comparison between a calibrated and a noncalibrated spectrum along with the solar Planck function explained in Sect. 3.1. The spectral and radiometric calibration procedure is automated using a MATLAB code to convert the spectra instantly from numeric counts to absolute radiance.



**Figure 3.** The calibration process transforms the noncalibrated spectrum (light gray) into a calibrated one (black) that fits with the solar Planck function (solid gray line).



**Figure 4.** The radiometric stability of the instrument is achieved by following the variations of the internal blackbody during multiple field campaigns. IZA: Izana; MBR: M'Bour; VDA: Villeneuve d'Ascq; ASA: Aire-sur-l'Adour.

## 2.5 Radiometric stability

During campaigns and after long transportation, constant measurement of the internal blackbody, which can be heated up to 353 K, is carried out in the thermal infrared region (most affected by drifts). Figure 4 shows the variations of the internal blackbody during multiple field campaigns: a little fluctuation in function of the measurement conditions can be seen, but depending on the locations and even years, no systematic drift can be detected, so we can safely say that the instrument is quite stable between each laboratory calibration.

## 2.6 Spectral artifacts

There are commonly several well-known spectral artifacts: aliasing, the picket fence effect (also known as the resolution



bias error) and phase correction. These are well controlled in CHRIS.

Aliasing is the result of the missampling of the interferogram at the  $x$ -axis locations, which leads to errors in the retrieved column abundances due to its overlap with the original spectrum. The He–Ne laser, having a wavelength  $\lambda$  of 632.8 nm, generates the sampling positions of the interferogram at each zero crossing. No overlap will occur if the signal of the spectrum is zero above a maximum wave number  $\nu_{\max}$  and if  $\nu_{\max}$  is smaller than the folding wave number  $\nu_f = 1/(2 \cdot \Delta x)$ . Since  $\Delta \nu$  is related to the sample spacing  $\Delta x$ , the minimum possible  $\Delta x$  is  $1/31\,600\text{ cm}^{-1}$  since each zero crossing occurs every  $\lambda/2$ . This corresponds to a folding wave number of  $15\,800\text{ cm}^{-1}$ , i.e., the maximum bandwidth that can be measured without overlap has a width of  $15\,800\text{ cm}^{-1}$ . This source error is of special relevance to the spectra acquired in the near-infrared region. However, for the MIR, the investigated bandwidth is much smaller than  $15\,800\text{ cm}^{-1}$ , where  $\nu_{\max}$  is less than  $5200\text{ cm}^{-1}$ , so CHRIS's spectra are not affected by this problem (Dohe et al., 2013).

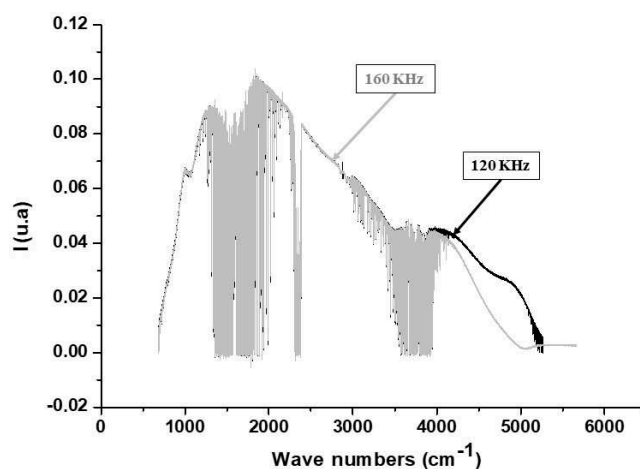
The picket fence effect, or the resolution bias error, becomes evident when the interferogram contains frequencies that do not coincide with the frequency sample points, but this is overcome in our spectra by the classical method of the zero filling factor (ZFF), where zeros are added to the end of the interferogram before the Fourier transform is performed, thereby doubling the size of the original interferogram.

Phase correction is necessary while converting the interferogram into a spectrum, which is relevant to single-sided measurements, similar to those acquired by CHRIS. Mertz phase correction is the method used for CHRIS to overcome this problem; it relies on extracting the real part of the spectrum from the complex output by multiplication of the latter by the inverse of the phase exponential, therefore eliminating the complex part of the spectrum generated.

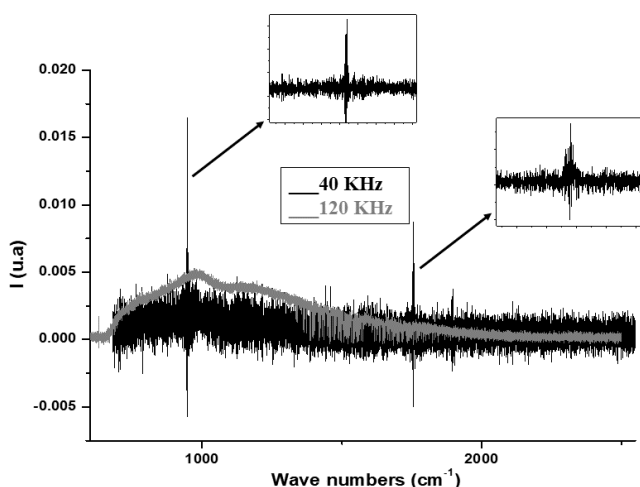
Besides these classical FTIR artefacts, we noticed during our tests that when using a scan speed of 160 KHz, we drastically increase the nonlinearity effect of the detector (see Fig. 5). However, we identified a ghost signal for low scanning velocities (for example 40 KHz as shown in Fig. 6). This ghost is specific to CHRIS because it is caused by the noise introduced from the vibrations of the compressor used in the closed-cycle Stirling cooler as mentioned in Sect. 2.1. The choice of a scanning velocity of 120 KHz is a compromise between two important features: the elimination of the ghost signal, which appears at scanner velocities below 80 KHz, and the increase in the detector nonlinearity at a velocity of 160 KHz.

### 3 Information content analysis

Since CHRIS is an instrumental prototype, its ability to retrieve GHGs is unknown; therefore it is important to perform an information content study to quantify its potential capa-



**Figure 5.** Spectra of the external blackbody with two different scanning velocities: 120 KHz (black) and 160 KHz (light gray).



**Figure 6.** Spectra of the internal blackbody of CHRIS with scanner velocities of 40 KHz (black) and 120 KHz (light gray).

bility to retrieve GHGs as a first attempt. In this context, CHRIS is one of the instruments deployed in the MAGIC project alongside satellites, lidar, balloons and ground-based measurements. MAGIC is a French initiative supported by the CNES (Centre National d'Etudes Spatiales), which aims to implement and organize regular annual campaigns in order to better understand the vertical exchange of GHGs ( $\text{CO}_2$  and  $\text{CH}_4$ ) along the atmospheric column and establish a long-term validation plan for the satellite Level 2 products.

#### 3.1 The forward model

Accurate calculations of the radiances observed by CHRIS are achieved with the line-by-line radiative transfer algorithm ARAHMIS over the thermal and shortwave infrared spectral range (1.9–14.7  $\mu\text{m}$ ). Gaseous absorption is calculated based on the updated HITRAN 2016 database (Gordon

et al., 2017). The absorption lines are computed assuming a sinc line shape, and no apodization is applied, which allows the exploitation of the full spectral resolution. In this study, the term “all bands” refers to the use of the CHRIS bands TB, B1, B2 and B3 simultaneously (see Sect. 2.2). Absorption continua for H<sub>2</sub>O and CO<sub>2</sub> are also included from the Mlawer–Tobin–Clough–Kneizys–Davies (MT-CKD) model (Clough et al., 2005). The pseudotransmittance spectra corresponding to direct sunlight from the center of the solar disk reported by Toon (2015) is used as the incident solar spectrum interpolated on the spectral grid of CHRIS. The effective brightness temperature depends strongly on the wave number; thus the Planck function is calculated in each spectral domain of CHRIS determined from Trishchenko (2006), who combined the work of four recent solar reference spectra. Two of these reference spectra with 0.1 % relative difference are taken into consideration and then adjusted by a polynomial fit (solid line in Fig. 3). In the gaseous retrieval process, the spectrometer’s line of sight (LOS) has to be known for calculating the spectral absorption of the solar radiation while passing through the atmosphere. For this, the time and the duration of each measurement are saved, from which the required effective solar elevation (and the solar zenith angle, SZA) is calculated based on the routine explained in Michalsky (1988).

As mentioned in Sect. 3.3.2, Izaña offers clear nonpolluted measurements since it is high in altitude and away from major pollution sites, so calculations are performed based on the concentration of the desired atmospheric profile with the corresponding profile information: the temperature, pressure and relative humidity are derived from the radiosondes (<http://weather.uwyo.edu/upperair/sounding.html>); CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> profiles are derived from the TCCON database, whereas O<sub>3</sub>, N<sub>2</sub>O and CO concentrations are calculated from a typical midlatitude summer profile. Figure 7 shows the results of the forward model simulation superimposed with the four infrared bands measured by CHRIS. For each band, we present the influence of the solar spectrum, the GHGs (CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub>) and the major interfering molecular absorbers. We can see good agreement between the ARAHMIS simulations and the CHRIS measurements under clear sky conditions.

### 3.2 Information content theoretical basis

Once the forward model is calculated, we rely on the formalism of Rodgers (2000) that introduces the optimal estimation theory used for the retrieval, which is widely described elsewhere (e.g., Herbin et al., 2013a) and summarized hereafter.

In the case of an atmosphere divided into discrete layers, the forward radiative transfer equation gives an analytical relationship between the set of observations  $y$  (in this case the radiance) and the vector of true atmospheric parameters  $x$  (i.e., the variables to be retrieved: vertical concentration pro-

files of CO<sub>2</sub> and/or CH<sub>4</sub>):

$$y = F(x; b) + \epsilon, \quad (5)$$

where  $F$  is the forward radiative transfer function (here the ARAHMIS code),  $b$  represents the fixed parameters affecting the measurement (e.g., atmospheric temperature, interfering species, viewing angle), and  $\epsilon$  is the measurement error vector.

In the following information content study, two matrices fully characterize the information provided by CHRIS: the averaging kernel  $A$  and the total error covariance  $S_x$ .

The averaging kernel matrix  $A$  gives a measurement of the sensitivity of the retrieved state to the true state and is defined by

$$A = \partial \hat{x} / \partial x = GK, \quad (6)$$

where  $K$  is the Jacobian matrix (also known as the weighting function). The  $i$ th row contains the partial derivatives of the  $i$ th measurement with respect to each ( $j$ ) element of the state vector  $K_{ij} = (\partial F_i / \partial x_j)$ , and  $K^T$  is its transpose.

The gain matrix  $G$ , whose rows are the derivatives of the retrieved state with respect to the spectral points, is defined by

$$G = \partial \hat{x} / \partial y = (K^T S_\epsilon^{-1} K + S_a^{-1})^{-1} K^T S_\epsilon^{-1}, \quad (7)$$

where  $S_a$  is the a priori covariance matrix describing our knowledge of the state space prior to the measurement, and  $S_\epsilon$  represents the forward model and the measured signal error covariance matrix.

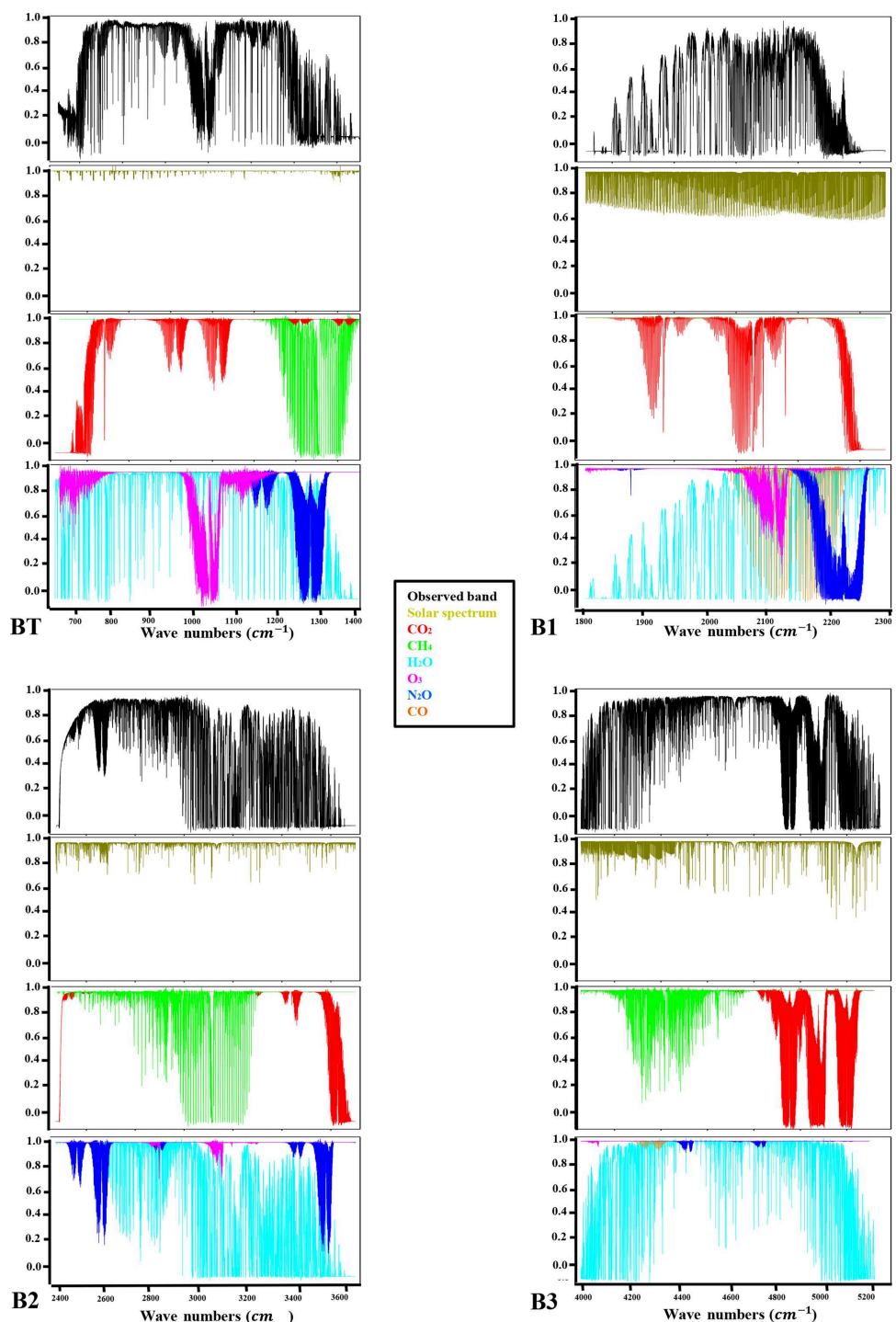
At a given level, the peak of the averaging kernel row gives the altitude of maximum sensitivity, whereas its full width at half maximum (FWHM) is an estimate of the vertical resolution. The total degrees of freedom for signal (DOFSs) is the trace of  $A$ , which indicates the number of independent pieces of information that one can extract from the observations with respect to the state vector. A perfect retrieval resulting from an ideal inverse method would lead to an averaging kernel matrix  $A$  equal to the identity matrix with a DOFS value equal to the size of the state vector. Therefore, each parameter we want to retrieve is attached to the partial degree of freedom represented by each diagonal element of  $A$ .

The second important matrix in the information content (IC) study is the error covariance matrix  $S_x$ , which describes our knowledge of the state space posterior to the measurement. Rodgers (2000) demonstrated that this matrix can be written as

$$S_x = S_{\text{smoothing}} + S_{\text{meas.}} + S_{\text{fwd.mod.}} \quad (8)$$

From Eq. (8), the smoothing error covariance matrix  $S_{\text{smoothing}}$  represents the vertical sensitivity of the measurements to the retrieved profile:

$$S_{\text{smoothing}} = (A - I) S_a (A - I)^T. \quad (9)$$



**Figure 7.** Measured and simulated CHRIS spectrum in transmittance for clear sky conditions at Izaña observatory. Each band is calculated from the line-by-line forward model ARAHMIS and the solar pseudotransmittance spectra reported by Toon (2015).

$S_{\text{meas.}}$  gives the contribution of the measurement error covariance matrix through  $S_m$ , which illustrates the measured signal error covariance matrix, to the posterior error covariance matrix  $S_x$ .  $S_m$  is computed from the spectral noise:

$$S_{\text{meas.}} = GS_mG^T. \quad (10)$$

At last,  $S_{\text{fwd.mod.}}$  gives the contribution of the posterior error covariance matrix through  $S_f$ , the forward model error covariance matrix, which illustrates the imperfect knowledge of the nonretrieved model parameters:

$$S_{\text{fwd.mod.}} = GK_bS_b(GK_b)^T = GS_fG^T, \quad (11)$$

with  $S_b$  representing the error covariance matrix of the non-retrieved parameters.

### 3.3 A priori information

The IC analysis uses simulated radiance spectra of CHRIS in the bands TB, B1, B2 and B3. The CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> vertical concentrations of the a priori state vector  $x_a$  are based on a profile that follows the criteria described in Sect. 3.1 and discretized by 40 vertical layers, extending from the ground to 40 km height with 1 km steps. In addition, the vertical water vapor profile, the temperature and the SZA are included in the nonretrieved parameters and are discussed in Sect. 3.3.3. The a priori values and their variabilities are summarized in Table 1 and are described in the following sections.

#### 3.3.1 A priori error covariance matrix

In situ data and climatology can give us an evaluation of the a priori error covariance matrix  $S_a$ . Since the use of diagonal a priori covariance matrices is common for retrievals from space measurements (e.g., De Wachter et al., 2017), and since this study is dedicated to information coming from measurement rather than climatology or in situ observations, we assume firstly that  $S_a$  is a diagonal matrix with the  $i$ th diagonal element ( $S_{a,ii}$ ) defined as

$$S_{a,ii} = \sigma_{a,i}^2 \quad \text{with} \quad \sigma_{a,i} = x_{a,i} \cdot \frac{p_{\text{error}}}{100}, \quad (12)$$

where  $\sigma_{a,i}$  stands for the standard deviation in the Gaussian statistics formalism. The subscript  $i$  represents the  $i$ th parameter of the state vector. The CO<sub>2</sub> profile a priori error is estimated from Schmidt and Khedim (1991). The CH<sub>4</sub> a priori error is fixed to  $p_{\text{error}} = 5\%$ , similar to the one used in Razavi et al. (2009) for the retrieval of the methane obtained from IASI and also to be consistent with the previous study concerning the TANSO-FTS instrument (Herbin et al., 2013a).

Nevertheless, the correlation of the vertical layers is more expressed by the off-diagonal matrix elements. This is the reason we also use an a priori covariance matrix similar to the one used in Eguchi et al. (2010), where the climatology derived from TCCON is used to construct this matrix. The study with these two covariance matrices is presented for CHRIS in the following sections.

#### 3.3.2 Measurement error covariance matrix

The measurement error covariance matrix is computed knowing the instrument performance and accuracy. The latter is related to the radiometric noise expressed by the SNR already discussed in Sect. 2.3. This error covariance matrix is assumed to be diagonal, and the  $i$ th diagonal element can be computed as follows:

$$S_{m,ii} = \sigma_{m,i}^2 \quad \text{with} \quad \sigma_{m,i} = \frac{y_i}{\text{SNR}}, \quad (13)$$

where  $\sigma_{m,i}$  is the standard deviation of the  $i$ th measurement ( $y_i$ ) of the measurement vector  $y$ , representing the noise-equivalent spectral radiance. The SNR for CHRIS is estimated to be 780, and it is reported with other instrumental characteristics in Table 3.

#### 3.3.3 Nonretrieved parameter characterization and accuracy

The effects of nonretrieved parameters are a complicated part of an error description model. In our case these uncertainties are limited to the interfering water vapor molecules due to their important existence in the spectra and the effect of the temperature, where a vertically uniform uncertainty is assumed in both cases. It is important to note that in this study water vapor is considered as a nonretrieved parameter for the sake of comparison with Herbin et al. (2013a), but it will be part of the retrieved state vector in the inversion process, which will be the subject of a future study.

On the one hand, we assumed a partial column with an uncertainty ( $p_{\text{Cmol}}$ ) of 10 % instead of a profile error for H<sub>2</sub>O. On the other hand, we assumed a realistic uncertainty of  $\delta T = 1$  K on each layer of the temperature profile, which is compatible with the typical values used for the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) assimilation. Moreover, we assumed a realistic uncertainty of  $0.35^\circ$  on the SZA, corresponding to the difference in the solar angle during the acquisition of a measurement corresponding to 100 scans. All these variabilities are reported in Table 1.

The total forward model error covariance matrix ( $S_f$ ), assumed to be diagonal in the present study, is given by adding the contributions of each diagonal element, and the  $i$ th diagonal element ( $S_{f,ii}$ ) is given by

$$S_{f,ii} = \sum_{j=1}^{n \text{ level}} \sigma_{f,T_j,i}^2 + \sigma_{f,\text{H}_2\text{O},i}^2 + \sigma_{f,\text{SZA},i}^2. \quad (14)$$

Here, the spectroscopic effects such as the line parameter, the line mixing and the continua errors are not considered, but they are discussed with the  $X_G$  column estimation in Sect. 3.4.2.

### 3.4 Information content analysis applied to greenhouse gas profiles

An information content analysis is performed on the whole spectrum for CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> separately to quantify the benefit of the multispectral synergy. Separately means that the state vector comprises only one of the above gas concentrations at each level between 0 and 40 km to match the altitudes reached by TCCON and the MAGIC instruments (balloons and planes reaching altitudes of more than 25 km). This corresponds to the case in which we estimated each gas profile alone when all other atmospheric parameters and all other gas profiles are known from ancillary data with a specific

**Table 1.** State vector parameters.

State vector elements	$T$	H <sub>2</sub> O	SZA	CO <sub>2</sub>	CH <sub>4</sub>
A priori values	Radiosondes	Radiosondes	10/80°	TCCON database	TCCON database
A priori uncertainty ( $P_{\text{error}}$ )	1 K per layer	10 %	0.35°	1.3 %–8 %	5 %

variability or uncertainty. Two different SZAs (10 and 80°) are chosen to demonstrate the effect of the solar optical path on the study since the sensitivity is correlated to the viewing geometry. Furthermore two different a priori covariance matrices are used to show the effect of using climatological data describing the variability of GHG profiles. In the following subsections, we explain in detail the averaging kernel, error budget and total column estimations.

### 3.4.1 Averaging kernel and error budget estimation

Figure 8 shows the averaging kernel **A** and total posterior error **S<sub>x</sub>** for CO<sub>2</sub> for an angle of 10°. The figures of the second SZA (80°) are not shown since the vertical distribution of the kernels and errors is quite similar and exhibits only slight differences in the amplitude with respect to the other angle. However, the results are different; they are discussed in order to quantify the information variability with the viewing geometry. **A** is obtained for CO<sub>2</sub> independently using the variability introduced in Sect. 3.3.1 and considering an observing system composed of the band BT, B1, B2 or B3 separately and all the bands together to quantify the contribution of each of the spectral bands and show the benefits of the TIR–SWIR spectral synergy. Each colored line represents the row of **A** at each vertical grid layer. Each peak of **A** represents the partial degree of freedom of the gas at each level that indicates the proportion of the information provided by the measurement. In fact, if the value is close to unity, it means that the information comes predominantly from the measurement, but a value close to zero means that the information comes mainly from our prior knowledge of the a priori state. We can clearly see that at lower altitudes and up to 10 km, the kernels are close to unity, suggesting that the measurement improved our knowledge, while at higher altitudes (beyond 10 km) the kernels are close to zero. It is also important to note that when using all the bands simultaneously, the information distribution of the kernels is improved and is more homogeneous along the vertical profile.

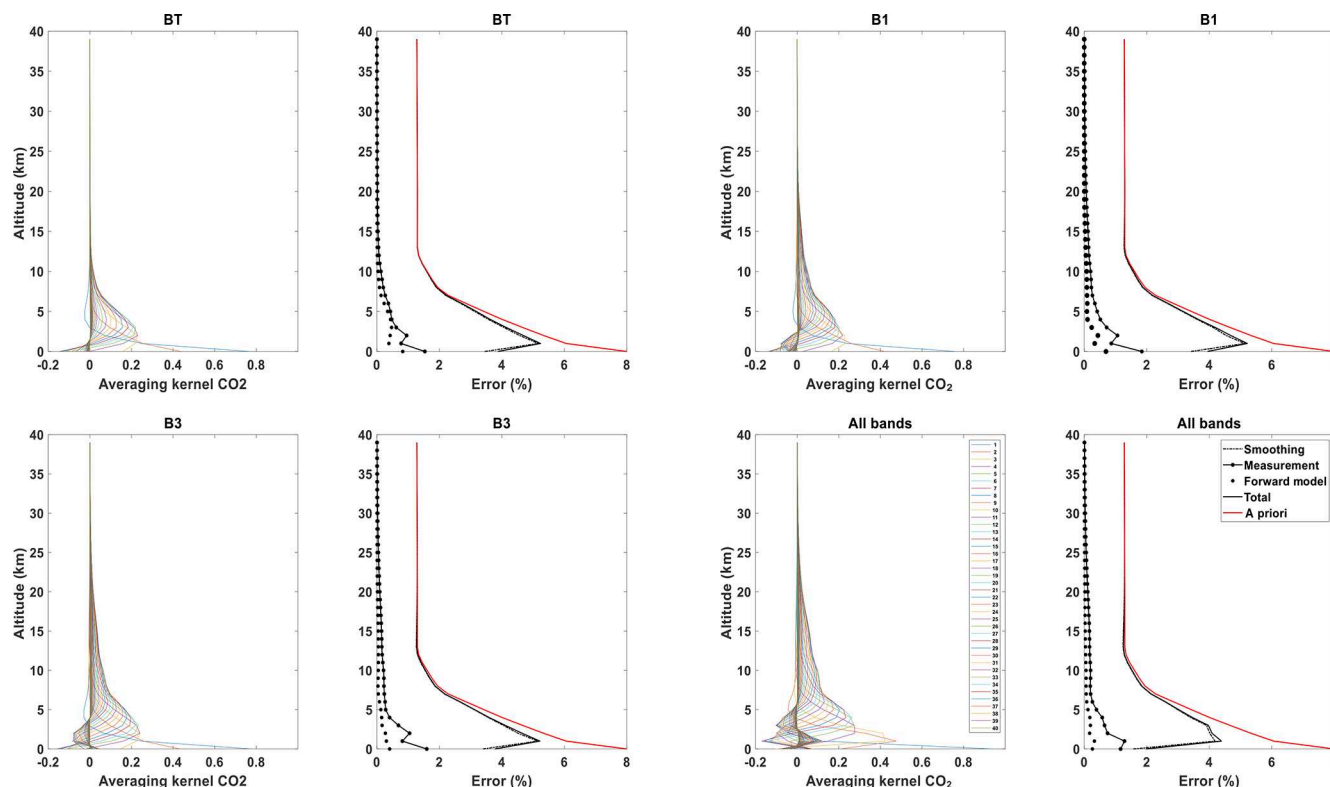
The measurement may provide information about CO<sub>2</sub> from the ground up to 20 km high in the atmosphere (all bands), while at much higher altitudes the information comes mainly from the a priori profile due to a smaller sensitivity of these gases in the upper troposphere. This is clearly represented in the error budget study: the a posteriori total error (solid black line) is significantly smaller than the a priori error (red line) in the lower part of the atmosphere (between 0 and 20 km), which means that the measurement improved our

**Table 2.** The total column errors for CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> profiles for CHRIS for the two SZAs. The uncertainties are shown in percentages (%).

Error	CO <sub>2</sub>		CH <sub>4</sub>	
	10°	80°	10°	80°
Smoothing	2.79	2.51	4.34	4.11
Measurement	0.6	0.54	0.59	0.7
Nonretrieved parameters	0.14	0.12	0.27	0.5
Total	2.89	2.6	4.4	4.19

knowledge of the CO<sub>2</sub> profile. Beyond 20 km, the total a posteriori error is equal to the a priori error, suggesting a very poor sensitivity at high altitudes. Furthermore, one can notice that the measurement error stays very weak regardless of the band used, which proves that the error related to the SNR is negligible. Furthermore, the forward model error depending on the nonretrieved parameters remains quite modest. However, the smoothing error predominates over the other errors and becomes preponderant beyond 20 km, which means that the information is strongly constrained by the a priori profile at high altitudes, and little information is introduced from the measurement. To overcome this problem, another similar study was conducted but with a nondiagonal a priori covariance matrix (Eguchi et al., 2010). The vertical distribution is more homogeneous through all the layers. The shape of the error budget is very similar to that of the variance; however, the a priori and a posteriori errors are significantly reduced. The measurement and forward model errors remain weak, but it is important to note that despite the fact that the smoothing error is smaller, the constraint is stronger. This has the effect of decreasing the uncertainty but also increasing the propagation of the smoothing error along the vertical layers, which explains the smaller values of the DOFSs.

Finally, the total DOFSs for CO<sub>2</sub> are shown in Table 4 for angles of 10 and 80°. It shows that for a diagonal a priori covariance matrix, one might be able to retrieve between two and three partial tropospheric columns for CO<sub>2</sub>, and as expected the DOFS value is slightly higher at 80° since the optical path of the sun in every layer is longer. However, when using a nondiagonal a priori covariance matrix, one less partial tropospheric column is retrieved but with significant improvement in the error budget estimation.



**Figure 8.** Averaging kernels and error budgets of vertical CO<sub>2</sub> profiles for bands TB, B1 and B3 separately and all the bands together for an angle of 10° for CHRIS. The red and solid black lines stand for the prior ( $S_a$ ) and posterior ( $S_x$ ) errors, respectively; the smoothing ( $S_{\text{smoothing}}$ ), measurement ( $S_{\text{meas.}}$ ) and forward model parameter ( $S_{\text{fwd.mod.}}$ ) errors are dash-dotted, dash-starred and dotted, respectively.

The same reasoning is followed for CH<sub>4</sub>: **A** is obtained for CH<sub>4</sub> independently using the variability introduced in Sect. 3.3.1 and considering an observing system composed of the band TB, B1, B2 or B3 separately and all the bands together. Figure 9 shows that the vertical distribution of CH<sub>4</sub> is more homogeneous than that of CO<sub>2</sub>, and we can see that the **A**'s are broader than those of CO<sub>2</sub>, suggesting a very important correlation between layers. The use of all the bands simultaneously, just like CO<sub>2</sub>, improves the information distribution along the vertical profile. The forward model error is larger than that of CO<sub>2</sub> since methane is more affected by the interfering species. The smoothing error is significantly larger than CO<sub>2</sub> since it is constrained by a much higher a priori profile variability, which suggests a more direct effect on the retrieval of CH<sub>4</sub>. Similar to CO<sub>2</sub>, when using a nondiagonal a priori covariance matrix, the vertical distribution is very analogous to that of the variance only. However, the a priori and a posteriori errors are significantly reduced. The total DOFSs for CH<sub>4</sub> are shown in Table 5 for both SZAs. This parameter shows that, for a diagonal a priori covariance matrix, three partial tropospheric columns and one additional partial column for an SZA of 80° can be retrieved. Finally, while using a nondiagonal a priori covariance matrix the DOFSs show that one less partial column is retrieved.

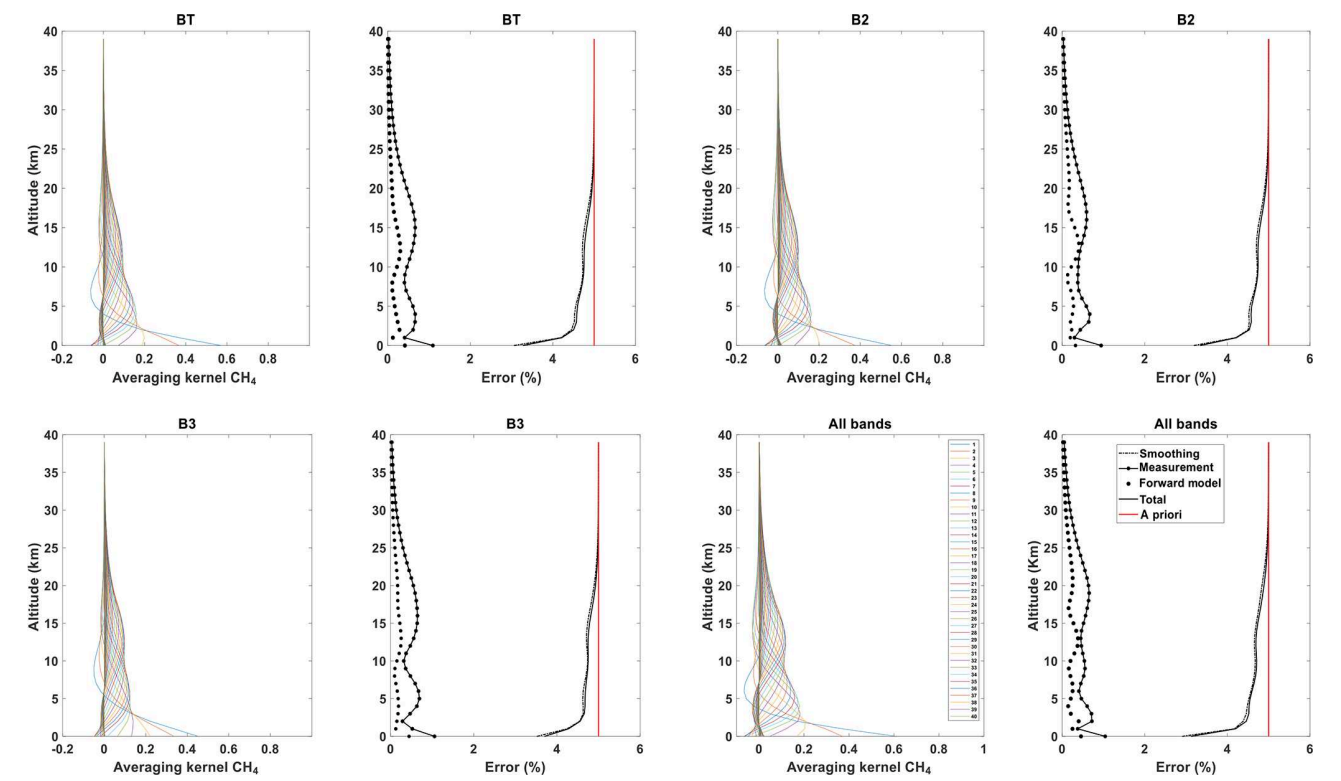
As a general result, the simultaneous use of all the bands instead of using each one separately increases the total DOFSs and systematically reduces the total errors of the two species. Moreover, using a climatological a priori covariance matrix shows the importance of reducing the error of the retrieved partial columns. Finally, the total profile error is derived from the relative values of the diagonal matrix of  $S_x$  (see Tables 4 and 5), which are discussed in detail in the following section.

### 3.4.2 Total column estimation and uncertainty

Ground-based instruments like the one used in the TCCON network and the EM27/SUN operate in the NIR, where the column-averaged dry-air mole fractions (denoted  $X_G$  for gas G) are calculated by monitoring the observed O<sub>2</sub> columns.  $X_G$  is calculated by rationing the gas-retrieved slant column to the O<sub>2</sub>-retrieved slant column for the same spectrum. Especially among the NDACC community, another method is used to calculate  $X_G$  without using the oxygen reference. Based on the formula given in Wunch et al. (2011) and used in Zhou et al. (2019), we can calculate  $X_G$  for CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub>:

$$X_G = \frac{\text{column}_G}{\text{column dry air}} \quad (15)$$





**Figure 9.** Same as Fig. 8 but for CH<sub>4</sub> with bands TB, B2 and B3 and all the bands together.

**Table 3.** Instrumental characteristics of CHRIS, the EM27/SUN and the IFS125HR of both NDACC and TCCON.

	Resolution (cm <sup>-1</sup> )	MOPD (cm)	Spectral region (cm <sup>-1</sup> )	SNR
CHRIS	0.135	4.42	TB: 680–1250 B1: 1800–2300 B2: 2400–3600 B3: 3900–5200	780
EM27/SUN	0.5	1.8	B3: 4700–5200 B4: 5460–7200 B5: 7370–12 500	1080
IFS125HR (TCCON)	0.02	45	4000–15 000	~ 750
IFS125HR (NDACC)	0.0035–0.007	128–257	5–5200	~ 1000

column dry air =  $\frac{P_s}{g_{\text{air}} m_{\text{air}}^{\text{dry}}} - \text{column}_{\text{H}_2\text{O}} \frac{m_{\text{H}_2\text{O}}}{m_{\text{air}}^{\text{dry}}}$ ,  
where  $m_{\text{H}_2\text{O}}$  and  $m_{\text{air}}^{\text{dry}}$  are the mean molecular masses of water and dry air, respectively;  $P_s$  is the surface pressure; and  $g_{\text{air}}$  is the column-averaged gravitational acceleration. Therefore, the calculation of  $X_G$  is possible if all these parameters are available, particularly within the MAGIC framework, where we have access to the balloons and radiosondes data (temperature, surface pressure, relative humidity etc.) along with all the instruments involved. Thus, for these particular campaigns,  $X_G$  values will be calculated for CHRIS using

ARAHMIS, and the results will be compared with the other instruments involved, especially the IFS125HR of the TCCON network and the EM27/SUN. This will be the subject of an upcoming paper. However, the two equations for the calculation of  $X_G$  are not strictly similar since the EM27/SUN eliminates the systematic errors that are common to the target gas and O<sub>2</sub> column retrievals, which will not be possible for us since the O<sub>2</sub> band is not detected by CHRIS.  
In addition, the total column uncertainty is calculated by adding the concentration of each layer along the profile, weighted by the column of dry air based on Figs. 8 and 9. Table 2 lists the propagated uncertainties of the total column

for both SZAs using a diagonal a priori covariance matrix: the uncertainty of the total CO<sub>2</sub> column is 2.89 % and 2.6 % for 10 and 80°, respectively, while the uncertainty for the total CH<sub>4</sub> column is 4.4 % and 4.19 % for 10 and 80°, respectively. The uncertainties are smaller for an SZA of 80° because the information distribution is improved with a longer OPD. Furthermore, these results show that the total profile error for CH<sub>4</sub> is almost 2 times higher than that of CO<sub>2</sub>, but this is explained by the fact that our profile error is limited by the a priori profile error, which is much higher for CH<sub>4</sub> than for CO<sub>2</sub>. The dominating component of the uncertainty comes from the smoothing, which predominates over the other uncertainties for both GHGs and is the major contributor to the total profile error. H<sub>2</sub>O, temperature and SZA are the most important parameters contributing to the forward model; they are represented by the nonretrieved parameter uncertainty. Additionally, it is important to note that there is a supplementary uncertainty associated with the spectroscopy unaccounted for in our study, which is purely systematic. It is not simple to evaluate in this case because we use different spectral domains, each having different spectroscopic uncertainties listed in the HITRAN database.

### 3.5 Comparison and complementary information content analysis for the IFS125HR, the EM27/SUN and CHRIS

During the MAGIC campaigns, several EM27/SUN and two IFS125HR instruments from the TCCON network were operated alongside CHRIS. An information content analysis is presented in the following sections for both of these instruments in order to compare and complement the study performed on CHRIS in Sect. 3.4.

#### 3.5.1 Complementary information with the EM27/SUN

In this section, an IC study is performed for the EM27/SUN instrument in order to compare it with our results and to investigate the possibility of complementing the data we obtained from CHRIS, especially for MAGIC. The bands of the EM27/SUN used in this study are denoted as follows: B3 is the common band with CHRIS and has a spectral range of 4700–5200 cm<sup>-1</sup>, B4 goes from 5460 to 7200 cm<sup>-1</sup>, and B5 spans the spectral region between 7370 and 12 500 cm<sup>-1</sup>.

Firstly, a similar study to CHRIS is performed on the EM27/SUN for CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> separately. As mentioned in Sect. 3.4, the state vector comprises only one of the gas concentrations with the same profile at a layer going from 0 to 40 km; however, we took into account the SNR and spectral resolution specific to this instrument (see Table 3). Similar to the reasoning for CHRIS followed in Sect. 3.4, this study shows that using all the EM27/SUN bands together leads to an improvement of the a posteriori error profile of CO<sub>2</sub> concentrations, especially in the lower part of the atmosphere. Table 4 shows the DOFSs for CO<sub>2</sub> of the EM27/SUN: using

a diagonal a priori covariance matrix for an angle of 10°, the total DOFSs for bands B3 (common band with CHRIS) and B4 as well as all bands together are 2.95, 1.63 and 3.03, respectively. If only band B3 is taken into consideration, which is the common band between the two instruments, the DOFSs of CHRIS in this band are, as stated before, 2.62 and 3.34 for an angle of 10 and 80°, respectively, compared to 2.95 and 3.17 for the EM27/SUN. Therefore, the same number of partial columns can be retrieved using CHRIS (see Sect. 3.4) for CO<sub>2</sub> in this band. Furthermore, similar to CHRIS, the total error is reduced with a more propagated smoothing error on the profile and a reduction in the DOFSs when using a nondiagonal a priori covariance matrix (Eguchi et al., 2010). As for CH<sub>4</sub> and referring to Table 3, band 3 in this instrument begins (4700 cm<sup>-1</sup>) where the CH<sub>4</sub> band ends (4150–4700 cm<sup>-1</sup>) in the IFS125HR and CHRIS. This is important because TCCON networks begin their measurements at 4000 cm<sup>-1</sup>, which allowed for the comparison with band 3 of CHRIS (for both CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub>). However, the EM27/SUN instruments have no exploitable signal before 4700 cm<sup>-1</sup> (Gisi et al., 2012); therefore the CH<sub>4</sub> absorption lines do not show in the common band between CHRIS and the EM27/SUN, so the results are not discussed here.

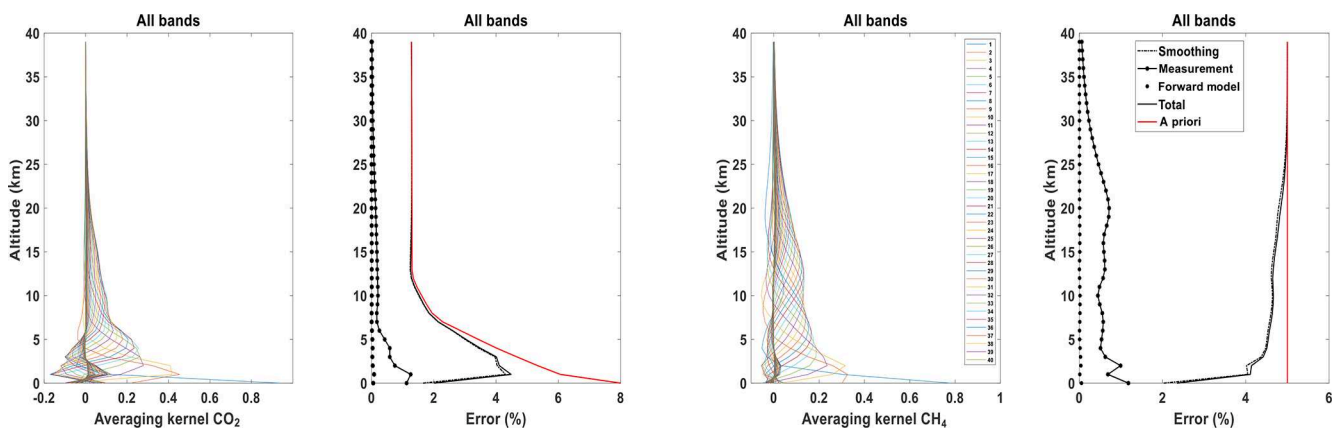
Secondly, a simultaneous IC study was performed on all the channels of both CHRIS and the EM27/SUN in order to analyze the complementary aspect of these two instruments. The results of this study are shown in Fig. 10. The DOFSs obtained for CO<sub>2</sub> are 3.67 and 3.93 for angles 10 and 80°, respectively; for CH<sub>4</sub> they are 3.99 and 4.43. This indicates a significant improvement of the retrieval when the spectral synergy between TIR, SWIR and NIR is used, but it is less than the one obtained from space (for example TANSO-FTS in Herbin et al., 2013a) since the measurement is obtained from the same optical path.

#### 3.5.2 Comparison with the IFS125HR

As mentioned before, the IFS125HR is a ground-based high-resolution infrared spectrometer used at NDACC and TCCON stations around the world. We performed a similar information content study only on the TCCON instrument since this network is involved in the MAGIC campaigns; therefore the results can be compared. For simplicity, the same annotation of the bands is kept for this section. The same methodology described in Sect. 3.4 is used here: the state vector comprises only CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> concentrations at a layer going from 0 to 40 km, where the SNR and the spectral resolution specific to the IFS125HR are taken into consideration (see Table 3).

We follow the same reasoning as in the sections before: Fig. 11 shows the averaging kernel **A** and the total posterior error **S<sub>x</sub>** for CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> for an angle of 10°. We can see that the vertical distribution is more homogeneous than CHRIS and the EM27/SUN, suggesting a high sensitivity at high altitudes, although in the lower atmosphere the a poste-





**Figure 10.** Averaging kernels and error budgets of vertical CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> profiles for all the bands together for the EM27/SUN and CHRIS combined for an angle of 10°. The red and black lines stand for the prior ( $S_a$ ) and posterior ( $S_x$ ) errors, respectively; the smoothing ( $S_{\text{smoothing}}$ ), measurement ( $S_{\text{meas.}}$ ) and forward model parameter ( $S_{\text{fwd.mod.}}$ ) errors are dash-dotted, dash-starred and dotted, respectively.

**Table 4.** The DOFSs and column errors (%) of CO<sub>2</sub> for each band and for each instrument.

		TB	B1	B3	B4	All bands	
		DOFSs				DOFSs	Error
CHRIS	Angle 10	2.01	2.32	2.62	–	2.95	2.89 %
	Angle 80	2.56	2.67	3.34	–	3.71	2.6 %
CHRIS with covariance	Angle 10	1.45	1.7	2.15	–	2.38	1.01 %
	Angle 80	1.89	1.92	2.68	–	3.08	0.94 %
EM27/SUN	Angle 10	–	–	2.95	1.63	3.03	2.77 %
	Angle 80	–	–	3.17	2.33	3.31	2.67 %
EM27/SUN with covariance	Angle 10	–	–	2.25	1.17	2.37	1.01 %
	Angle 80	–	–	2.53	1.71	2.68	0.97 %
IFS125HR	Angle 10	2.15	2.33	3.07	2.62	3.9	2.82 %
	Angle 80	2.51	2.61	3.59	2.99	4.23	2.72 %
IFS125HR with covariance	Angle 10	1.66	1.85	2.86	2.3	3.28	0.97 %
	Angle 80	1.97	2.14	3.04	2.61	3.53	0.95 %

priori error  $S_x$  is significantly reduced. This is also shown in the error budget study: we can still distinguish the a posteriori total error (solid black line) from the a priori error (red line) even in the higher atmosphere. This is explained by the fact that the IFS125HR has a spectral resolution higher than both CHRIS and the EM27/SUN, so the measurement always improves our knowledge of the profile all along the atmospheric column. Furthermore, when using a nondiagonal a priori covariance matrix, the total profile error is significantly reduced, especially for CH<sub>4</sub>; however, the DOFSs are also reduced.

The DOFSs of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> are shown in Table 4 for both viewing angles and a priori covariance matrices. On the one hand, one additional partial tropospheric column for CO<sub>2</sub> can be retrieved with respect to CHRIS for an angle of 10° and with respect to the EM27/SUN for both angles if all the

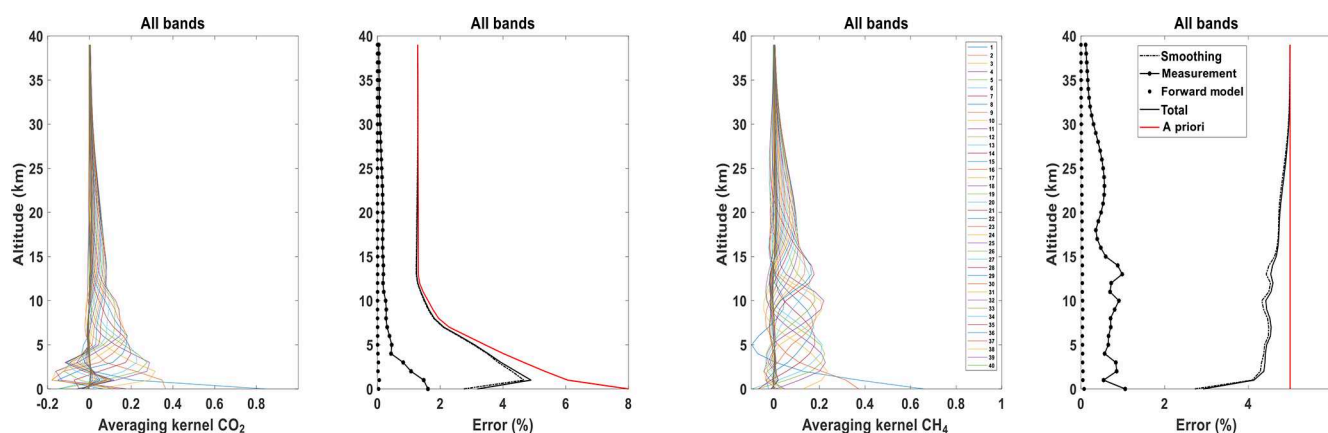
bands are used. On the other hand, one additional partial tropospheric column can be retrieved for CH<sub>4</sub> with respect to CHRIS for both angles if all the bands are used.

#### 4 Channel selection

Using all the channels in the retrieval process has two disadvantages. First of all, it requires a very large computational time. Secondly, the correlation of the interfering species increases the systematic error. In this case, the a priori state vector  $x_a$  and the error covariance matrix  $S_a$  are very difficult to evaluate. Channel selection is a method described by Rodgers (2000) to optimize a retrieval by objectively selecting the subset of channels that provides the greatest amount of information from high-resolution infrared sounders. L’Ecuyer et al. (2006) offer a description of this

**Table 5.** The DOFSs and column errors (%) of CH<sub>4</sub> for each band and for each instrument.

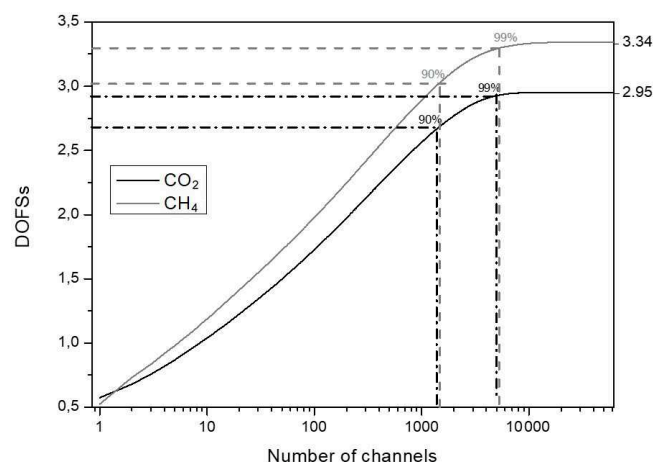
		TB	B2	B3	B4	All bands	
		DOFSs				DOFSs	Error
CHRIS	Angle 10	2.77	2.87	2.62	–	3.34	4.4 %
	Angle 80	3.19	3.88	3.45	–	4.26	4.19 %
CHRIS with covariance	Angle 10	2.03	2.22	1.97	–	2.57	1.5 %
	Angle 80	2.23	2.83	2.56	–	3.21	1.46 %
EM27/SUN	Angle 10	–	–	–	1.69	1.69	4.67 %
	Angle 80	–	–	–	2.45	2.45	4.54 %
EM27/SUN with covariance	Angle 10	–	–	–	1.18	1.18	1.59 %
	Angle 80	–	–	–	1.81	1.81	1.55 %
IFS125HR	Angle 10	3.37	3.97	3.69	2.56	4.64	4.23 %
	Angle 80	3.66	4.42	4.23	3.35	4.98	4.21 %
IFS125HR with covariance	Angle 10	2.45	3.03	2.79	1.83	3.55	1.47 %
	Angle 80	2.57	3.34	3.22	2.45	3.81	1.46 %

**Figure 11.** Averaging kernels and error budgets of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> and vertical profiles for all the bands together for an angle of 10° for the IFS125HR. The red and black lines stand for the prior ( $S_a$ ) and posterior ( $S_x$ ) errors, respectively; the smoothing ( $S_{\text{smoothing}}$ ), measurement ( $S_{\text{meas.}}$ ) and forward model parameter ( $S_{\text{fwd.mod.}}$ ) errors are dash-dotted, dash-starred and dotted, respectively.**Table 6.** Corresponding number of selected channels for the DOFSs of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> and their respective percentage of the total number of channels for CHRIS.

DOFSs	CO <sub>2</sub>		CH <sub>4</sub>	
	90 %	99 %	90 %	99 %
Number of channels	1329	4648	1387	5924
Percentage of the total number of channels	2.15 %	7.54 %	2.25 %	9.61 %

procedure based on the Shannon information content. Firstly, we create an “information spectrum” in order to evaluate the information content with respect to the a priori state vec-

tor. The channel with the largest amount of information is then selected. A new spectrum is then calculated with a new a posteriori covariance matrix that is adjusted according to the channel selected in the first iteration to account for the information it provides. In this way a second channel is chosen, based on this newly defined state space. This channel provides maximal information relative to the new a posteriori covariance matrix. This process is repeated, and channels are selected sequentially until the information in all the remaining channels falls below the level of measurement noise. As stated by the Shannon information content and noted in Rodgers (2000), it is convenient to work on a basis on which the measurement errors and prior variances are uncorrelated in order to compare the measurement error with the natural variability of the measurements across the full prior state. Therefore, it is desirable to transform the Jacobian matrix  $\mathbf{K}$



**Figure 12.** Evolution of the DOFSs with the number of selected channels for CO<sub>2</sub> (black) and CH<sub>4</sub> (gray).

(see Sect. 3.2) into  $\tilde{\mathbf{K}}$  using

$$\tilde{\mathbf{K}} = \mathbf{S}_y^{-1/2} \mathbf{K} \mathbf{S}_a^{1/2}, \quad (16)$$

which offers the added benefit of being the basis on which both the a priori and the measurement covariance matrices are unit matrices. Furthermore, Rodgers demonstrates that the number of singular values of  $\tilde{\mathbf{K}}$  greater than unity defines the number of independent measurements that exceed the measurement noise defining the effective rank of the problem.

Letting  $\mathbf{S}_i$  be the error covariance matrix for the state space after  $i$  channels have been selected, the information content of channel  $j$  of the remaining unselected channels is given by

$$H_j = \frac{1}{2} \log_2 \left( 1 + \tilde{\mathbf{k}}_j^T \mathbf{S}_i \tilde{\mathbf{k}}_j \right), \quad (17)$$

where  $\tilde{\mathbf{k}}_j$  is the  $j$ th row of  $\tilde{\mathbf{K}}$ .  $H_j$  constitutes the information spectrum from which the first channel is selected. Taking the chosen channel to be channel  $l$ , the covariance matrix is then updated before the next iteration using the following statement:

$$\mathbf{S}_{i+1}^{-1} = \mathbf{S}_i^{-1} + \tilde{\mathbf{k}}_l \tilde{\mathbf{k}}_l^T. \quad (18)$$

In this way, channels are selected until 90 % of the total information spectrum  $H$  is reached in a way that the measurement noise is not exceeded.

After that,  $H$ , expressed in bits, is converted to DOFSs to obtain Fig. 12, which represents the total DOFS evolution for CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> as a function of the number of selected channels for all spectral bands and for an SZA of 10°. CHRIS has 75 424 channels in total; 13 800 are unusable because of the water vapor saturation between the bands, which leaves us with 61 624 exploitable channels. A pre-selection of these channels, based on Fig. 7, is done where

the number of exploitable channels is reduced to the spectral areas where we find CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> (13 447 and 19 751 pre-selected channels, respectively). In Fig. 12, the DOFSs for each gas increase sharply with the first selected channels at first glance and then more steadily. The number of channels required to reach 90 % and 99 % of the total information is represented in Table 6. For CO<sub>2</sub>, out of the 1329 channels, 55.76 % of the information comes from B3 (common band with the EM27/SUN), 37.24 % from TB and 6.99 % from B1. As for CH<sub>4</sub>, out of the 1387 channels, 46.86 % of the information comes from B2, 28.19 % from TB and 24.9 % from B3. This result shows that most of the information for CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> comes from B3 and TB, respectively, which indicates that the synergy between TIR and SWIR observations is confirmed.

Furthermore, the 1329 and 1387 selected channels represent 2.15 % and 2.25 % of the 61 624 exploitable channels, respectively, so a retrieval process that uses selected channels corresponding to 90 % of the total information content would give comparable results to the one using the entire set of channels since almost 98 % of the information is redundant. Hence, these results indicate the interest of determining an optimal set of channels for each gas separately. This is why this channel selection will be used in the retrieval process, making it easier and less time consuming.

## 5 Conclusions

In conclusion, this paper presents the characteristics of the new infrared spectrometer CHRIS, which allows the retrieval of GHGs and trace gases. This instrumental prototype has unique characteristics such as its high spectral resolution (0.135 cm<sup>-1</sup>) and wide spectral range (680–5200 cm<sup>-1</sup>), covering the MIR region. In the context of its exploitation to retrieve GHGs, spectral and radiometric calibrations were performed using a calibrated external blackbody reaching a temperature of 1523 K. Additionally, between laboratory calibrations and during field campaigns the radiometric stability is monitored through measurements of the internal blackbody. Within the MAGIC framework, an extensive information content analysis is performed, showing the potential capabilities of this instrument to retrieve GHGs using two different SZAs (10 and 80°) to quantify the improvement of the information with the solar optical path. Furthermore, two a priori covariance matrices were used: one diagonal and another derived from climatological data. The total column uncertainty is estimated, showing that when using a diagonal a priori covariance matrix the error for an angle of 10° is of the order of 2.89 % for CO<sub>2</sub> and 4.4 % for CH<sub>4</sub> for all the bands; however, when using a climatological distribution the total column error for the same angle and for all the bands is reduced to 1.01 % for CO<sub>2</sub> and 1.5 % for CH<sub>4</sub> but with a significant decrease in the DOFSs (from 2.95 to 2.38 for CO<sub>2</sub> and from 3.34 to 2.57 for CH<sub>4</sub>). Furthermore, a comparison

study with the IFS125HR of the TCCON, which is widely used in the satellite validation process, is performed, illustrating the benefits of its high spectral resolution for GHG retrievals. Moreover, a complementary study is carried out on the EM27/SUN to investigate the possibility of a retrieval exploiting the synergy between TIR, SWIR and NIR observations, which showed that a significant improvement can be obtained. For example, with an SZA of  $10^\circ$  the DOFSs are increased from 2.95 to 3.67. Finally, a channel selection is implemented to remove the redundant information. The latter will be used in future work dedicated to the CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> total column retrievals for the MAGIC campaigns.

**Data availability.** All CHRIS data are available by contacting the authors.

**Author contributions.** MTEK and HH wrote the paper and produced the main analysis and results. FA, HH and MTEK designed the calibration study, performed the laboratory measurements and participated in the field campaigns. All authors read and provided comments on the paper.

**Competing interests.** The authors declare that they have no conflict of interest.

**Acknowledgements.** We acknowledge Fabrice Ducos for providing IT support and extensive expertise that greatly assisted this work and most of all for his great work on the ARAHMIS algorithm development. We would also like to thank the Ecole Centrale de Lille for its help on the radiometric calibration. Finally, we acknowledge Denis Petitprez from the PC2A laboratory for his experimental help on the ILS characterization.

**Financial support.** This research has been supported by the CNES (Centre National d'Etudes Spatiales) TOSCA-MAGIC project. The CaPPA (Chemical and Physical Properties of the Atmosphere) project is funded by the French National Research Agency (ANR) through the PIA (Programme d'Investissement d'Avenir) (contract no. ANR-11-LABX-0005-01) and by the regional council Nord Pas de Calais-Picardie and the European Funds for Regional Economic Development (FEDER).

**Review statement.** This paper was edited by Alyn Lambert and reviewed by two anonymous referees.

## References

Aumann, H. H., Chahine, M. T., Gautier, C., Goldberg, M. D., Kalnay, E., McMillin, L. M., Revercomb, H., Rosenkranz, P. W., Smith, W. L., Staelin, D. H., Strow, L. L., and Susskind, J.:

AIRS/AMSU/HSB on the Aqua mission: design, science objectives, data products, and processing systems, *IEEE T. Geosci. Remote*, 41, 253–264, <https://doi.org/10.1109/TGRS.2002.808356>, 2003.

Clarisse, L., Hurtmans, D., Prata, A. J., Karagulian, F., Clerbaux, C., Mazière, M. D., and Coheur, P.-F.: Retrieving radius, concentration, optical depth, and mass of different types of aerosols from high-resolution infrared nadir spectra, *Appl. Optics*, 49, 3713–3722, <https://doi.org/10.1364/AO.49.003713>, 2010.

Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., Turquety, S., George, M., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Wespes, C., Herbin, H., Blumstein, D., Tourniers, B., and Phulpin, T.: The IASI/MetOp1 Mission: First observations and highlights of its potential contribution to GMES2, *Space Res. Today*, 168, 19–24, [https://doi.org/10.1016/S0045-8732\(07\)80046-5](https://doi.org/10.1016/S0045-8732(07)80046-5), 2007.

Clough, S. A., Shephard, M. W., Mlawer, E. J., Delamere, J. S., Iacono, M. J., Cady-Pereira, K., Boukabara, S., and Brown, P. D.: Atmospheric radiative transfer modeling: a summary of the AER codes, *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 91, 233–244, <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2004.05.058>, 2005.

De Wachter, E., Kumps, N., Vandaele, A. C., Langerock, B., and De Mazière, M.: Retrieval and validation of MetOp/IASI methane, *Atmos. Meas. Tech.*, 10, 4623–4638, <https://doi.org/10.5194/amt-10-4623-2017>, 2017.

Dohe, S., Sherlock, V., Hase, F., Gisi, M., Robinson, J., Sepúlveda, E., Schneider, M., and Blumenstock, T.: A method to correct sampling ghosts in historic near-infrared Fourier transform spectrometer (FTS) measurements, *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 1981–1992, <https://doi.org/10.5194/amt-6-1981-2013>, 2013.

Eguchi, N., Saito, R., Saeki, T., Nakatsuka, Y., Belikov, D., and Maksyutov, S.: A priori covariance estimation for CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> retrievals, *J. Geophys. Res.*, 115, D10215, <https://doi.org/10.1029/2009JD013269>, 2010.

Gisi, M., Hase, F., Dohe, S., Blumenstock, T., Simon, A., and Keens, A.: XCO<sub>2</sub>-measurements with a tabletop FTS using solar absorption spectroscopy, *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 2969–2980, <https://doi.org/10.5194/amt-5-2969-2012>, 2012.

Gordon, I. E., Rothman, L. S., Hill, C., Kochanov, R. V., Tan, Y., Bernath, P. F., Birk, M., Boudon, V., Campargue, A., Chance, K., Drouin, B. J., Flaud, J.-M., Gamache, R. R., Hodges, J. T., Jacquemart, D., Perevalov, V. I., Perrin, A., Shine, K. P., Smith, M.-A. H., Tennyson, J., Toon, G. C., Tran, H., Tyuterev, V. G., Barbe, A., Császár, A. G., Devi, V. M., Furtenbacher, T., Harrison, J. J., Hartmann, J.-M., Jolly, A., Johnson, T. J., Karman, T., Kleiner, I., Kyuberis, A. A., Loos, J., Lyulin, O. M., Massie, S. T., Mikhailenko, S. N., Moazzen-Ahmadi, N., Muller, H. S. P., Naumenko, O. V., Nikitin, A. V., Polyansky, O. L., Rey, M., Rotger, M., Sharpe, S. W., Sung, K., Starikova, E., Tashkun, S. A., Auwera, J. V., Wagner, G., Wilzewski, J., Wcislo, P., Yu, S., and Zak, E. J.: The HITRAN2016 molecular spectroscopic database, *J. Quant. Spectrosc. Ra.*, 203, 3–69, <https://doi.org/10.1016/j.jqsrt.2017.06.038>, 2017.

Herbin, H., Labonnote, L. C., and Dubuisson, P.: Multispectral information from TANSO-FTS instrument – Part 1: Application to greenhouse gases (CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub>) in clear sky conditions, *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 3301–3311, <https://doi.org/10.5194/amt-6-3301-2013>, 2013.

- Kobayashi, N., Inoue, G., Kawasaki, M., Yoshioka, H., Minomura, M., Murata, I., Nagahama, T., Matsumi, Y., Tanaka, T., Morino, I., and Ibuki, T.: Remotely operable compact instruments for measuring atmospheric CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> column densities at surface monitoring sites, *Atmos. Meas. Tech.*, 3, 1103–1112, <https://doi.org/10.5194/amt-3-1103-2010>, 2010.
- L'Ecuyer, T. S., Gabriel, P., Leesman, K., Cooper, S. J., and Stephens, G. L.: Objective Assessment of the Information Content of Visible and Infrared Radiance Measurements for Cloud Microphysical Property Retrievals over the Global Oceans. Part I: Liquid Clouds, *J. Appl. Meteorol. Clim.*, 45, 20–41, <https://doi.org/10.1175/JAM2326.1>, 2006.
- Michalsky, J. J.: The Astronomical Almanac's algorithm for approximate solar position (1950–2050), *J. Sol. Energ.*, 40, 227–235, [https://doi.org/10.1016/0038-092X\(88\)90045-X](https://doi.org/10.1016/0038-092X(88)90045-X), 1988.
- Pathakoti, M., Gaddamidi, S., Gharai, B., Mullapudi Venkata Rama, S. S., Kumar Sundaran, R., and Wang, W.: Retrieval of CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, CO and N<sub>2</sub>O using ground-based FTIR data and validation against satellite observations over the Shadnagar, India, *Atmos. Meas. Tech. Discuss.*, <https://doi.org/10.5194/amt-2019-7>, 2019.
- Persky, M. J.: A review of spaceborne infrared Fourier transform spectrometers for remote sensing, *Rev. Sci. Instrum.*, 66, 4763–4797, <https://doi.org/10.1063/1.1146154>, 1995.
- Petri, C., Warneke, T., Jones, N., Ridder, T., Messerschmidt, J., Weinzierl, T., Geibel, M., and Notholt, J.: Remote sensing of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> using solar absorption spectrometry with a low resolution spectrometer, *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 1627–1635, <https://doi.org/10.5194/amt-5-1627-2012>, 2012.
- Razavi, A., Clerbaux, C., Wespes, C., Clarisse, L., Hurtmans, D., Payan, S., Camy-Peyret, C., and Coheur, P. F.: Characterization of methane retrievals from the IASI space-borne sounder, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 7889–7899, <https://doi.org/10.5194/acp-9-7889-2009>, 2009.
- Revercomb, H. E., Buijs, H., Howell, H. B., LaPorte, D. D., Smith, W. L., and Sromovsky, L. A.: Radiometric calibration of IR Fourier transform spectrometers: solution to a problem with the High-Resolution Interferometer Sounder, *Appl. Optics*, 27, 3210–3218, <https://doi.org/10.1364/AO.27.003210>, 1988.
- Rodgers, C. D.: *Inverse Methods for Atmospheric Sounding – Theory and Practice*, Series on Atmospheric Oceanic and Planetary Physics, vol. 2, World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd, Singapore, <https://doi.org/10.1142/9789812813718>, 2000.
- Schmidt, U. and Khedim, A.: In situ measurements of carbon dioxide in the winter Arctic vortex and at midlatitudes: an indicator of the age of stratospheric air, *Geophys. Res. Lett.*, 18, 763–766, <https://doi.org/10.1029/91GL00022>, 1991.
- Schneider, M. and Hase, F.: Technical Note: Recipe for monitoring of total ozone with a precision of around 1 DU applying mid-infrared solar absorption spectra, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 63–71, <https://doi.org/10.5194/acp-8-63-2008>, 2008.
- Suto, H., Kuze, A., Kaneko, Y., and Hamazaki, T.: Characterization of TANSO-FTS on GOSAT, AGU Fall Meeting Abstracts, 2006.
- Toon, G. C.: Solar Line List for the TC-CON 2014 Data Release, CaltechDATA, <https://doi.org/10.14291/tccon.ggg2014.solar.r0/1221658>, 2015.
- Trishchenko, A. P.: Solar Irradiance and Effective Brightness Temperature for SWIR Channels of AVHRR/NOAA and GOES Imagers, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 23, 198–210, <https://doi.org/10.1175/JTECH1850.1>, 2006.
- Wiacek, A., Taylor, J. R., Strong, K., Saari, R., Kerzenmacher, T. E., Jones, N. B., and Griffith, D. W. T.: Ground-Based Solar Absorption FTIR Spectroscopy: Characterization of Retrievals and First Results from a Novel Optical Design Instrument at a New NDACC Complementary Station, *J. Atmos. Ocean. Tech.*, 24, 432–448, <https://doi.org/10.1175/JTECH1962.1>, 2007.
- Wunch, D., Toon, G. C., Blavier, J.-F. L., Washenfelder, R. A., Notholt, J., Connor, B. J., Griffith, D. W. T., Sherlock, V., and Wennberg, P. O.: The Total Carbon Column Observing Network, *Philos. T. R. Soc. A*, 369, 2087–2112, <https://doi.org/10.1098/rsta.2010.0240>, 2011.
- Zhou, M., Langerock, B., Sha, M. K., Kumps, N., Hermans, C., Petri, C., Warneke, T., Chen, H., Metzger, J.-M., Kivi, R., Heikkinen, P., Ramonet, M., and De Mazière, M.: Retrieval of atmospheric CH<sub>4</sub> vertical information from ground-based FTS near-infrared spectra, *Atmos. Meas. Tech.*, 12, 6125–6141, <https://doi.org/10.5194/amt-12-6125-2019>, 2019.